

UNIVERSITE DE LIMOGES
ECOLE DOCTORALE Science – Technologie – Santé

FACULTE des Sciences et Techniques

Année : 2003

Thèse N° 16-2003

Thèse
pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LIMOGES

Discipline / Spécialité : Matériaux Céramiques et Traitements de Surface

présentée et soutenue par

Benoit BARTHELEMY

le 12 juin 2003

**Combustion – Vitrification de déchets radioactifs par
plasma d'arc :
Modélisation de la thermique et de la dynamique**

Thèse dirigée par Monsieur Jean Marie BARONNET

JURY :

M G. COGNET	rapporteur	Ingénieur, HDR, CEA
M P. MOSZKOWICZ	rapporteur	Professeur, INSA de Lyon
M J.M. BARONNET	examineur	Professeur, Université de Limoges
Mlle C. VANDENSTEENDAM	examineur	Maître de Conférence, Docteur ès Sciences, Université de Limoges
Mme A. VARDELLE	examineur	Professeur, Université de Limoges
M E. VERNAZ	examineur	Directeur de Recherche, HDR, CEA
M C. DAGOT	invité	Maître de Conférence, HDR, Université de Limoges
Mme C. DELALONDRE	invité	Ingénieur de Recherche, EDF
M C. GIROLD	invité	Ingénieur de Recherche, CEA
M B. PAYA	invité	Ingénieur de Recherche, EDF

*A mes parents pour tous leurs sacrifices,
à mon frère, à Carole,
à ma grand-mère,
à ma famille.*

Je tiens tout d'abord à remercier le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) et Electricité de France (EDF) pour le financement de ce travail.

Monsieur le Professeur J.M. BARONNET, Directeur du Laboratoire de Chimie des Plasmas de l'Université de Limoges, m'a toujours témoigné sa confiance. Ses conseils fructueux et sa rigueur scientifique m'ont permis de mener à bien ce travail et de comprendre "qu'il faut toujours persévérer pour obtenir des résultats toujours meilleurs". Qu'il veuille bien trouver ici le témoignage de ma profonde et sincère reconnaissance.

A Madame le Professeur A. VARDELLE, de l'Université de Limoges, j'exprime ma gratitude pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse.

A Monsieur le Professeur P. MOSZKOWICZ, de l'INSA de Lyon, qui a accepté d'être rapporteur de cette thèse et de participer au jury, j'exprime ma vive reconnaissance et mon profond respect.

Je remercie également Monsieur G. COGNET, HDR, Ingénieur au CEA, d'avoir accepté d'examiner ce mémoire et m'avoir fait l'honneur de siéger parmi les membres du jury.

J'exprime tous mes remerciements à Monsieur E. VERNAZ, Directeur de recherche au CEA, qui a accepté d'être membre du jury.

A Mademoiselle C. VANDENSTEENDAM, Maître de Conférence à l'Université de Limoges, qui par ses critiques et sa rigueur scientifique a permis à ce travail d'être ce qu'il est, j'exprime ma vive reconnaissance et mon profond respect.

Je remercie Monsieur C. DAGOT, Maître de Conférence à l'Université de Limoges, d'avoir jugé mon travail et d'avoir accepté de participer à mon jury.

A Madame C. DELALONDRE, Ingénieur EDF, Monsieur B. PAYA, Ingénieur EDF, et Monsieur C. GIROLD, Ingénieur CEA, j'exprime toute ma gratitude pour l'intérêt et l'attention particulière qu'ils ont posé sur mon travail.

Je tiens également à exprimer ma profonde reconnaissance à Monsieur R. BOEN, Chef du Service de Confinement et Vitriification de Déchets pour m'avoir accueilli dans son équipe, à Monsieur J.P. ROZAIN, Chef du Département d'Ingénierie et d'Etudes du Conditionnement, et à Monsieur J.P. MONCOYOUX, Directeur du CECER, qui a toujours porté une certaine attention à ce travail

Je voudrais également remercier tous les membres des différents laboratoires que j'ai fréquentés durant ma thèse, plus particulièrement Annie, Maïté, Jacques, Lionel, Isabelle F., Isa, Gaëlle, qui par leur bonne humeur et leur gentillesse m'ont permis de mener à bien ce travail.

Merci à tous les autres pour votre amitié, votre présence et votre simplicité : Nuno, Mathieu, Jean Pierre, Florent, Christophe L., Oliver L., Armand, Olivier P., Michèle, Jean Luc, Guy, Alexandre, Hugo, Alain, Camille, Isabelle A., Mariette, Séverine, Sylvie, ...

Enfin, je voudrais remercier toutes les personnes qui ont du me supporter durant ces trois années et plus particulièrement mes parents, ma grand-mère, mon frère et Carole, Jean et Bernadette, Alain et Jacqueline, Jacques et Ginette, Marie Sandrine, Cathy, Diane, Vince, Odile, Fabrice, Claire T., Claire S., et tous mes amis.

Résumé

Ce mémoire concerne la modélisation thermique et dynamique d'un procédé de combustion/vitrification de déchets radioactifs simulés par plasma d'arc transféré.

L'auteur présente les procédés de confinement des déchets radioactifs utilisant les plasmas d'arc et les différents logiciels pouvant servir à leur modélisation.

On trouve ensuite une description du dispositif expérimental reposant sur un four à arc électrique assisté d'un système à induction assurant l'homogénéisation du bain de verre. Un essai de combustion/vitrification de déchets est présenté accompagné des bilans matière et thermiques. Les champs de température dans l'arc et la conductivité thermique de la fritte de verre sont mesurés.

Enfin, l'auteur décrit et explicite les équations résolues lors de la simulation de l'arc électrique et de la fonte de verre intégrant la notion d'autocreuset. Les résultats de simulation sont présentés sous forme de distribution spatiale de température, de vitesse, de puissance volumique, ...

Abstract

This thesis is concerned with the thermal and dynamic modelling for a combustion/vitrification process of surrogate radioactive waste under transferred arc plasma.

The confinement processes for radioactive waste using arc plasma and the different software used to model these processes are presented.

This is followed by a description of the experimental set-up including a plasma arc reactor and an inductive system allowing the homogenisation of glass temperature. A combustion/vitrification test is described. Energy and material balances are discussed. The temperature fields of plasma arc and the glass frit thermal conductivity are measured.

Finally, the writer describes and clarifies the equations solved for the simulations of the electrical arc and the glass melting including the thin layer of glass frit coating the crucible cold walls. The modelling results are presented in the form of spatial distribution of temperature, velocity and volumic power ...

Sommaire

<u>Liste des figures</u>	11
<u>Liste des tableaux</u>	14
<u>Nomenclature relative au diagnostic spectroscopique du plasma</u>	15
<u>Nomenclature relative à la mesure de la conductivité thermique</u>	16
<u>Nomenclature relative à la modélisation</u>	17
<u>INTRODUCTION</u>	20
<u>I- LA SITUATION</u>	24
<u>I- 1- Préambule</u>	24
<u>I- 2- Les déchets radioactifs</u>	24
<u>I- 2- 1- La radioactivité</u>	24
<u>I- 2- 1- 1- Définition de la radioactivité</u>	24
<u>I- 2- 1- 2- Origine de l'exposition aux rayonnements ionisants</u>	25
<u>I- 2- 1- 3- Les dangers de la radioactivité</u>	26
<u>I- 2- 2- Classification et gestion des déchets nucléaires</u>	26
<u>I- 2- 3- Le conditionnement de la radioactivité par la vitrification</u>	27
<u>I- 2- 4- Les déchets radioactifs concernés par cette étude</u>	30
<u>I- 2- 5- L'incinération</u>	30
<u>I- 2- 5- 1- Préambule</u>	30
<u>I- 2- 5- 2- Contraintes de l'incinération</u>	31
<u>I- 3- Les plasmas d'arc</u>	32
<u>I- 3- 1- Définition</u>	32
<u>I- 3- 2- Propriétés des plasmas thermiques</u>	32
<u>I- 3- 3- Applications de la technologie plasma au traitement des déchets</u>	34
<u>I- 3- 3- 1- Quels types de déchets visés?</u>	34
<u>I- 3- 3- 2- Les inconvénients</u>	34
<u>I- 3- 3- 3- Les avantages</u>	35
<u>I- 4- Le traitement des déchets radioactifs par plasma d'arc</u>	36
<u>I- 4- 1- Au Japon</u>	36
<u>I- 4- 1- 1- Au CRIEPI</u>	36
<u>I- 4- 1- 2- Au JAERI</u>	38

<u>I - 4 - 1 - 3 -</u>	<u><i>A la Japan Atomic Power Company</i></u>	38
<u>I - 4 - 2 -</u>	<u><i>A Taiwan</i></u>	39
<u>I - 4 - 3 -</u>	<u><i>En Corée du Sud</i></u>	41
<u>I - 4 - 4 -</u>	<u><i>En Russie</i></u>	41
<u>I - 4 - 5 -</u>	<u><i>En Suisse</i></u>	42
<u>I - 4 - 6 -</u>	<u><i>En France</i></u>	44
<u>I - 4 - 6 - 1 -</u>	<u><i>Sur le site de Cadarache</i></u>	44
<u>I - 4 - 6 - 2 -</u>	<u><i>Sur le site de Marcoule</i></u>	45
<u>I - 4 - 6 - 2 - 1 -</u>	<u><i>Le procédé IRIS</i></u>	45
<u>I - 4 - 6 - 2 - 2 -</u>	<u><i>Le procédé SHIVA</i></u>	46
<u>I - 5 -</u>	<u>La modélisation au service du développement de procédés</u>	49
<u>I - 5 - 1 -</u>	<u><i>Préambule</i></u>	49
<u>I - 5 - 2 -</u>	<u><i>Quel logiciel choisir ?</i></u>	51
<u>I - 5 - 2 - 1 -</u>	<u><i>Etude bibliographique</i></u>	51
<u>I - 5 - 2 - 1 - 1 -</u>	<u><i>Modélisation de l'arc électrique en 3D</i></u>	51
<u>I - 5 - 2 - 1 - 2 -</u>	<u><i>Modélisation de procédés</i></u>	53
<u>I - 5 - 2 - 1 - 3 -</u>	<u><i>Conclusions sur l'étude bibliographie</i></u>	57
<u>I - 5 - 2 - 2 -</u>	<u><i>Le code de calcul retenu pour notre étude</i></u>	57
<u>II -</u>	<u>DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET METHODES</u>	59
<u>II - 1 -</u>	<u>Le pilote</u>	59
<u>II - 1 - 1 -</u>	<u><i>Le chauffage par induction</i></u>	59
<u>II - 1 - 1 - 1 -</u>	<u><i>Le générateur à haute fréquence</i></u>	59
<u>II - 1 - 1 - 2 -</u>	<u><i>Le coffret d'adaptation d'impédance</i></u>	61
<u>II - 1 - 1 - 3 -</u>	<u><i>La ligne d'induction et l'inducteur</i></u>	61
<u>II - 1 - 2 -</u>	<u><i>Le système plasma</i></u>	61
<u>II - 1 - 2 - 1 -</u>	<u><i>La cathode</i></u>	62
<u>II - 1 - 2 - 2 -</u>	<u><i>L'anode</i></u>	62
<u>II - 1 - 2 - 3 -</u>	<u><i>Le système d'amorçage de l'arc</i></u>	63
<u>II - 1 - 2 - 4 -</u>	<u><i>Le générateur de courant continu</i></u>	63
<u>II - 1 - 3 -</u>	<u><i>Le four</i></u>	64
<u>II - 1 - 3 - 1 -</u>	<u><i>Les parois et la voûte</i></u>	64
<u>II - 1 - 3 - 2 -</u>	<u><i>Le creuset et la sole</i></u>	64
<u>II - 1 - 3 - 3 -</u>	<u><i>L'alimentation en déchets</i></u>	64
<u>II - 1 - 4 -</u>	<u><i>Le traitement des fumées</i></u>	65

<u>II - 1 - 4 - 1 - La dilution</u>	65
<u>II - 1 - 4 - 2 - La filtration</u>	65
<u>II - 1 - 4 - 3 - La colonne de lavage</u>	65
<u>II - 1 - 5 - Le système de refroidissement</u>	66
<u>II - 2 - Description d'un essai de combustion/vitrification</u>	66
<u>II - 2 - 1 - Préambule</u>	67
<u>II - 2 - 2 - Composition du verre utilisé</u>	67
<u>II - 2 - 3 - Composition et mode d'injection du déchet</u>	68
<u>II - 2 - 4 - Initialisation des débits gazeux et positionnement des torches</u>	68
<u>II - 2 - 5 - Déroulement de l'essai</u>	68
<u>II - 2 - 6 - Bilans matières</u>	72
<u>II - 2 - 6 - 1 - Etude du verre</u>	72
<u>II - 2 - 6 - 1 - 1 - Analyse macroscopique</u>	72
<u>II - 2 - 6 - 1 - 2 - Analyses physico-chimiques du verre</u>	73
<u>II - 2 - 6 - 2 - Bilans matières</u>	75
<u>II - 2 - 6 - 2 - 1 - Bilan matière du cobalt</u>	76
<u>II - 2 - 6 - 2 - 2 - Bilan matière du césium</u>	77
<u>II - 2 - 6 - 2 - 3 - Bilan matière du nickel</u>	77
<u>II - 2 - 6 - 2 - 4 - Bilan matières global</u>	78
<u>II - 2 - 7 - Bilans thermiques</u>	81
<u>II - 3 - Diagnostic spectroscopique du plasma</u>	85
<u>II - 3 - 1 - Préambule</u>	85
<u>II - 3 - 2 - Le dispositif expérimental</u>	86
<u>II - 3 - 2 - 1 - La chaîne de mesure du rayonnement du plasma</u>	86
<u>II - 3 - 2 - 2 - Le montage optique</u>	86
<u>II - 3 - 2 - 3 - Le monochromateur</u>	88
<u>II - 3 - 2 - 4 - La caméra CCD</u>	89
<u>II - 3 - 2 - 5 - Etalonnage en longueur d'onde et en énergie</u>	90
<u>II - 3 - 3 - Méthode de diagnostic</u>	90
<u>II - 3 - 3 - 1 - La grandeur mesurée</u>	90
<u>II - 3 - 3 - 2 - Emission du rayonnement en volume</u>	91
<u>II - 3 - 4 - Le modèle</u>	93
<u>II - 3 - 4 - 1 - L'équilibre thermodynamique local</u>	93
<u>II - 3 - 5 - La méthode de traitement</u>	96
<u>II - 4 - Mesure de la conductivité thermique de la fritte de verre</u>	103

<u>II - 4 - 1 -</u>	<u>Préambule</u>	103
<u>II - 4 - 2 -</u>	<u>Méthode choisie</u>	104
<u>II - 4 - 3 -</u>	<u>Identification des paramètres</u>	105
<u>II - 4 - 3 - 1 -</u>	<u>Méthode 1</u>	106
<u>II - 4 - 3 - 2 -</u>	<u>Méthode 2</u>	106
<u>II - 4 - 3 - 3 -</u>	<u>Méthode 3</u>	106
<u>II - 4 - 3 - 4 -</u>	<u>Méthode 4</u>	107
<u>II - 4 - 3 - 5 -</u>	<u>Méthode 5</u>	108
<u>II - 4 - 4 -</u>	<u>Application à la fritte de verre R7/T7</u>	108
<u>II - 4 - 4 - 1 -</u>	<u>Conclusion</u>	110
<u>III -</u>	<u>MODÉLISATION DU FOUR SHIVA</u>	111
<u>III - 1 -</u>	<u>Modélisation de l'arc électrique</u>	114
<u>III - 1 - 1 -</u>	<u>Préambule</u>	114
<u>III - 1 - 2 -</u>	<u>Equation de l'électromagnétisme</u>	116
<u>III - 1 - 2 - 1 -</u>	<u>Equations sur les champs électromagnétiques</u>	117
<u>III - 1 - 2 - 2 -</u>	<u>Equations sur les potentiels</u>	119
<u>III - 1 - 2 - 2 - 1 -</u>	<u>Le potentiel électrique Φ</u>	120
<u>III - 1 - 2 - 2 - 2 -</u>	<u>Le potentiel vecteur \vec{A}</u>	120
<u>III - 1 - 3 -</u>	<u>Equations de la dynamique et de la thermique du domaine plasma</u> ..	121
<u>III - 1 - 4 -</u>	<u>Equations du transport des fractions massiques</u>	123
<u>III - 1 - 5 -</u>	<u>Propriétés thermophysiques du plasma</u>	124
<u>III - 1 - 5 - 1 -</u>	<u>Calcul de la température du gaz plasmagène</u>	124
<u>III - 1 - 5 - 2 -</u>	<u>Calcul de la masse volumique du gaz plasmagène</u>	125
<u>III - 1 - 5 - 3 -</u>	<u>Calcul de la viscosité du gaz plasmagène</u>	125
<u>III - 1 - 5 - 4 -</u>	<u>Calcul de la conductivité thermique du gaz plasmagène</u>	126
<u>III - 1 - 5 - 5 -</u>	<u>Calcul de la conductivité électrique du gaz plasmagène</u>	127
<u>III - 1 - 6 -</u>	<u>Géométrie et maillage du domaine plasma</u>	128
<u>III - 1 - 7 -</u>	<u>Conditions aux limites pour domaine plasma</u>	131
<u>III - 1 - 8 -</u>	<u>Initialisation des calculs</u>	134
<u>III - 1 - 9 -</u>	<u>Résultats de la simulation du domaine plasma</u>	135
<u>III - 1 - 9 - 1 -</u>	<u>Champ de température</u>	135
<u>III - 1 - 9 - 2 -</u>	<u>Champ de vitesse</u>	138
<u>III - 1 - 9 - 3 -</u>	<u>Fraction massique en oxygène</u>	140

<u>III - 1 - 9 - 4 - Grandeurs électromagnétiques</u>	141
<u>III - 1 - 9 - 5 - Géométrie de l'arc électrique</u>	144
<u>III - 1 - 10 - Conclusions</u>	146
<u>III - 2 - Modélisation du domaine bain de verre</u>	147
<u>III - 2 - 1 - Les équations de l'électromagnétisme</u>	148
<u>III - 2 - 2 - Les équations de la dynamique et de la thermique dans le domaine verre</u>	149
<u>III - 2 - 3 - Propriétés thermophysiques du verre</u>	149
<u>III - 2 - 3 - 1 - La masse volumique</u>	150
<u>III - 2 - 3 - 2 - La conductivité thermique</u>	150
<u>III - 2 - 3 - 3 - La conductivité électrique</u>	151
<u>III - 2 - 3 - 4 - La viscosité dynamique</u>	152
<u>III - 2 - 3 - 5 - Propriétés physiques de la fritte de verre</u>	152
<u>III - 2 - 4 - Géométrie et maillage du domaine verre</u>	153
<u>III - 2 - 5 - Conditions aux limites pour le domaine verre</u>	154
<u>III - 2 - 6 - Initialisation des calculs</u>	155
<u>III - 2 - 7 - Résultats de modélisation dans le domaine verre</u>	156
<u>III - 2 - 7 - 1 - Test 1</u>	158
<u>III - 2 - 7 - 1 - 1 - Champ de vitesse</u>	158
<u>III - 2 - 7 - 1 - 2 - Champ de température</u>	160
<u>III - 2 - 7 - 1 - 3 - Apport énergétique par effet Joule</u>	162
<u>III - 2 - 7 - 1 - 4 - Géométrie 3D du lingot de verre obtenu</u>	163
<u>III - 2 - 7 - 2 - Test 2</u>	164
<u>III - 2 - 7 - 2 - 1 - Champ de vitesse</u>	164
<u>III - 2 - 7 - 2 - 2 - Champ de température</u>	165
<u>III - 2 - 7 - 2 - 3 - Apport énergétique par effet Joule</u>	166
<u>III - 2 - 7 - 2 - 4 - Géométrie 3D du lingot de verre</u>	167
<u>III - 2 - 7 - 3 - Test 3</u>	168
<u>III - 2 - 7 - 3 - 1 - Champ de vitesse</u>	168
<u>III - 2 - 7 - 3 - 2 - Champ de température</u>	170
<u>III - 2 - 7 - 3 - 3 - Apport énergétique par effet Joule</u>	171
<u>III - 2 - 7 - 3 - 4 - Géométrie 3D du lingot de verre fondu</u>	172
<u>III - 2 - 7 - 4 - Test 4</u>	172
<u>III - 2 - 8 - Conclusions</u>	174
<u>CONCLUSION GÉNÉRALE</u>	176
<u>Références bibliographiques</u>	178

Liste des figures

Figure I-1 : Origines de la radioactivité	25
Figure I-2 : Evolution d'un mélange gazeux argon/oxygène (20/80 en volume) en fonction de la température et à pression atmosphérique	33
Figure I-3 : le procédé de traitement des déchets radioactifs du CRIEPI	36
Figure I-4 : Taux de partage en fonction des pressions de vapeur des radioéléments	37
Figure I-5 : Taux de lixiviation en Sr du laitier	37
Figure I-6 : Procédé hybride –arc et induction - du JAERI	38
Figure I-7 : Installation de Japan Atomic Power Company	39
Figure I-8 : Four de traitement des déchets radioactifs de très faible activité (INER)	40
Figure I-9 : Synoptique de fonctionnement du procédé INER	40
Figure I-10 : Le four de fusion de Korea Hydro & Nuclear Power Co	41
Figure I-11 : Le procédé RADON	42
Figure I-12 : Schéma de l'atelier de ZWILAG	43
Figure I-13 : Le four de ZWILAG	43
Figure I-14 : Le procédé IRIS intégrant une postcombustion plasma	46
Figure I-15 : Les différentes évolutions du four à plasma	48
Figure I-16 : Eclatement d'un arc électrique triphasé entre 3 électrodes	53
Figure II-1 : Synoptique d'ensemble de l'installation SHIVA	60
Figure II-2 : Photographie des torches jumelées bipolaires	62
Figure II-3 : Photographie de la cathode associée à ses manchons	62
Figure II-4 : Photographie de l'anode associée à ses manchons	62
Figure II-5 : Illustration de l'amorçage de l'arc	63
Figure II-6 : Mesure instantanée de la température du verre	69
Figure II-7 : Paramètres électriques de l'arc	71
Figure II-8 : Paramètres électriques du générateur d'induction	71
Figure II-9 : Photographie d'une coupe verticale du bloc de verre présentant l'autocreuset	72
Figure II-10 : Localisation des prises d'échantillons dans le creuset	72
Figure II-11 : Photographie au MEB des inclusions	75
Figure II-12 : Répartition du cobalt dans l'installation	76
Figure II-13 : Répartition du césium dans l'installation	77
Figure II-14 : Répartition du nickel dans l'installation	78
Figure II-15 : Répartition des éléments constituant la matrice de verre dans l'installation	80
Figure II-16 : Répartition des traceurs ajoutés au déchet dans l'installation	80
Figure II-17 : Pertes thermiques dans les circuits de refroidissement de l'installation (1)	82
Figure II-18 : Pertes thermiques dans les circuits de refroidissement de l'installation (2)	83
Figure II-19 : Puissance fournie par le plasma	83
Figure II-20 : Schéma du dispositif de diagnostic spectroscopique	86

Figure II-21 : Description du dispositif de diagnostic spectroscopique	87
Figure II-22 : Photographie du montage optique	88
Figure II-23 : Système d'axes utilisés	92
Figure II-24 : Evolution des coefficients d'émission volumique des raies de Ar et Ar⁺	101
Figure II-25 : Détermination de la température en un point	102
Figure II-26 : Profils de température à l'altitude $z = 32$ mm	102
Figure II-27 : Banc de mesure de la conductivité thermique de fritte de verre	105
Figure III-1 : Représentation des zones de calculs	113
Figure III-2 : Evolution de l'enthalpie massique ($J.kg^{-1}$) en fonction de la température	124
Figure III-3 : Evolution de la masse volumique des gaz purs en fonction de la température	125
Figure III-4 : Evolution de la viscosité des gaz purs en fonction de la température	126
Figure III-5 : Evolution de la conductivité thermique des gaz purs en fonction de la température	127
Figure III-6 : Evolution de la conductivité électrique des gaz purs en fonction de la température	128
Figure III-7 : Maillage 3D du domaine plasma	129
Figure III-8 : Visualisation du maillage de la torche anode (vue de dessous)	129
Figure III-9 : Observation du maillage dans le plan (X_m)	130
Figure III-10 : Zoom sur le maillage des deux électrodes	130
Figure III-11 : Détail de l'injection des gaz plasmagènes du côté anode	132
Figure III-12 : Détail de l'injection des gaz plasmagènes du côté cathode	132
Figure III-13 : Champ de température pour le domaine plasma dans le plan (X_m)	135
Figure III-14 : Représentation des isothermes rencontrées dans le plasma entre 6 000 °C et 18 000 °C dans le plan (X_m)	136
Figure III-15 : Distribution spatiale de la température du plasma ($T_0(x, z)$ en K) dans le plan (X_m)	137
Figure III-16 : Densité de puissance ($W.m^{-3}$) due à l'effet Joule dans le plan (X_m)	138
Figure III-17 : Champ de vitesse ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m)	139
Figure III-18 : Norme de la vitesse à proximité de l'arc électrique ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m)	139
Figure III-19 : Fraction massique d'oxygène ($kg.kg^{-1}$) dans le plan (X_m)	140
Figure III-20 : Evolution du potentiel électrique (Volts) dans le plan (X_m)	141
Figure III-21 : Norme de la densité de courant ($A.m^{-2}$) dans le plan (X_m)	142
Figure III-22 : Norme des forces de Laplace ($W.m^{-3}$) dans le plan (X_m)	142
Figure III-23 : Norme du champ magnétique (Tesla) dans le plan (X_m)	143
Figure III-24 : Représentation des vecteurs du champ magnétique (Tesla) dans le plan (X_m)	144
Figure III-25 : Isotempérature 3D à 9 000 °C colorée par le potentiel électrique (Volt)	145
Figure III-26 : Isotempérature 3D à 9 000 °C colorée par le potentiel électrique (Volt) et gainée par le champ magnétique (Tesla)	145
Figure III-27 : Photographies de l'arc à des instants différents	146
Figure III-28 : Evolution de la conductivité thermique du verre R7/T7 en fonction de la température	150
Figure III-29 : Evolution de la conductivité électrique en fonction de la température	151
Figure III-30 : Evolution de la viscosité dynamique du verre en fonction de la température	152
Figure III-31 : Maillage 3D du domaine verre (creuset de 600 mm de diamètre)	153

Figure III-32 : Vue d'une coupe verticale passant par le plan (X_m)	154
Figure III-33 : Répartition des flux thermiques à la surface du bain de verre	157
Figure III-34 : Champ de vitesse ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m) pour le test 1	159
Figure III-35 : Champ de vitesses ($m.s^{-1}$) dans le plan (Y_m) pour le test 1	160
Figure III-36 : Lignes d'isovitesse dans le plan (X_m) pour le test 1	160
Figure III-37 : Champ de température ($^{\circ}C$) dans le plan (X_m) pour le test 1	161
Figure III-38 : Champ de température ($^{\circ}C$) en surface du bain de verre pour le test 1	162
Figure III-39 : Evolution de la puissance volumique ($W.m^{-3}$) dans le plan (X_m) pour le test 1	163
Figure III-40 : Iso-masse volumique à $2\ 600\ kg.m^{-3}$ colorée par la température pour le test 1	163
Figure III-41 : Champ de vitesse ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m) pour le test 2	164
Figure III-42 : Lignes d'isovitesse ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m) pour le test 2	165
Figure III-43 : Champ de température ($^{\circ}C$) dans le plan (X_m) pour le test 2	166
Figure III-44 : Isothermes ($^{\circ}C$) dans le plan (X_m) pour le test 2	166
Figure III-45 : Evolution de la puissance volumique ($W.m^{-3}$) dans le plan (X_m) pour le test 2	167
Figure III-46 : Iso-masse volumique à $2600\ kg.m^{-3}$ colorée par la température ($^{\circ}C$) pour le test 2	168
Figure III-47 : Champ de vitesse ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m) pour le test 3	169
Figure III-48 : Lignes d'isovitesse ($m.s^{-1}$) dans le plan (X_m) pour le test 3	169
Figure III-49 : Champ de température ($^{\circ}C$) dans le plan (X_m) pour le test 3	170
Figure III-50 : Isothermes ($^{\circ}C$) dans le plan (X_m) pour le test 3	171
Figure III-51 : Evolution de la puissance volumique ($W.m^{-3}$) dans le plan (X_m) pour le test 3	171
Figure III-52 : Iso-masse volumique à $2\ 600\ kg.m^{-3}$ colorée par la température ($^{\circ}C$) pour le test 3	172
Figure III-53 : Champ de température ($^{\circ}C$) dans le plan (X_m) pour le test 4	173
Figure III-54 : Iso-masse volumique à $2\ 600\ kg.m^{-3}$ colorée par la température ($^{\circ}C$) pour le test 4	173

Liste des tableaux

Tableau I-1 : Classement des déchets nucléaires en France, origine et volumes	27
Tableau I-2 : Composition élémentaire du verre R7/T7 (teneur massique en oxydes)	29
Tableau I-3 : Composition du verre R7/T7 actif	29
Tableau I-4 : Composition moyenne des déchets traités à SWILAG	44
Tableau II-1 : Composition massique de la fritte de verre	67
Tableau II-2 : Taux de charges minérales du déchet (g.kg⁻¹ de résines humides à 50%)	68
Tableau II-3 : Composition élémentaire en composés organiques du déchets (en % massique)	68
Tableau II-4 : Analyse élémentaire (% massique) des échantillons de verre	75
Tableau II-5 : Répartition des principaux éléments dans l'installation	79
Tableau II-6 : Répartition des dissipations thermiques sur l'installation	81
Tableau II-7 : Caractéristiques des raies spectrales considérées	100
Tableau II-8 : Relevé de température sur le banc d'essais de mesure de la conductivité thermique de la fritte de verre R7/T7	108
Tableau III-1 : Vitesses et débits d'injection des gaz plasmagènes pour rapport Ar/O₂ (20/80 en volumique)	132
Tableau III-2 : Flux thermiques imposés comme condition à la limite sur la surface "verre"	157

Nomenclature relative au diagnostic spectroscopique du plasma

Lettre romaines

A_e : probabilité de transition (s^{-1})

$B(v, T)$: puissance émise ($W.m^{-2}.s^{-1}.sr^{-1}$)

E_i : énergie du niveau atomique i (cm^{-1})

I : intensité spécifique d'une raie spectrale ($W.m^{-2}.sr^{-1}$)

$\langle I_{Sw} \rangle$: intensité moyenne d'une raie spectrale pour une loi de distribution en "dent de scie"
($W.m^{-2}.sr^{-1}$)

$k(\lambda, r)$: coefficient d'absorption (m^{-1})

m : masse des particules (kg)

P_{ray} : puissance de rayonnement du plasma (W)

\vec{r} : direction de visée (m)

S : surface du système optique (m^2)

$T(x,0)$: température du plasma dans un plan de symétrie (K)

v : vitesses des particules ($m.s^{-1}$)

Lettres grecques

Ψ_{Sw} : fonction de distribution de probabilité de type "dent de scie"

$\varepsilon(r)$: coefficient d'émission volumique ($W.m^{-3}.sr^{-1}$)

$\varepsilon(\lambda, r)$: coefficient d'émission volumique par unité de longueur d'onde ($W.m^{-3}.sr^{-1}.m^{-1}$)

λ : longueur d'onde (nm)

ν : fréquence du rayonnement (Hz)

Nombres sans dimension

g_a : poids statistique du niveau d'absorption

g_e : poids statistique du niveau d'émission

N : nombre total de particules de l'espèce considérée

N_a : densité locale du niveau d'absorption

N_e : densité locale du niveau d'émission

$P_a(r, \lambda)$: profil d'absorption normalisé

$P_e(r, \lambda)$: profil d'émission normalisé

$Q(T)$: fonction de partition interne

Constantes

c : vitesse de la lumière ($2,99 \cdot 10^8 \text{ m.s}^{-1}$)

h : constante de Planck ($6,6255 \cdot 10^{-34} \text{ J.K}^{-1}$)

k : constante de Boltzmann ($1,3807 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$)

Nomenclature relative à la mesure de la conductivité thermique

Lettre romaines

e : épaisseur du matériau (m)

S : surface de passage (m^2)

T : température en différents points de mesure ($^{\circ}\text{C}$)

T_e : température de l'eau en entrée du système de refroidissement ($^{\circ}\text{C}$)

z : altitude du point de mesure (m)

Lettres grecques

λ : conductivité thermique ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

φ : densité de flux de chaleur (W.m^{-1})

Φ : flux de chaleur (W)

Nomenclature relative à la modélisation

Lettres romaines

- \vec{A} : potentiel vecteur
 \vec{B} : champ magnétique (Tesla)
 B_θ : composante azimutale du champ magnétique (T)
 B_c : champ magnétique caractéristique du plasma (T)
 c : vitesse du son (m.s^{-1})
 C_p : chaleur massique à pression constante ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)
 D_t : diffusivité thermique ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
 D_i : coefficient de diffusion de l'espèce i ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
 \vec{E} : champ électrique (V.m^{-1})
 e_p : épaisseur paroi (m)
 \vec{F}_{Laplace} : forces électromagnétiques (N.m^{-3})
 \vec{g} : champ de gravité ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
 h : enthalpie massique (J.kg^{-1})
 h_i : enthalpie massique de l'espèce i (J.kg^{-1})
 h_f : coefficient d'échange fluide-paroi ($\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$)
 \vec{J} : densité de courant (A.m^{-2})
 J_z : composante axiale de la densité de courant (A.m^{-2})
 L_c : longueur caractéristique du milieu (m)
 M_i : masse molaire (g.mol^{-1})
 n_β : densité de l'espèce lourde β (m^{-3})
 n_e : densité électronique (m^{-3})
 P : pression (Pa)
 $Q_{e\beta}$: section efficace de collision (m^2)
 r_{arc} : rayon caractéristique de l'arc électrique (m)
 S : section de passage (m^2)
 S_{rad} : puissance radiative (W.m^{-3})
 t_c : temps caractéristique de l'arc électrique (s)
 T : température ($^\circ\text{C}$ ou K)
 T_{ext} : température extérieure à la paroi ($^\circ\text{C}$)

T_f : température du fluide (gaz plasmagène) ($^{\circ}\text{C}$)

\vec{u} : vitesse instantanée (m.s^{-1})

U_c : vitesse caractéristique du milieu (m.s^{-1})

\vec{V} : champ de vitesses (m.s^{-1})

X_i : fraction massique de l'espèce i (kg.kg^{-1})

X_{ar} : fraction massique de l'argon (kg.kg^{-1})

Y_i : fraction molaire de l'espèce i (mol.mol^{-1})

Y_{ar} : fraction molaire de l'argon (mol.mol^{-1})

Lettres grecques

α et β : indices relatifs aux volumes de contrôle d'un maillage

λ_D : longueur de Debye (m)

λ_e : libre parcours électronique (m)

λ_f : conductivité thermique moléculaire du milieu ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

μ : viscosité dynamique moléculaire ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$)

ω_e : fréquence de Larmor (Hz)

ω_p : fréquence des oscillations du plasma (Hz)

ρ : masse volumique (kg.m^{-3})

ρ_v : densité de charge volumique (C.m^{-3})

φ : densité de flux de chaleur (W.m^{-2})

σ : conductivité électrique (S.m^{-1})

Φ : potentiel électrique (V)

Φ_f : quantité de chaleur (W)

σ_c : conductivité électrique relative à l'arc électrique (S.m^{-1})

$\vec{\tau}$: tenseur des contraintes visqueuses (Pa)

$\nu_{e\beta}$: fréquence moyenne de collision électronique (Hz)

Nombres sans dimension

F_o : nombre de Fourier

Gr : nombre de Grashof

S_c : nombre de Schmidt

β_e : paramètre de Hall

L_e : nombre de Lewis

M : nombre de Mach

\vec{n} : normale unitaire d'un élément de surface

Re : nombre de Reynolds

\mathfrak{R}_{mag} : nombre de Reynolds magnétique

$\mathfrak{R}\omega$: paramètre d'écran

Constantes :

e : charge de l'électron ($1,602 \cdot 10^{-19}$ C)

ϵ_0 : permittivité du vide ($8,854 \cdot 10^{-12}$ F.m⁻¹)

h : constante de Planck ($6,6255 \cdot 10^{-34}$ J.K⁻¹)

k_B : constante de Boltzmann ($1,3807 \cdot 10^{-23}$ J.K⁻¹)

m_e : masse de l'électron ($9,1 \cdot 10^{-31}$ kg)

μ_0 : perméabilité du vide ($4\pi 10^{-7}$ H.m⁻¹)

R : constante des gaz parfaits ($8,31$ J.kg⁻¹.mol⁻¹)

σ_s : constante de Stefan-Boltzmann ($5,6703 \cdot 10^{-8}$ W.m⁻².K⁻⁴)

INTRODUCTION

La production d'énergie par la mise en œuvre des réactions nucléaires est l'une des innovations les plus marquantes du 20^{ème} siècle. Les chercheurs et les techniciens ont été remarquablement prudents dans la conception, la réalisation et l'exploitation des usines de production : la sûreté nucléaire a été suivie dans notre pays avec la plus grande attention.

La production d'électricité nucléaire engendre des déchets dits radioactifs qui peuvent être sous forme solide, liquide ou gazeuse. L'Agence de l'Energie Nucléaire de l'OCDE en donne pour définition : "toute matière contenant des radionucléides en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans les matériaux propres à une utilisation sans contrôle et pour laquelle aucun usage n'est prévu". Cette définition renvoie à deux idées : celle de nocivité qui nécessite un contrôle et celle d'absence d'usage. Cette seconde notion est sujette à variation et renvoie à des critères essentiellement économiques qui tiennent compte par exemple de la situation énergétique. C'est par exemple le cas du plutonium qui est considéré comme une matière nucléaire précieuse dans un contexte de développement fort du nucléaire, ou au contraire comme un simple déchet lorsqu'on envisage, comme c'est le cas aujourd'hui aux Etats-Unis, de le laisser dans les combustibles usés pour être stocké définitivement en couches géologiques profondes.

Toutefois le problème du traitement et du stockage des déchets est souvent perçu comme le tendon d'Achille de l'industrie nucléaire /JOUAN A., 2001/. Pour 90 % des déchets radioactifs (faible et moyenne activité), il existe déjà des solutions : enrobage dans différentes matrices (bitume, ciment). Cependant la solution n'est pas unique : le principe de précaution est pour l'instant appliqué pour les déchets de haute activité afin qu'un choix d'avenir puisse être fait, sans hâte pernicieuse, entre les diverses voies possibles. Et éviter les excès de la hâte ne signifie nullement se reposer sur un moratoire inconsidérément prolongé /CURIEN H., 1997/: il en va de la crédibilité des promoteurs et des exploitants de l'énergie nucléaire.

Le volume des déchets nucléaires cumulés depuis plus de 40 ans en France, s'il n'est que de 3 000 m³ pour les déchets haute activité, dits de catégorie C, est de 80 000 m³ pour les déchets de moyenne activité à vie longue MAVL, dits de catégorie B et atteint 900 000 m³ pour les déchets de faible et très faible activité, FA et TFA, dits de catégorie A.

Si pour les déchets C, que sont les produits de fission, la solution existe et est éprouvée - le procédé de vitrification développé par CEA/.../SCD est exploité industriellement depuis plus de vingt cinq ans dans les ateliers de Marcoule puis de l'usine de

La Hague -, il importe pour les déchets B et A, qui doivent être entreposés en surface ou en subsurface, de développer des procédés de réduction de volume et de conditionnement performants et sûrs.

Diverses filières sont opérationnelles depuis des décennies ; et plus récemment l'usine CENTRACO/SOCODEI sur le site de MARCOULE traite les déchets TFA : les déchets métalliques sont fondus par induction et l'incinération des déchets combustibles est effectuée dans un four "conventionnel".

Pour les déchets MAVL, plus précisément pour les déchets incinérables, les procédés actuels permettent leur traitement en deux étapes et conduisent à une fraction minérale. Les nouveaux procédés développés permettent non seulement de brûler la fraction organique mais aussi, et simultanément, de vitrifier la fraction minérale.

Depuis une dizaine d'année, le CEA/.../SCDV/LPIC développe un procédé original d'incinération/vitrification - SHIVA pour Système Hybride d'Incinération Vitrification Avancé - qui conjugue plusieurs avantages. Il est fondé sur un four à paroi froide – de type water-jacket – fonctionnant en auto-creuset : on évite ainsi la contamination progressive de l'appareil et on facilite son inspection. L'oxygène nécessaire à la combustion est chauffé in situ par un arc électrique transféré entre deux électrodes, soit directement, soit par passage au travers du bain de verre générant un échauffement par effet joule. La température élevée et la forte concentration d'espèces activées permettent des vitesses de réaction très rapides. Plus récemment un dispositif d'homogénéisation et de contrôle de la température du bain de verre par induction a été ajouté. Le comburant étant de l'oxygène et non de l'air, la production d'oxydes d'azote et le débit de gaz de procédé sont réduits au strict minimum. L'ensemble du réacteur est des plus compacts.

De très nombreuses données ont été acquises avec ce prototype en évolution permanente. Toutefois ces données étaient essentiellement de nature technique ; alors que l'optimisation du procédé pour sa mise à l'échelle en vue de son industrialisation exige une connaissance plus précise des processus élémentaires. Il nous faut connaître les champs de température et les champs de vitesse pour mieux appréhender la cinétique des phénomènes de transfert. Des poussières, chargées en radioéléments volatils, sont collectées dans les filtres du réacteur : pour les y recycler, il nous faut aussi connaître les zones à plus basse température. La conception d'un four "multizones" exige, si l'on veut économiser la construction de multiples prototypes et donc temps et argent, de disposer d'un modèle complet du réacteur tant de la phase gazeuse chauffée par l'arc électrique que du bain de verre.

Le CEA/DEN/DIEC/SCDV maîtrisait totalement la modélisation du chauffage d'un bain de verre par induction - modélisation 2D ou 2D axisymétrique -. Mais compte tenu de la configuration très particulière du réacteur SHIVA, ne présentant aucune symétrie, et de la géométrie très particulière de l'arc électrique, cet outil ne répondait plus au besoin : un logiciel utilisant un modèle 3D devenait nécessaire tant pour modéliser l'arc électrique transféré que le bain de verre, domaines très différents ne serait-ce que par les vitesses de fluide qui y diffèrent de plus de 5 ordres de grandeur !

Acquérir les données expérimentales nécessaires à la connaissance des transferts de masse et de chaleur dans le réacteur et

adapter un logiciel de modélisation 3D

pour disposer des champs de température, de vitesse tant dans la phase gazeuse que dans le domaine du verre

étaient l'objectif de ce travail.

Dans le premier chapitre de ce mémoire, nous introduisons brièvement, en rapport avec le développement d'un procédé d'incinération/vitrification, la problématique des déchets nucléaires. Après avoir rappelé les propriétés des plasmas thermiques qui font leur intérêt pour le traitement des déchets nucléaires concernés, nous rapportons les avancées connues et récentes de la technique à travers le monde avant de décrire les évolutions des procédés développés au CEA/.../SCDV/LPIC. Nous terminons cette présentation de la situation par la description comparative des techniques de modélisation utilisées récemment pour des processus et procédés connexes.

Dans le deuxième chapitre, après avoir décrit le réacteur et ses auxiliaires, nous rapportons les résultats obtenus concernant l'incinération/vitrification de résines échangeuses d'ions ; nous dressons les bilans matière et énergie en nous attachant à la mesure des taux de partage des radioéléments. Afin d'évaluer les niveaux de températures et leurs distributions spatiales dans les jets de plasmas, nous avons adapté, à la géométrie particulière de l'arc électrique utilisé, une méthode de diagnostic spectroscopique en émission fondée sur le rapport des intensités de raies atomiques de l'argon. Le dispositif expérimental et la méthode sont présentés. Nous devons tenir compte, dans la modélisation de la progression du front de fusion à l'intérieur du verre, des différences des propriétés thermodynamiques et des coefficients de transport entre la fritte de verre et le verre liquide ; nous avons donc dû adapter une méthode pour mesurer la conductivité thermique de la fritte de verre utilisée pour

nos essais. La description du dispositif expérimental, la présentation de la méthode utilisée et les résultats acquis terminent ce chapitre.

Le troisième chapitre est dédié à la modélisation 3D des écoulements et des transferts thermiques dans le four : d'une part modélisation de l'arc, d'autre part modélisation du bain de verre. Les équations sur lesquelles repose le code de calcul sont présentées et discutées pour chacun des deux domaines. Les propriétés thermodynamiques et les coefficients de transport du mélange des gaz plasmagènes sont calculés et présentés. Les artifices utilisés pour accélérer le développement de l'arc ou pour démarrer le chauffage ohmique du verre sont décrits. Enfin les résultats des simulations sont présentés par des distributions spatiales de température, de vitesse, de puissance volumique...et discutés.

I - LA SITUATION

I - 1 - Préambule

A priori, l'industrie nucléaire, comme toute activité industrielle, génère des déchets, c'est-à-dire des matériaux qui n'ont pas d'usage et donc certains peuvent être nocifs. L'ensemble des déchets radioactifs produits en France représente 1 kg par habitant et par an, cette faible quantité est à comparer à 3 100 kg de déchets domestiques et industriels /MARQUE Y., 1992/.

L'impact potentiel qu'ils représentent pour l'environnement, allié à la "peur subjective du nucléaire" née des explosions d'HIROSHIMA et NAGASAKI, entretenue par les accidents de Three Miles Island et de Tchernobyl, fait qu'ils sont sans conteste les déchets les plus étudiés et surveillés.

Suivant leur type de rayonnement émis, les déchets radioactifs sont classés dans différentes catégories. Chaque catégorie bénéficie d'un traitement spécifique : ils peuvent être stockés en surface, enrobés dans différents liants ou pour les plus nocifs, comme les produits de fission conditionnés dans une matrice vitreuse.

Pour assurer un conditionnement de bonne qualité, différents verres nucléaires ont été développés et étudiés et plus particulièrement le verre R7/T7 qui sert de référence à la vitrification des produits de fission.

I - 2 - Les déchets radioactifs

I - 2 - 1 - La radioactivité

I - 2 - 1 - 1 - Définition de la radioactivité

La radioactivité, découverte en 1896 par Henri BECQUEREL, est le phénomène physique spontané par lequel un atome instable se transforme en une structure stable tout en dégageant une forte énergie thermique et en émettant des rayonnements α , β et γ .

- ✓ Le rayonnement α correspond à l'émission d'un noyau d'hélium. Très peu pénétrant, il est arrêté par une feuille de papier ou par les couches superficielles de la peau.
- ✓ Le rayonnement β correspond à l'émission d'électrons (β^-) ou de positons (β^+). Ce rayonnement, à pouvoir de pénétration moyen, est arrêté par une feuille d'aluminium.

- ✓ Le rayonnement γ est constitué de photons de courte longueur d'onde (10^{-10} m à 10^{-14} m). En fonction de son énergie, il peut traverser des épaisseurs plus ou moins importantes de béton ou de plomb.

I - 2 - 1 - 2 - Origine de l'exposition aux rayonnements ionisants

En France, 68% de l'exposition aux rayonnements ionisants est d'origine naturelle.

Elle provient :

- ✓ des rayonnements cosmiques issus des étoiles,
- ✓ des rayonnement telluriques issus des radio-isotopes (et de leurs descendants), contenus dans les roches de l'écorce terrestre. Le gaz radon notamment, que l'on inhale, est un descendant de l'uranium 238,
- ✓ de la radioactivité interne du corps humain.

32% est d'origine artificielle. Elle provient essentiellement des examens médicaux (radiographie, scintillographie, ...), et pour une très faible part de la production d'énergie nucléaire et des essais nucléaires.

La Figure I-1 montre la répartition des origines de la radioactivité selon /HUBERT P., 1993/.

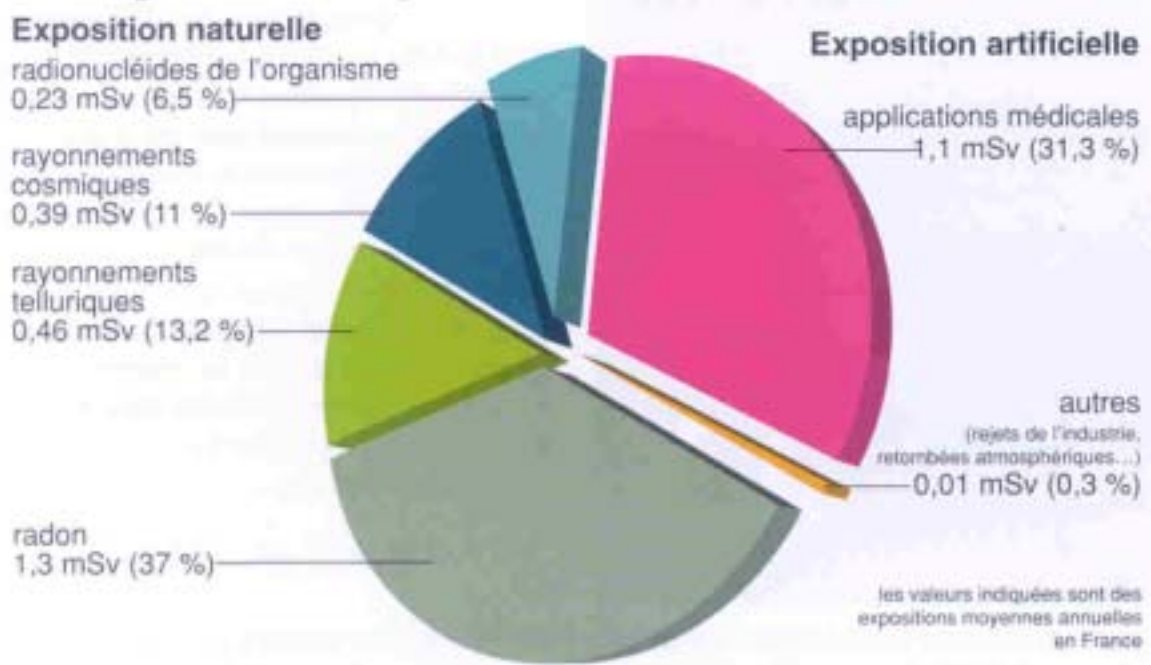


Figure I-1 : Origines de la radioactivité

I - 2 - 1 - 3 - Les dangers de la radioactivité

Les radioéléments émettent des rayonnements ionisants qui peuvent endommager les cellules vivantes. Les dangers sont de deux types :

- ✓ l'irradiation : c'est le fait d'être exposé aux rayonnements ionisants provenant d'une source externe. Les rayonnements les plus pénétrants (β , γ) sont les plus nocifs. On peut s'en protéger en disposant des écrans (béton, plomb) et en s'éloignant de la source.
- ✓ la contamination : la source radioactive est soit déposée sur la peau (contamination externe – il suffit de se laver la peau) soit à l'intérieur de l'organisme (contamination interne par inhalation, ingestion ou transfert). Dans le cas de la contamination interne les émetteurs α , à l'origine de dégâts importants et très localisés sur les tissus corporels, sont les plus nocifs.

I - 2 - 2 - Classification et gestion des déchets nucléaires

Le but de la gestion des déchets est de limiter les risques d'irradiation et surtout de contamination, par retour des radioéléments dans la biosphère, en confinant les radionucléides de manière adaptée, pendant une durée qui convienne au type de déchet.

La gestion des déchets radioactifs repose sur leur classification préalable. Elle est basée sur deux critères :

- ✓ la période (ou demi-vie), qui désigne l'intervalle de temps nécessaire pour qu'un radionucléide perde la moitié de sa radioactivité. On distingue les radioéléments à "vie courte" – période < 30 ans – de ceux à "vie longue" – période > 30 ans –. En outre, un déchet à vie courte, contrairement au déchet à vie longue, ne possède pas (ou plutôt très peu) de radioéléments dont la période est > 30 ans. La période intervient pour la gestion à long terme : plus la période d'un radioélément est longue, plus sa durée de nuisance potentielle est importante. La teneur en émetteurs α , qui sont généralement des radioéléments à vie longue, est particulièrement surveillée.
- ✓ l'activité, qui représente le nombre de désintégrations par unité de temps. L'activité est un facteur essentiel pour la gestion des déchets à court terme – protection des personnes vis-à-vis des rayonnements – et à moyen terme – évacuation de la puissance thermique des colis de déchets –.

La classification des déchets nucléaires français, leurs origines et leurs volumes /JACQUET - FRANCILLON N., 1997/ sont présentés dans le Tableau I-1.

Le volume des déchets C est faible : depuis le début du nucléaire en France, leur volume, une fois vitrifiés représente l'équivalent du contenu d'une piscine olympique. Selon l'estimation qui est faite, leur volume cumulé en 2030 représentera 0,4 % du volume total des déchets radioactifs. Cependant, à eux seuls, ils représentent plus de 90 % de la radioactivité contenue dans les déchets.

Lors de notre étude, nous nous intéresserons uniquement au traitement des déchets entrant dans les catégories A et B (ces derniers sont également communément appelés déchets de Moyenne Activité à Vie Longue : MAVL).

Catégorie	Activité et énergie thermique	Période du déchet	Teneur en émetteurs α	Origine	Volumes cumulés prévus en 2030
A	Faible ou moyenne	≤ 30 ans déchets à vie courte	$\leq 3,7$ GBq/tonne par colis. ≤ 370 MBq/tonne pour l'ensemble des colis admis en stockage	Déchets technologiques des réacteurs, une partie des déchets provenant du retraitement	1 000 000 m ³
B (déchets α)	Moyenne	> 30 ans déchets à vie longue	$> 3,7$ GBq/tonne	Déchets de procédés et certains déchets technologiques lors du retraitement	90 000 m ³
C	Forte	> 30 ans déchets à vie longue	$> 3,7$ GBq/tonne	Combustible déchargé des réacteurs ou verre issus de leur retraitement	4 500 m ³

Tableau I-1 : Classement des déchets nucléaires en France, origine et volumes

I - 2 - 3 - Le conditionnement de la radioactivité par la vitrification

Pour introduire ce paragraphe, je ne peux que reprendre l'article de /JOUAN A., 2001/ qui présente avec élégance et simplicité le traitement des déchets radioactifs.

Concentrer les liqueurs de haute activité et les stocker sous forme liquide dans des cuves même sophistiquées ne pouvait durer qu'un temps. On ne pouvait pas, en effet, prendre le risque de devoir les conserver ainsi des centaines, voire des milliers d'années durant, à l'image de l'échelle de temps de leur décroissance radioactive ; l'idée de les solidifier s'est ainsi rapidement imposée ; il fallait trouver un produit minéral stable et peu sensible à l'altération de l'eau.

Ce sont les canadiens Watson L.C. et Durham R.W. qui les premiers à Chalk River produisent du verre en utilisant les propriétés gélifiantes d'une roche naturelle de l'Ontario : la

néphéline syénite. Ils forment avec la solution des produits de fission un gel de silice, qui déshydraté et porté à 1 350 °C donne un verre brun composé de 60 % de SiO₂ et 24 % d'Al₂O₃. La fabrication de verre de synthèse à partir d'oxydes s'impose rapidement ; il fallait en effet prendre en compte la variation des solutions de produits de fission pour obtenir un verre de composition choisie, répondant aux critères nécessaires par la suite pour sa fabrication, son altération par l'eau et plus encore ses propriétés de comportement à long terme.

Le conditionnement par la vitrification était né. Cette technique de vitrification, alliant confinement et réduction du volume pour les solutions de produits de fission qui sont les déchets les plus radioactifs, s'étend maintenant à d'autres types de déchets (radioactifs ou non).

Parmi les déchets radioactifs, on trouve des minéraux mais aussi des organiques, plastiques, résines échangeuses d'ions, ... Mais ces déchets organiques doivent préalablement subir une première étape de combustion et ce ne sont que leurs constituants minéraux non volatils qui donnent lieu à la vitrification. Une fois la partie organique du déchet brûlée, il ne reste plus qu'une part minimale (quelques %) de la masse initiale à vitrifier ce qui permet d'atteindre des facteurs de réduction volumique très élevés même s'il est souvent utile d'adjoindre une certaine quantité de verre primaire pour obtenir une composition finale préalablement sélectionnée.

Les verres fabriqués sont synthétisés à partir de leurs matières premières, celles provenant des produits à vitrifier avec les ajouts nécessaires à la formation du réseau vitreux et prenant en compte à la fois les contraintes de fabrication et les propriétés souhaitées pour le verre final. C'est ainsi que dans le domaine de la vitrification des produits de fission, on se doit de prendre en compte :

- ✓ les contraintes de fabrication : volatilité des éléments à la température d'élaboration, corrosion possible du four, viscosité à la température de coulée ...
- ✓ les contraintes liées au comportement à long terme au regard d'une possible altération par l'eau et celles liées à sa résistance vis-à-vis de l'auto-irradiation α , β et γ .

C'est de fait la structure désordonnée du verre (il est considéré comme un liquide figé donc il ne présente pas d'ordre à longue distance) qui lui permet de "digérer" la grande variété d'éléments chimiques à confiner. Mais tous ne sont pas incorporables dans sa structure et quand ils le sont, c'est en quantité limitée : tous les éléments ne sont donc pas "vitrifiables" et leur faculté à être vitrifiés dépend aussi de la composition de base du verre.

En France, les verres de référence pour le conditionnement des produits de fission, quelle que soit leur filière d'origine, sont des aluminoborosilicates de sodium. L'ajout de bore permet en effet de relâcher le réseau vitreux, ce qui facilite l'insertion d'un maximum d'éléments ; sa réaction acide permet aussi de contrebalancer la réaction basique du sodium, donc d'équilibrer le pH lors d'une éventuelle attaque par l'eau. L'ajout de lithium en lieu et place du sodium diminue très sensiblement la viscosité du verre. Quant à l'ajout d'alumine en substitution à la silice, il permet de diminuer fortement l'altérabilité du verre par l'eau.

Le verre R7/T7, désigné par le nom formulaire SON 68 18 17 L1C1A2Z1, a été mis au point au CEA afin de confiner les solutions de produits de fission et d'actinides de la filière des réacteurs nucléaires à "eau légère", déchets liquides générés lors du retraitement du combustible dans l'usine de "La Hague". La référence R7/T7 provient de l'appellation des deux ateliers de vitrification de l'usine de "La Hague" qui terminent la chaîne de traitement des combustibles irradiés : R7 et T7.

La composition de référence d'origine du verre R7/T7 a été définie par l'équipe de /BONNIAUD R., 1982/.

Oxydes	SiO ₂	Na ₂ O	Li ₂ O	B ₂ O ₃	CaO	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃ + NiO + Cr ₂ O ₃	PF ₂ O ₃	P ₂ O ₅	ZnO
Teneur massique (%)	45,1	9,8	2,0	18,9	4,0	4,9	3,8	13,7	0,3	2,5

Tableau I-2 : Composition élémentaire du verre R7/T7 (teneur massique en oxydes)

Nature des oxydes	% poids d'oxyde
Produits de fission + fines	10,80
Actinides	0,89
Platinoïdes	1,54
Produits de corrosion et d'addition	8,49
Ajout de procédé	1,59
Adjuvants de vitrification	76,69
Tableau I-3 : Composition du verre R7/T7 actif	

La formulation du verre de conditionnement R7/T7 est présentée dans le Tableau I-2 alors que la composition du verre nucléaire après son élaboration est donnée dans le Tableau I-3 /DELORME L., 1998/.

Les adjuvants de vitrification sont apportés par de la fritte de verre, dans des proportions qui ont été fixées de manière :

- ✓ à répondre au mieux au compromis durabilité à long terme/faisabilité technologique,
- ✓ à laisser une flexibilité à l'exploitant (COGEMA).

Le dégagement de chaleur produit par les oxydes de produits de fission et les oxydes d'actinides, limite la teneur que l'on peut incorporer à la matrice vitreuse borosilicatée à environ 12 % en poids afin que la température aux tous premiers instants de l'entreposage ne dépasse pas le domaine de transition vitreuse /SILVE J.M., 1996/.

Ce verre contenant des produits de haute activité est considéré comme un matériau de confinement, pour cela, il doit garantir sur le long terme le relargage mineur des actinides intégrés dans la matrice. De nombreuses études sont menées à l'aide de tests de lixiviation, de modélisation et d'études sur des analogues naturels afin de connaître le comportement à long terme de ce verre nucléaire.

Cependant, il existe d'autres verres nucléaires de composition légèrement différente qui sont mieux adaptés au confinement des autres catégories de déchets radioactifs. Ils reposent tous sur la base du verre R7/T7 mais ils sont enrichis ou appauvris en certains oxydes dans le but de confiner spécifiquement le déchet traité.

Pour les besoins de notre étude, nous n'avons considéré que le verre R7/T7 : c'est pour ce verre que l'on dispose du maximum de données à l'exception toutefois de la conductivité thermique sous sa forme fritte de verre.

I - 2 - 4 - Les déchets radioactifs concernés par cette étude

Les déchets concernés par notre étude sont essentiellement combustibles et on peut citer à titre d'exemple les résines échangeuses d'ions, les enrobés de bitume, ou encore les déchets technologiques.

Ils sont classés dans la catégorie des déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL), définis dans le Tableau I-1. Les déchets liquides appartenant à cette même catégorie peuvent être : des huiles, des liquides de scintillation, des solvants (solvants chlorés, TBP pour tributylphosphate, hydrocarbures, ...), voire des liqueurs de décontamination.

I - 2 - 5 - L'incinération

I - 2 - 5 - 1 - Préambule

L'incinération est, à priori, pour les déchets combustibles, la technique la plus performante en terme de réduction des volumes. Cette dernière dépend beaucoup des charges minérales présentes. Pour certains déchets (matières plastiques, déchets celluliques,

graphite, ...) elle permet d'atteindre des facteurs de réduction volumique supérieurs à 60. Elle assure la minéralisation et donc conduit, en général, à une diminution de la nuisance chimique et biologique.

L'incinération peut s'appliquer aux déchets solides ou liquides ; elle peut être suivie d'une récupération éventuelle de matière dans les cendres. L'augmentation de l'activité spécifique due à la réduction de volume peut entraîner un changement de catégorie du déchet.

Dans tous les cas, l'incinération doit être accompagnée d'un poste de conditionnement des cendres et être associée à un système de traitement des gaz de combustion permettant de satisfaire les normes de rejet.

On peut classer les incinérateurs suivant plusieurs critères : le mode de combustion (pyrolyse, air contrôlé, excès d'air), la technologie utilisée (fours fixes ou tournants, lit de particules réfractaires) ou le type de résidu obtenu (cendre, magma, verre) ; dans ces deux derniers cas, il y a en réalité association de deux procédés (traitement et conditionnement) dans un même four.

I - 2 - 5 - 2 - Contraintes de l'incinération

La plupart des installations d'incinération ne sont pas adaptées aux déchets contenant de grosses quantités de matières non combustibles (métaux, verre, ...). Les fours de combustion sont donc en général précédés d'un tri des grosses pièces métalliques ainsi que d'un broyage des déchets pour assurer une alimentation régulière et homogène.

L'incinération proprement dite est toujours accompagnée d'un système de traitement des gaz spécialement conçu en fonction de la composition des déchets (les gaz peuvent être chargés de poussières, de produits corrosifs et toxiques, d'oxydes métalliques, ...). Le traitement des gaz est effectué soit en voie sèche (filtre à manches ou à poches, filtres à haute température, filtres céramiques, filtres à haute efficacité, ...) soit en voie humide (colonne de lavage) ou combinaison des deux. Les gaz rejetés à la cheminée doivent répondre à la réglementation en vigueur pour les déchets radioactifs et chimiques.

Toute installation d'incinération doit également faire l'objet d'une étude de risques : incendie, explosion, criticité, corrosion, risques chimiques, risques radioactifs, ...

Les procédés conventionnels ont été optimisés pour des familles de déchets bien définies par leur pouvoir calorifique et ne sont pas flexibles pour incinérer d'autres types de déchets. Or, il existe des procédés originaux reposant sur les technologies à plasma d'arc qui permettent de traiter sans modification des déchets à fort ou à faible pouvoir calorifique.

I - 3 - Les plasmas d'arc

I - 3 - 1 - Définition

Le terme de plasma, généralement appelé quatrième état de la matière, définit un milieu partiellement ou totalement ionisé et généralement globalement neutre, constitué de molécules, d'atomes et d'ions le plus souvent excités, ainsi que d'électrons.

Tous les gaz peuvent donner lieu à un plasma sous l'action d'une forte énergie d'excitation /VACQUIE S., 2000/.

En fonction de la nature de la source de puissance (à courant continu, alternatif, inductif ou micro-onde) et du mode de couplage avec la décharge, le plasma est dit résistif, inductif, capacitif, ou micro-onde.

Dans notre cas, nous nous intéresserons uniquement aux plasmas thermiques à décharge d'arc électrique alimentés en courant continu. L'arc éclate entre deux électrodes de polarité opposée dans un milieu gazeux.

A titre d'exemple, la Figure I-2 donne la composition d'un mélange d'argon et d'oxygène (20/80 en volume) en fonction de la température. On observe l'ionisation du milieu gazeux à partir de 5 000 K. Dès lors, on peut parler de plasmas thermiques.

I - 3 - 2 - Propriétés des plasmas thermiques

Au-dessous d'une certaine température, la concentration en particules chargées dans les plasmas est très faible par rapport à celles des espèces neutres. Lorsque la température augmente, leur concentration croît et des propriétés spécifiques à cet état plasma apparaissent.

Les plasmas présentent souvent des hétérogénéités importantes liées en particulier à de forts gradients de températures.

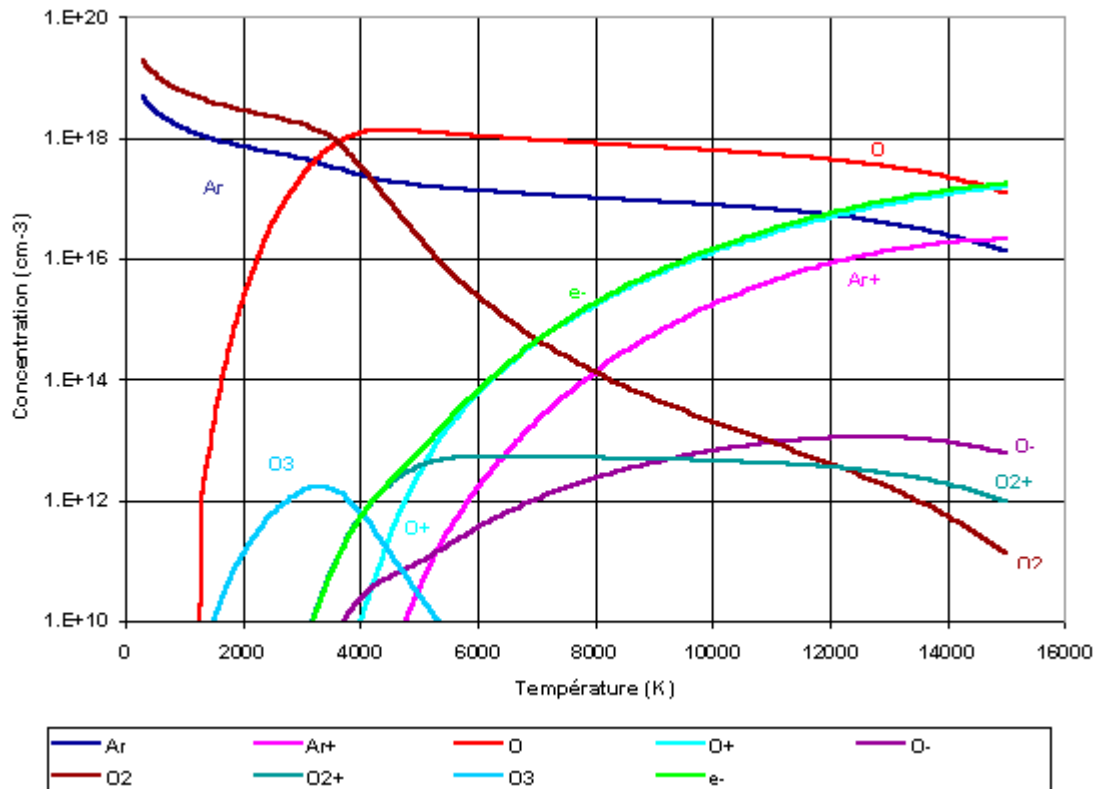


Figure I-2 : Evolution d'un mélange gazeux argon/oxygène (20/80 en volume) en fonction de la température et à pression atmosphérique

La non linéarité de la variation des propriétés physiques avec la température constitue un point essentiel des caractéristiques des plasmas. Par exemple, dans le cas de la chaleur massique à pression constante du plasma, la non-linéarité se traduit par l'existence de pics dus à la dissociation des molécules et aux ionisations successives des atomes. Ces pics correspondent à de fortes variations d'enthalpie dans les domaines de température où ils apparaissent. Pour une même température, l'enthalpie massique varie de 1 à 2 ordres de grandeur en fonction de la nature des gaz utilisés : argon, hélium, oxygène, ... (cf. III - 1 - 5 -).

La conductivité électrique du plasma augmente brutalement vers 5 000 K, elle est alors de l'ordre de $10^{-3} \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$, et ce n'est que pour des températures supérieures que l'on devrait parler de plasma. Elle atteint une valeur maximum de l'ordre de $0,1 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ pour une température de 15 000 K.

La conductivité thermique est également une propriété physique importante des plasmas. En effet, lorsqu'un autre gaz est ajouté à l'argon, les pics de dissociation puis d'ionisation entraînent une forte augmentation de la conductivité thermique du plasma. On l'observe facilement sur la Figure III-5.

Enfin, une dernière caractéristique spécifique aux plasmas thermiques est la forte viscosité dynamique qu'ils présentent. On peut noter que la viscosité des plasmas est 10 fois plus importante à 10 000 K que celle du gaz à la température ambiante.

I - 3 - 3 - Applications de la technologie plasma au traitement des déchets

I - 3 - 3 - 1 - Quels types de déchets visés?

Les possibilités offertes par la technologie plasma (hautes températures, fort pouvoir oxydant ou réducteur, ...) ouvrent sur un large éventail de traitement des déchets. Les systèmes à plasmas d'arc pouvant être utilisés sont de type arc soufflé (adaptés au traitement des liquides et des gaz), ou de type arc transféré (adaptés au traitement des solides et des liquides). De nombreux procédés destinés au traitement de déchets non radioactifs sont arrivés à maturité :

- ✓ destruction de déchets chimiques et plus particulièrement les déchets organohalogénés : PCB, gaz de combat, défoliant, pesticides /BRUCE K.R. et al, 1998/,
- ✓ incinération de déchets spéciaux tels certains déchets hospitaliers contaminés /SPRINGER M.D. et al, 1995/,
- ✓ vitrification des résidus d'épuration des fumées issues de l'incinération des ordures ménagères) /CERQUEIRA N. et al, 2002/, /GUIHARD B., 2002/,
- ✓ extraction des platinoïdes des pots d'échappements catalytiques usés /SAVILLE J., 1985/.
- ✓ vitrification des sols contaminés par action in-situ /CIRCEO L.J. et al, 1994/,
- ✓ recyclage des métaux nobles des poussières d'aciérie électrique /BARCZA N.A. et al, 1993/,
- ✓ inertage des déchets très réfractaires contenant de l'amiante (isolants thermiques, joints hautes températures, ...) /GUIHARD B., 2002/,
- ✓ valorisation de l'aluminium contenu dans les crasses de l'industrie de l'aluminium /MEUNIER J. et al, 1996/.

I - 3 - 3 - 2 - Les inconvénients

Les principaux inconvénients que l'on peut rencontrer dans le domaine du traitement des déchets par voie plasma sont dus à leurs caractéristiques particulières, paradoxalement les mêmes qui apportent les avantages de leur utilisation :

- ✓ les hautes températures atteintes peuvent occasionner une volatilité importante de certains métaux ou éléments contenus dans le bain lors de l'utilisation des plasmas en vitrification ou en chauffage des répartiteurs de coulée d'aciéries,
- ✓ la formation de certains composés indésirables est également possible du fait de la très grande réactivité chimique du milieu, ce sont par exemple les oxydes d'azote formés dans un plasma contenant de l'azote et de l'oxygène.

I - 3 - 3 - 3 - Les avantages

Les températures atteintes dans les plasmas thermiques sont très élevées et les enthalpies massiques des gaz sont grandes. Les vitesses des réactions chimiques sont donc extrêmement rapides et les efficacités des procédés sont considérablement accrues.

Parce que les mélanges sont très réactifs, les débits de gaz utilisés sont faibles, les réacteurs plasmas sont donc de petites tailles et les dimensions des unités aval de traitement des gaz sont réduites. Ceci est un atout majeur pour certaines applications, notamment dans le domaine des déchets radioactifs où les tailles des installations doivent être minimales. La petite taille des réacteurs diminue également leur inertie thermique. Pour ces raisons, les débits traités, rapportés à la taille des réacteurs plasmas, peuvent être importants.

Parce que le choix des gaz plasmagènes, qui peut être le réactif chimique, est quasiment illimité (classiquement : argon, hélium, azote, hydrogène, oxygène, ... mais aussi vapeur d'eau), tous les types de traitement chimique peuvent être envisagés (nitruration, réduction, combustion, ...).

La température du plasma est indépendante de sa composition ; on peut donc par exemple générer des milieux réducteurs à très haute température.

Le plasma est aussi un procédé allothermique, c'est-à-dire que l'énergie est apportée au sein même du milieu réactionnel et non pas au travers d'une paroi.

Toutes ces particularités physiques confèrent aux procédés plasmas une grande souplesse d'utilisation et une importante flexibilité. La gamme de déchets susceptibles d'être concernés par un traitement plasma est très large. De plus, plusieurs étapes du traitement des déchets peuvent être envisagées dans un unique réacteur contrairement aux procédés conventionnels, c'est par exemple le cas de la combustion/vitrification de déchets radioactifs dans un réacteur à plasma d'arc transféré sur un bain de verre.

I - 4 - Le traitement des déchets radioactifs par plasma d'arc

Aux USA, l'aube du nucléaire s'est levée dans le contexte du projet Manhattan de la seconde guerre mondiale puis dans celui de la guerre froide, c'est-à-dire dans l'urgence et presque dans l'inconnu. Des déchets issus non seulement des procédés mais aussi de l'extraction du plutonium ont pu être enfouis dans des fosses, conduisant à la notion de "mixed wastes". Pour reconditionner ces déchets de compositions extrêmement variées, voire inconnues, l'usage des procédés en plasmas thermiques compte tenu de leur grande flexibilité, était tout indiqué. Plusieurs pilotes, à l'échelle 1, ont été construits et testés sur les sites d'Hanford, d'Oak-Ridge ou de l'Idaho /GIROLD C., 1997/.

Ces dernières années, on a pu remarquer, à travers les travaux publiés ou présentés dans les conférences internationales, telles que IT3 ou "Waste Management", que, dans ce domaine de la R&D, des pays comme le Japon, Taiwan ou la Corée du Sud étaient très actifs. En Europe les développements connus se font en Suisse et en France.

I - 4 - 1 - Au Japon

I - 4 - 1 - 1 - Au CRIEPI

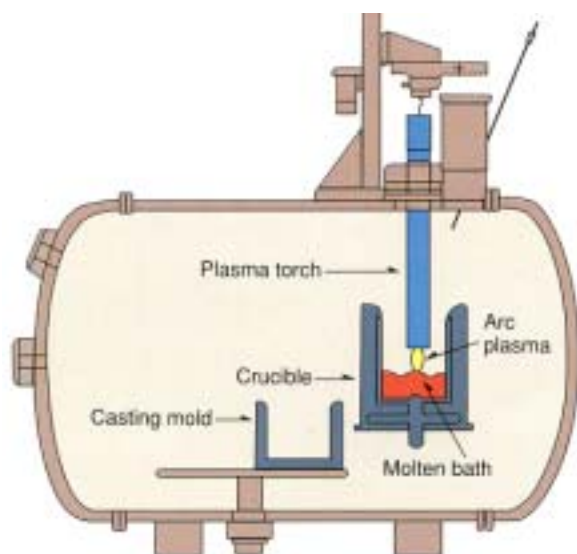


Figure I-3 : le procédé de traitement des déchets radioactifs du CRIEPI

Le CRIEPI - Central Research Institute of Electric Power Industry - est le centre de recherche des grandes compagnies d'électricité du Japon dans le domaine des technologies électriques tant pour la production d'énergie électrique que pour son utilisation.

L'objectif des travaux de R&D est la réduction de volume de déchets de faible activité issus du démantèlement ainsi que le conditionnement de déchets contenant des transuraniens. Le procédé (cf. Figure I-3) intègre dans une chambre de grande

dimension, en atmosphère contrôlée, un four à plasma à arc transféré de 100 kW fonctionnant avec un courant continu de 200 à 500 A. Le four est constitué d'une torche aérienne, d'une contre électrode de sole, d'un creuset hémisphérique en graphite de 16 cm de rayon. Il est entièrement réalisé en doubles parois refroidies à l'eau. Après fusion des déchets, le creuset

est basculé et son contenu coulé dans un pot où il se solidifie. Les déchets métalliques (fer, acier inoxydable, zircalloy...), incombustibles (béton, cendres et amiante, ...) et combustibles (plastiques, ...) sont traités simultanément.

Le produit solidifié obtenu est constitué de deux couches, une couche supérieure contenant les oxydes (le laitier) et une couche inférieure métallique. On note que le zirconium est très réactif et il est difficile d'obtenir un lingot de métal sans inclusion d'oxyde ou de niture.

Les études ont porté sur le choix des meilleurs simulants des radioéléments : Ce pour Pu, Re pour Tc. Les taux de partage des radioéléments entre les différentes phases - métal, oxyde et poussières recueillies dans le filtre - ont été mesurées. /AMAKAWA T. et al, 2001/ estiment que les éléments tels que Sr, Ce, et Nb migrent dans la couche supérieure car l'enthalpie libre de formation de l'oxyde est supérieure à celle de l'oxyde de fer ; par contre Co, Ni, et Re migrent dans la couche métallique pour la raison contraire.

/ADACHI K. et al, 2001/ corrélient les teneurs des différents éléments dans les poussières avec leur tension de vapeur (cf. Figure I-4). Les taux de lixiviation en Sr du laitier obtenu sont rapportés à la basicité du laitier (cf. Figure I-5).

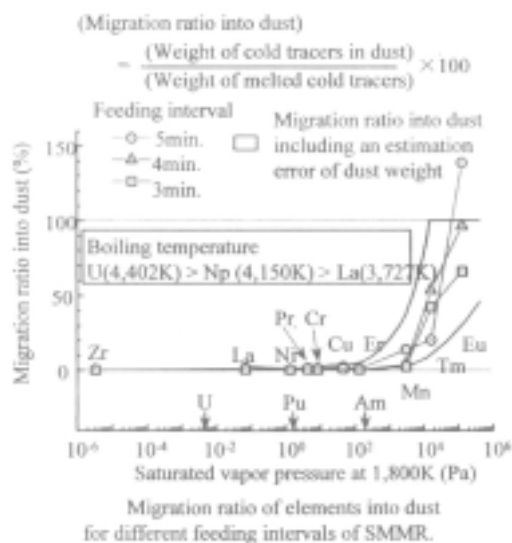


Figure I-4 : Taux de partage en fonction des pressions de vapeur des radioéléments

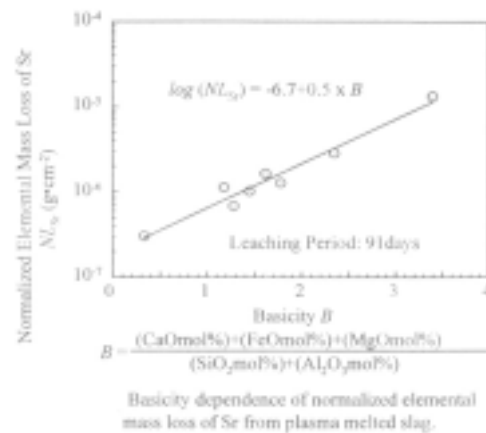


Figure I-5 : Taux de lixiviation en Sr du laitier

I - 4 - 1 - 2 - Au JAERI

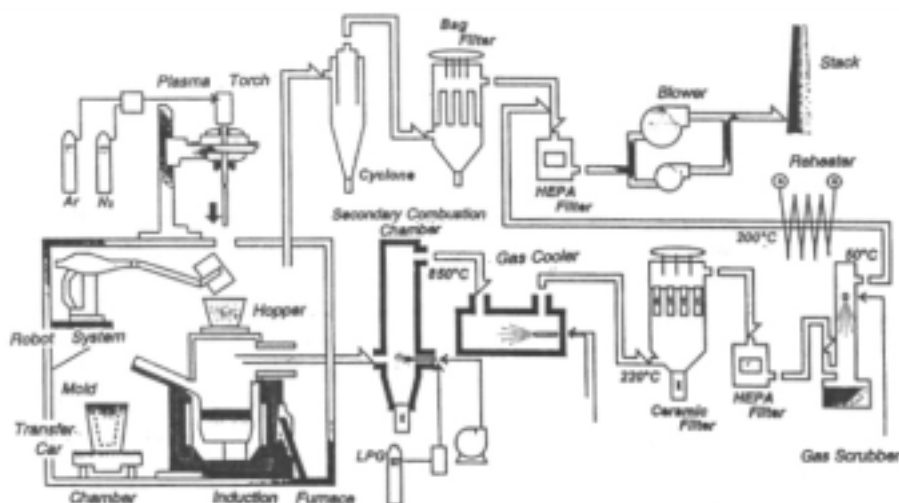


Figure I-6 : Procédé hybride –arc et induction - du JAERI

Le procédé dit hybride installé au JAERI (pour Japan Atomic Energy Research Institute), schématisé sur la Figure I-6 /HIRABAYASHI T. et al, 1998/, conjugue une torche à plasma à arc soufflé de 100 kW et un pot de fusion à chauffage par induction (350 kW et 1 000 Hz). L'objectif est la réduction de volume de déchets de faible activité pouvant contenir 50 à 90 % de métal (acier au carbone, acier inoxydable, aluminium), 10 à 50 % d'inertes (béton, verre, sable, fibres céramiques...) et 0 à 3 % d'organiques (polyéthylène, PVC, caoutchouc...).

I - 4 - 1 - 3 - A la Japan Atomic Power Company

Pour le centre de stockage de déchets de faible activité de Rokkasyo à Amori, la Japan Atomic Power Company a confié à Toyo Engineering Power Company la construction de l'atelier schématisé sur la Figure I-7 pour le conditionnement de déchets de faible activité constitués de béton, de matériaux d'isolation, de métaux : le déchet standard est constitué de 42 % de métaux, de 30 % de béton et de verre, de 22 % de produits organiques (PVC, caoutchouc, charbon actif...), de 4 % de cendres d'incinération et de 2 % de résines échangeuses d'ions. Le procédé repose sur un four centrifuge RETECH d'environ 2,5 m de diamètre, équipé d'une torche de 1 200 kW, suivi d'une chambre de post combustion /YAMAZAKI K. et al., 1997/.

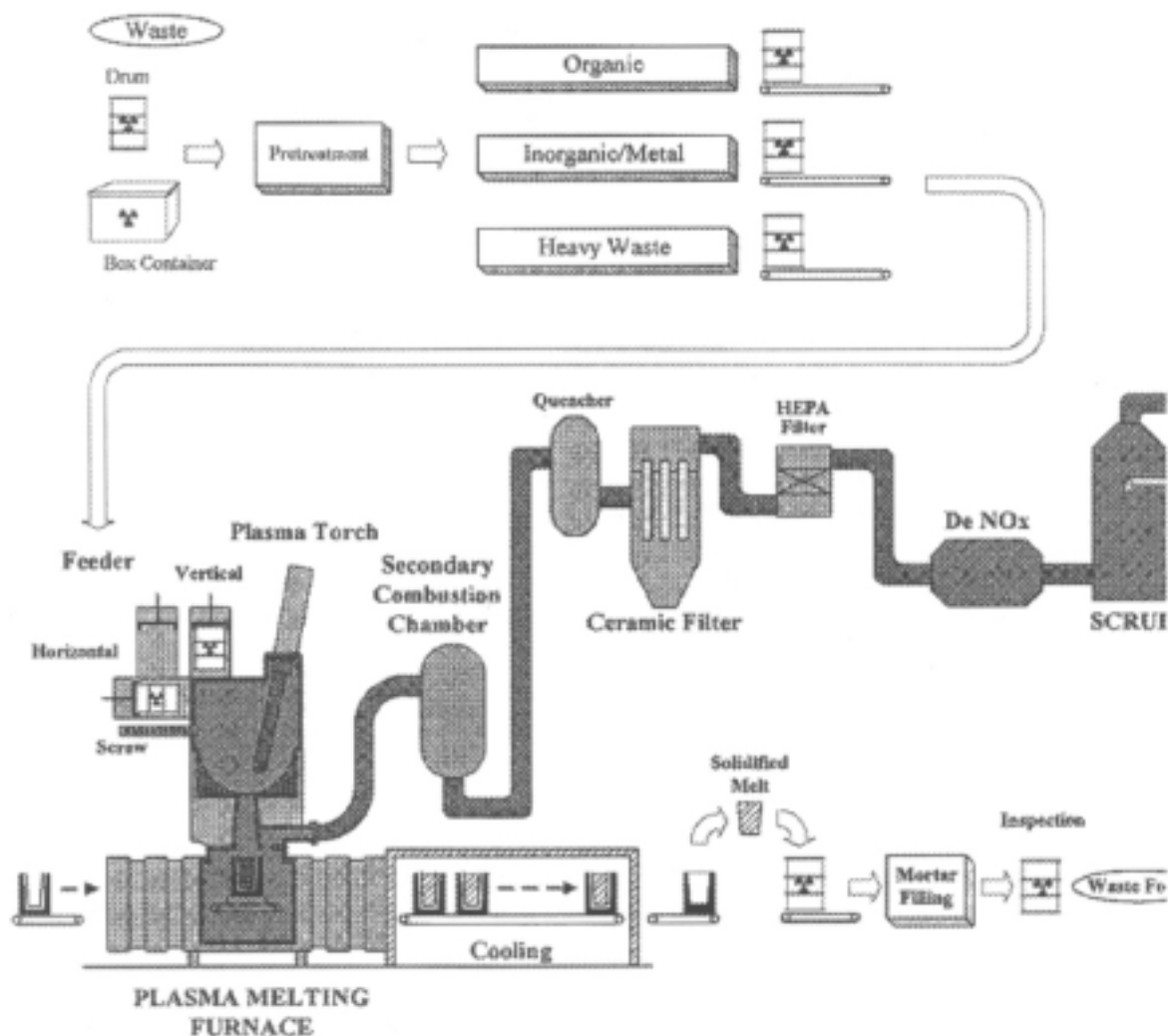


Figure I-7 : Installation de Japan Atomic Power Company

I - 4 - 2 - A Taiwan

Ce procédé est dévolu au traitement de déchets de faible activité /TZENG C.C. et al., 2001/. Le pilote (cf. Figure I-8 et Figure I-9) construit en 1998, est utilisé pour valider le concept de conditionnement de déchets de faible activité et de faible pouvoir calorifique c'est-à-dire contenant peu de composés organiques. Le four à plasma, de hauteur 3,3 m et de diamètre 2,5 m, est un cylindre divisé en trois parties. La partie la plus basse du four – le creuset d'un diamètre intérieur de 250 mm, de type "side car"- est revêtue de quatre épaisseurs de réfractaires. Les déchets sont introduits dans des fûts de 200 L et le laitier coulé aussi dans des fûts de 200 L.



Figure I-8 : Four de traitement des déchets radioactifs de très faible activité (INER)

La partie supérieure du four reçoit une torche à plasma d'arc transféré délivrant une puissance thermique de plus de 1 000 kW et utilisant l'azote comme gaz plasmagène. Les déchets non combustibles sont introduits avec un débit de $250 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$ alors que le débit pour les déchets incinérables n'est que de $50 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$. Le four est accompagné d'un système

de traitement des gaz adéquat incluant une trempe ("quench"), une colonne de lavage, deux filtres à haute efficacité et un filtre à manches. Les poussières récupérées peuvent être recyclées dans le four. L'installation comporte également un système de piégeage des oxydes d'azote (DeNOx) afin d'en réduire la teneur dans les gaz qui n'est que de 113 ppm avec 0,5 % d'oxygène dans l'azote de la torche, mais qui devient 1350 ppm lorsque la teneur en oxygène passe à 1,2 %. Afin de réduire ces teneurs en oxyde d'azote, du méthane est introduit dans le gaz plasmagène (1/50).

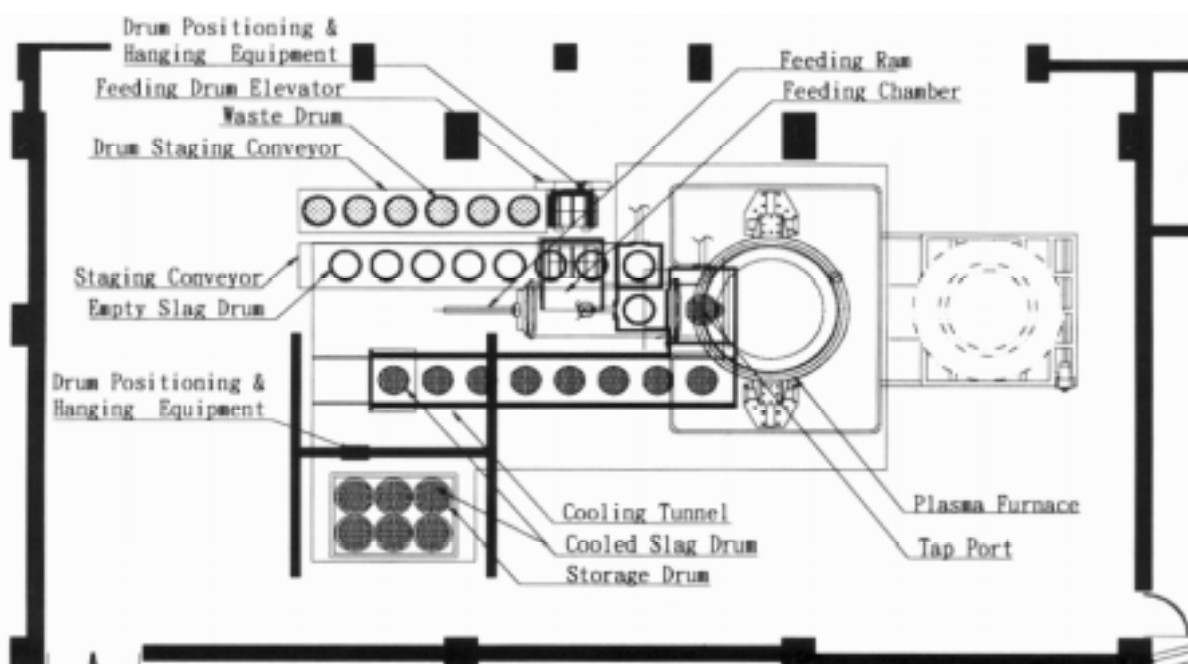


Figure I-9 : Synoptique de fonctionnement du procédé INER

I - 4 - 3 - En Corée du Sud



Figure I-10 : Le four de fusion de Korea Hydro & Nuclear Power Co

Devant la réduction des capacités de stockage des centrales et les démantèlements qui s'annoncent en Corée du Sud, plusieurs compagnies se sont associées pour expérimenter des procédés de conditionnement de déchets de faible et moyenne activité. Un four de fusion de déchets non combustibles (béton, amiante, ferrailles...) (cf. Figure I-10), fondé sur une torche "PEC" pouvant fonctionner en mode transféré et en mode non-transféré de 150 kW, a été construit sur le site de Taejon pour valider les performances attendues /KIM T.W. et al., 2001/.

I - 4 - 4 - En Russie

La société RADON (pour Moscow Scientific & Industrial Association "Radon") fait la promotion d'un procédé fondé sur un "mini cubilot" à parois de type "water-jacket", accéléré par plasma, pour réduire le volume de déchets de faible activité (cf. Figure I-11) /DMITRIEV S.A. et al., 1997/ : les déchets, constitués par exemple de 62 % de cellulose, de 9 % de PVC (polychlorure de vinyle) et de 9 % de PE (polyéthylène), sont introduits par gravité à contre courant des fumées produites par la combustion, le débit de déchets est de l'ordre de 50 kg.h^{-1} pour une puissance effective des 2 torches à plasma de l'ordre de 50 kW. Des résultats d'essais conduits pour la société française SGN font apparaître des difficultés pour couler le laitier compte tenu de sa viscosité.

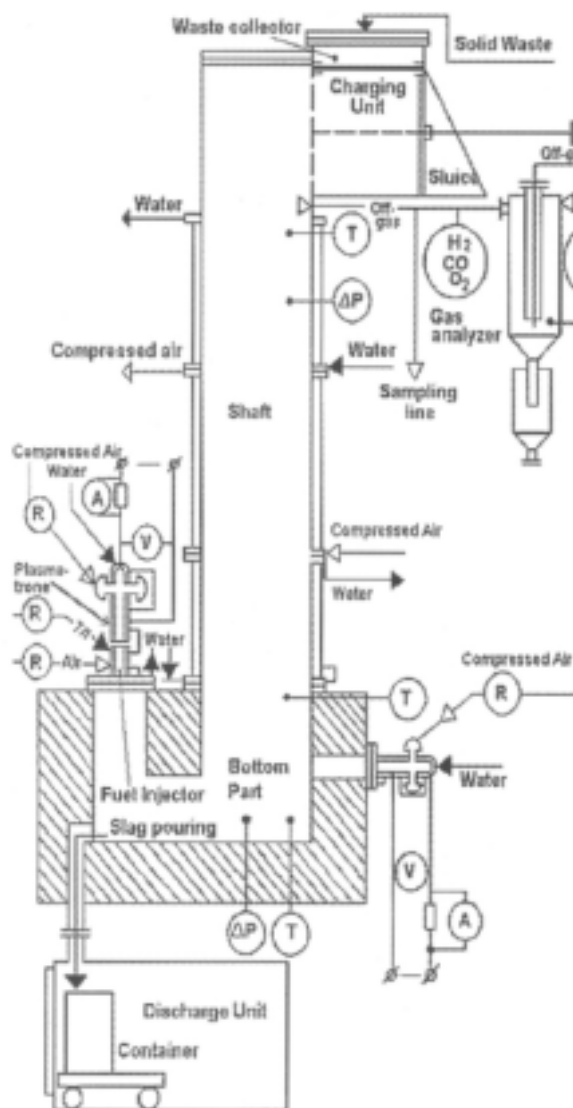


Figure I-11 : Le procédé RADON

I - 4 - 5 - En Suisse

La société ZWILAG (pour Zwischenlager Würenlingen AG) a installé un procédé plasma de conditionnement des déchets provenant des centrales nucléaires et de "petits producteurs" tels que des laboratoires industriels ou des hôpitaux.

L'atelier a été dimensionné pour 200 t.an^{-1} de déchets de faible activité : 11 GBq/fût pour les déchets combustibles et 5 GBq/fût pour les non combustibles ; il s'agit de plastiques, de textiles, de caoutchouc, d'huiles et de solvants, de filtres, de boues, de résines échangeuses d'ions... (cf. Tableau I-4).

Le synoptique de fonctionnement de l'installation est présenté sur la Figure I-12. Le procédé repose sur un four centrifuge PLASMARC de RETECH (cf. Figure I-13).

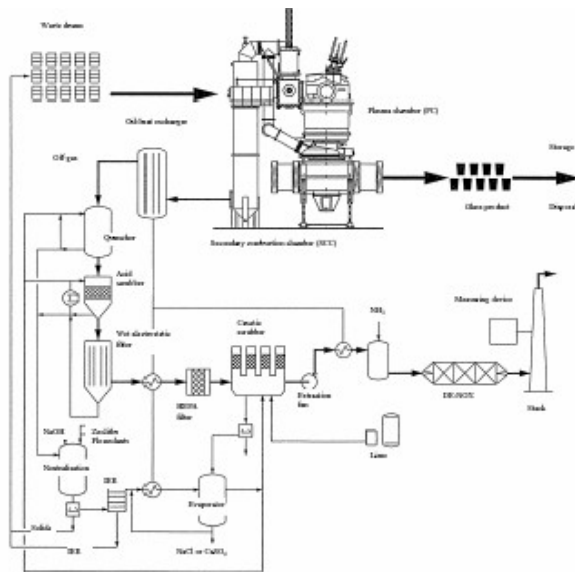


Figure I-12 : Schéma de l'atelier de ZWILAG refroidie à l'eau, et recouverte d'une couche de réfractaire. Le creuset centrifuge contenant le bain en fusion tourne à une vitesse de 30 à 40 tr.min⁻¹. La torche plasma fonctionne en mode transféré avec de l'azote comme gaz plasma.

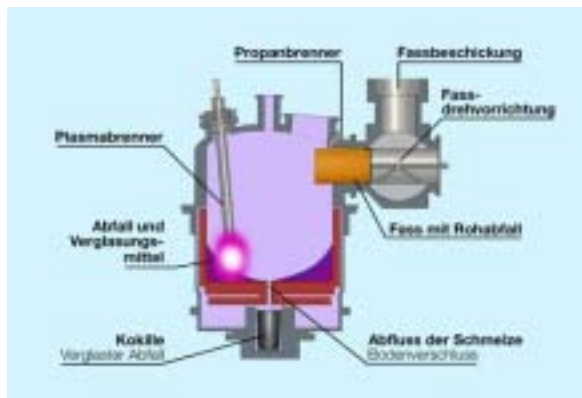


Figure I-13 : Le four de ZWILAG

La torche à plasma d'arc transféré peut être mise en fonctionnement ou stoppée pour contrôler l'énergie entrante durant l'alimentation.

Les produits gazeux sont envoyés dans une chambre de postcombustion à double paroi refroidie à l'eau, garnie de réfractaires. Les fumées sont refroidies dans un échangeur de chaleur puis par une trempe pour les saturer en eau avant d'entrer dans une tour de lavage suivie d'un électrofiltre ; elles sont réchauffées dans l'échangeur de chaleur, traversent un filtre THE et enfin pénètrent dans un système de piégeage des oxydes d'azote (DeNO_x) avant d'être évacuées.

Lorsque le bol du creuset est rempli ($\sim 1 \text{ m}^3$), la vitesse de rotation est ralentie afin de permettre la vidange par le trou de coulée central dans des conteneurs en acier inoxydable refroidi. Après abaissement de la température, le verre obtenu est envoyé vers un centre de stockage temporaire.

L'unité plasma décrite permettra de traiter 200 kg.h^{-1} de déchets combustibles ou 300 kg.h^{-1} d'incombustibles. La production annuelle de déchets radioactifs de faible activité est en Suisse de l'ordre de 200 tonnes.

	Composition	Quantité traitée (t)
Déchets combustibles	Déchets mixtes (plastiques, PVC,)	90
	Déchets putréfiables	2
	Huiles et solvants	1,2
	Filtres de ventilation	2,3
	Débris, boues	44,5
	Résines échangeuses d'ions	10
Déchets incombustibles		50
Total		200

Tableau I-4 : Composition moyenne des déchets traités à SWILAG

On ne dispose d'aucune information que ce soit concernant le matériau de l'électrode de retour dans le creuset et sa durée de vie ou que ce soit concernant les propriétés du matériau coulé. La date de nucléarisation de l'installation, plusieurs fois repoussée, reste également inconnue.

I - 4 - 6 - En France

I - 4 - 6 - 1 - Sur le site de Cadarache

Dans le cadre du projet AICHA (Atelier d'Inertage et de Conditionnement à HAute température), CEA/.../DED expérimente une chaîne de traitement de déchets TFA en grande partie incombustibles (terres contaminées, bétons, déchets des petits producteurs) utilisant le procédé PLASMARC de RETECH. L'installation est fondée sur un four centrifuge PCF-2, de 70 cm de diamètre, équipé d'une torche à plasma transféré de 150 kW, suivi d'une chambre de post-combustion et d'un traitement de fumées. Les travaux portent sur l'évaluation des performances, sur l'augmentation de la durée de vie des électrodes et du creuset, sur le traitement des fumées et sur la nucléarisation de l'installation. Des essais visant à tester l'emploi d'une torche à arc soufflé de 300 kW sont également menés.

I - 4 - 6 - 2 - Sur le site de Marcoule

I - 4 - 6 - 2 - 1 - Le procédé IRIS

I - 4 - 6 - 2 - 1 - 1. Préambule

L'incinérateur pilote IRIS (Installation de Recherche pour l'Incinération de Solides) du CEA Marcoule a été conçu pour les déchets technologiques (cellulose, caoutchouc, matières plastiques) chargés en éléments émetteurs alpha.

L'incinération est précédée d'un prétraitement des déchets : suppression des éléments métalliques, tri, broyage.

Son principe /MONCOUYOUX J.P. et al., 1995/ est basé sur une incinération en deux étapes comprenant successivement une pyrolyse des déchets à 550 °C en présence d'air en quantité sous - stœchiométrique et une calcination du brai obtenu vers 900 °C en présence d'air suroxygéné. Les deux unités sont des fours tubulaires tournants métalliques.

Les gaz générés à la pyrolyse et à la calcination sont envoyés vers une chambre de postcombustion chauffée à 1 100 °C par des résistances puits et garnie de briques réfractaires. Le traitement des gaz issus de cette étape comprend un refroidisseur - dilueur, un électrofiltre, un filtre à très haute efficacité (THE), et une colonne de lavage.

L'incinération en deux étapes est caractérisée par les spécificités suivantes :

- ✓ alimentation continue (régulière, homogène),
- ✓ cendres homogènes, faiblement chlorées et dont la faible teneur en carbone les rend propres à la récupération du plutonium,
- ✓ fours de dimensions réduites si on les compare à une chambre d'incinération directe,
- ✓ souplesse de d'exploitation,
- ✓ maîtrise des températures,
- ✓ conception modulaire qui facilite la nucléarisation,
- ✓ déchloruration des déchets à basse température permettant d'utiliser des réacteurs métalliques dans lesquels on maîtrise la corrosion,
- ✓ très faible entraînement (< 1%) des poussières d'oxydes hors du pyrolyseur et du calcinateur.

Le passage de déchets broyés à des cendres par le fait de l'incinération permet d'atteindre un facteur de réduction volumique d'environ 40. La vitrification de ces cendres, avec un ajout initial de matrice verrière permet d'accroître ce facteur de réduction volumique à environ 200.

L'installation pilote (en inactif) a été testée durant plus de 5 400 heures permettant ainsi le traitement d'environ 20 tonnes de déchets simulés.

Ce procédé fonctionne en actif depuis plusieurs années au centre de VALDUC de la Direction des Applications Militaires du CEA /JOUAN A. et al, 1995/ et /CHATEAUVIEUX H., 1998/.

I - 4 - 6 - 2 - 1 - 2. La postcombustion plasma

Une étude menée par /TAUPIAC J.P., 1993/ et /GIROLD C., 1997/ a permis de mettre au point un réacteur de postcombustion utilisant une torche à plasma d'arc soufflé fonctionnant sous oxygène. Ce réacteur devrait prendre place en lieu de la chambre de postcombustion d'IRIS.

Ce nouveau réacteur est caractérisé par un traitement original des gaz de pyrolyse et de calcination. Ces derniers sont injectés en périphérie du panache plasma et sont portés à

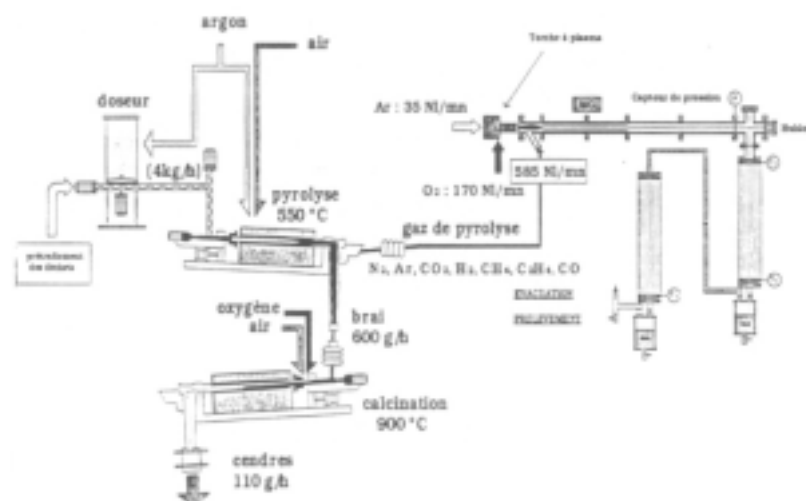


Figure I-14 : Le procédé IRIS intégrant une postcombustion plasma

environ 5000 K dans un milieu très oxydant et durant quelques secondes. Cette étude a abouti à la conception d'un réacteur tubulaire d'environ 3 litres, dépourvu de réfractaires, d'inertie thermique faible et dont la température de paroi est

contrôlée /BARTHELEMY, B. et al, 2001/.

I - 4 - 6 - 2 - 2 - Le procédé SHIVA

Depuis 1990, le CEA/.../SCDV étudie la faisabilité de réaliser l'incinération, la vitrification de déchets radioactifs ainsi que la combustion des gaz issus de la dégradation du déchet dans un seul et même réacteur constitué en double paroi métallique refroidie à l'eau.

Le procédé doit pouvoir traiter des déchets MAVL, c'est-à-dire tels que des résines échangeuses d'ions ou des enrobés bitumineux. L'activité peut être de l'ordre de quelques GBq.g⁻¹ soit quelques dizaines de curies par fût de déchets : l'activité conditionnée doit ainsi

pouvoir atteindre environ un millier de curies par jour dans une installation compacte. On peut rapporter cet objectif à celui de l'installation Suisse de Zwiilag qui n'a à conditionner que ~ 1000 curies par an dans un four de plus de 2 m de diamètre !

Le réacteur développé au CEA/.../SCDV repose sur la technologie des plasmas thermiques et a subi plusieurs modifications pour arriver à l'installation actuelle. Ce four de combustion/vitrification utilise un plasma d'oxygène transféré entre deux électrodes métalliques aériennes. Le concept de réacteur à parois froides permet d'éviter l'utilisation de briques réfractaires pouvant, après traitement de déchets radioactifs, être contaminées et donc devenir des déchets secondaires ne pouvant être traités que par cimentation ou stockage. Ce mode de fonctionnement génère, dans le creuset de fusion, un autocreuset faisant l'interface entre la paroi froide et le verre fondu. Cet autocreuset est constitué d'une fine épaisseur de fritte de verre non fondue mais agglomérée recouvrant toutes les parois du creuset.

L'objectif poursuivi est de traiter des déchets variés (cf. I - 2 - 3 -) en une seule opération qui combine réduction de volume (combustion) et confinement dans une matrice minérale des cendres produites (vitrification) avec éventuellement ajout d'une matrice verrière.

Les premiers travaux /TAUPIAC J.P., 1993/ ont montré la faisabilité de l'incinération de déchets radioactifs en plasma d'arc et ont débouché sur la conception du premier réacteur à plasma d'arc transféré entre une cathode aérienne et une anode noyée dans le bain de verre en fusion (cf. Figure I-15-①). Cette première configuration était destinée à vérifier et à valider des points clés de la faisabilité d'un plasma d'oxygène couplé à l'utilisation de parois froides (dépourvues de réfractaires). Le pilote développé était dévolu à la recherche et a subi de profondes modifications pour pallier certains de ses défauts.

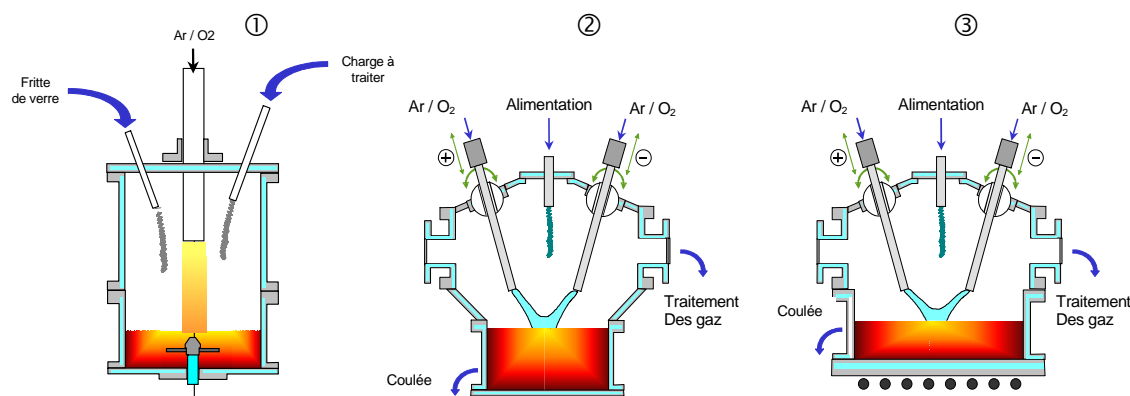
Les points forts à retenir sont la faisabilité technologique de génération d'un plasma d'oxygène dans un réacteur à double paroi refroidie à l'eau sous pression. Les premières applications au traitement de déchets en surface d'un bain de verre sont très positives.

Par contre, les points faibles, connus lors de la conception de ce premier four, sont :

- ✓ nécessité d'une contre-électrode collectrice du courant noyée dans le bain de verre. En graphite, elle présente l'inconvénient de modifier fortement l'état d'oxydation du verre ; en molybdène, elle se consomme rapidement et devient source de pollution du verre.
- ✓ impossibilité d'amorcer le plasma sur un bain de verre solidifié (isolant électrique) donc de redémarrer un essai suite à une coupure volontaire de la source électrique, ou à un soufflage de l'arc dû à un allongement trop important par exemple.

- ✓ maîtrise difficile du chauffage du bain de verre du fait, entre autres causes, de la circulation de la totalité du courant électrique au travers du verre liquide. L'intensité de ce courant devant être suffisamment élevée pour "rigidifier" l'arc et le stabiliser, l'échauffement local est très important, d'où une volatilisation de certains éléments du verre.
- ✓ détérioration du creuset métallique à proximité du bain de verre par accrochage de l'arc sur les parois au potentiel anode.

De nouveaux travaux /MEGY S., 1994/ et /GIROLD C., 1997/ ont abouti à un



nouveau concept de four plus performant.

Dans cette configuration, une seconde électrode collectrice du courant prend la forme d'une torche ; elle est portée au potentiel anode (cf. Figure I-15-②). L'arc électrique est initialement établi entre les deux électrodes, puis dès que le verre devient suffisamment conducteur, il est transféré dans le bain. Cette technologie est appelée dispositif à Torches Jumelées Bipolaires (TJB) ; elle a été éprouvée au Laboratoire de Chimie des Plasmas (LCP) de l'Université de Limoges puis sur l'installation BEMBIN (Banc d'Essais Modulaire pour les Etudes de Base en Incinération) au CEA.

Four à électrode axiale

BEMBIN

SHIVA

Figure I-15 : Les différentes évolutions du four à plasma

Ce dispositif permet de résoudre une partie des problèmes cités précédemment tout en créant une zone plasma plus étendue ; à ce sujet rappelons qu'une difficulté de la mise en œuvre des plasmas d'arc réside dans la faible taille de la région chaude et réactive. Au démarrage, on cherche à transférer l'arc électrique dans le verre afin de chauffer la matrice par effet "Joule", mais ceci engendre une surchauffe locale importante identique à la technologie à plasma d'arc transféré simple. Ensuite, les torches sont remontées pour ne

conserver que l'action du plasma dans la phase gazeuse au-dessus de la surface du verre : le fonctionnement s'apparente plus à un mode soufflé.

Dans ce dernier cas, la fusion complète d'un bain de verre est fortement dépendante du diamètre du creuset refroidi et l'augmentation de la puissance plasma devient rapidement insuffisante pour fondre de manière homogène le contenu d'un creuset rempli de verre sur une grande hauteur (> 15 cm).

Dans ce sens et afin de dissocier la fonction combustion plasma de la fonction fusion et affinage du verre, un dispositif de chauffage du verre par induction directe par le fond du creuset a été associé au chauffage plasma. Il s'agit de la dernière évolution de l'installation (cf. Figure I-15-③) nommée SHIVA (Système Hybride d'Incinération Vitrification Avancée).

L'association de ces deux technologies de chauffage doit permettre d'atteindre les objectifs suivants :

- ✓ dissocier les fonctions de combustion et vitrification au sein du même réacteur. C'est à dire utiliser l'atmosphère plasma chaude et oxydante pour réaliser la combustion du déchet ainsi que l'oxydation des minéraux sans chercher à l'utiliser pour fondre le verre, cette dernière fonction étant dévolue au chauffage par induction.
- ✓ obtenir une plus grande homogénéité thermique du verre, cela passe dans le cas de la technologie installée par un besoin d'élévation de la température de surface, favorisant la combustion des charges à traiter.
- ✓ agir sur les réactions chimiques entre les déchets en cours de combustion et le verre fondu.
- ✓ apporter de la souplesse de fonctionnement au procédé en ayant la possibilité de recycler les poussières issues de l'épuration des fumées en phase de vitrification seule (plasma arrêté) ou dans une région éloignée du plasma.
- ✓ démarrer le creuset froid au moyen des torches à plasma sans moyen annexe, quelque soit l'état du verre dans le creuset et son niveau de remplissage.

I - 5 - La modélisation au service du développement de procédés

I - 5 - 1 - Préambule

A ce jour, un grand nombre d'essais de combustion – vitrification de déchets a été réalisé. Ils ont permis de vérifier la faisabilité de l'incinération de déchets radioactifs simulés (comme des résines échangeuses d'ions, des enrobés bitumineux, des déchets technologiques

ou encore des boues liquides, ...) sans se placer dans des conditions optimales de fonctionnement du pilote (temps de séjour des déchets dans la zone plasma et en surface du bain de verre, distribution de l'oxygène dans le four, répartition des températures en différents points de l'installation).

Après chaque essai, le verre obtenu ainsi que les poussières retrouvées dans les différentes parties de l'installation sont analysés. Les conclusions que l'on peut tirer se font sur une échelle macroscopique. Les résultats des différents essais permettent soit de valider la faisabilité du traitement du déchet étudié lors de cet essai soit de conclure que le pilote n'est pas bien adapté, en l'état, au traitement de tel déchet. Dans ce dernier cas, on se doit de proposer une solution alternative ou de faire évoluer l'installation afin de traiter spécifiquement certains déchets. Cependant, les modifications à apporter au procédé sont déterminées de manière empirique sans pouvoir se raccrocher à des données physiques. De plus, on se rend compte parfois que certains essais ne sont pas forcément utiles et pourraient être évités si les différents processus ayant cours dans le réacteur étaient mieux connus et gérés.

La solution pour éviter de mettre en œuvre des essais parfois coûteux est de définir au mieux ce qui se passe dans le four. Une des manières d'aboutir à cette connaissance est de mettre en place une modélisation globale du procédé en étudiant à la fois la thermique mais aussi l'hydraulique des écoulements régnant dans l'enceinte du four ainsi que les réactions chimiques prenant place dans le réacteur durant la combustion.

Ainsi la modélisation complète du four doit permettre d'affiner l'interprétation des essais ayant déjà eu lieu mais aussi de mener de manière plus synthétique de nouveaux essais de combustion/vitrification plasma.

Une fois validée, la simulation du four SHIVA débouchera sur la caractérisation complète du pilote qui aboutira à son développement par l'optimisation globale de tous les paramètres mis en jeu.

L'objectif de ce travail de modélisation est d'obtenir une prédiction fiable du chauffage d'un bain de verre par un plasma d'arc transféré entre deux Torches Jumelées Bipolaires (TJB).

Le four étudié est constitué d'une zone dans laquelle éclate un plasma d'oxygène aérien entre deux électrodes métalliques en surface d'une fritte de verre non fondue puis d'un bain de verre. La chaleur dégagée par le plasma permet dans un premier temps de fondre la matrice par convection et par rayonnement et dans un deuxième temps de brûler les déchets à traiter.

Dès que le verre devient suffisamment liquide, l'arc électrique est transféré dans le milieu en fusion, c'est ce que l'on appelle le chauffage par effet Joule ou chauffage ohmique. La présence de parois froides génère la formation d'un autocreuset plus ou moins épais suivant les conditions opératoires.

La modélisation totale du pilote SHIVA est engagée afin de définir des champs de température en différents points du four, des champs de vitesses de déplacement de la matière ou encore de définir des boucles de recirculation dans l'objectif de déterminer les meilleures techniques d'injection des déchets dans le four. Ainsi, nous serons à même d'optimiser les paramètres de fonctionnement de l'installation vis-à-vis d'une configuration spécifique ou d'un nouveau type de déchets à traiter.

Les résultats de modélisation sont également destinés à l'aide à la conception des évolutions futures du réacteur au fin d'une mise à l'échelle industrielle.

1 - 5 - 2 - Quel logiciel choisir ?

1 - 5 - 2 - 1 - Etude bibliographique

Depuis quelques années, avec le développement des outils informatiques, la puissance nécessaire à la modélisation tridimensionnelle n'est plus un obstacle, et on assiste à la naissance de codes de calculs commerciaux destinés à résoudre les équations de la thermique et de l'hydraulique dans les écoulements.

Une étude bibliographique sur les développements de différents codes de calculs et leur utilisation pour la simulation de procédés industriels est présentée dans la suite. Elle nous permettra de déterminer le logiciel le plus pertinent pour la modélisation de notre installation.

1 - 5 - 2 - 1 - 1 - Modélisation de l'arc électrique en 3D

/KADDANI A. et al, 1995/ étudient, en régime transitoire, la colonne d'un arc électrique dans un jet d'argon situé entre deux électrodes planes, à la pression atmosphérique. Ils considèrent un arc de 10 mm de long, sous un courant de 200 ou 300 A. Le code de calcul utilisé est soit le code Mélodie développé par EDF/LNH, soit un code de recherche 3D OMEGA. Les propriétés physiques des gaz sont celles déterminées par /DEVOTO R.S., 1973/. Les isothermes et isovitesses obtenues sont comparées entre elles, ainsi qu'à des résultats expérimentaux. Les auteurs montrent que la distribution de densité de courant au voisinage de la cathode est un paramètre clé pour la stabilité de l'arc. Lorsque la densité

maximale de courant dépasse une certaine valeur pour un profil de densité donné, l'arc peut devenir instable. L'utilisation d'un code tridimensionnel permet de déterminer les instabilités de l'arc qu'on ne peut pas observer en 2D, où la symétrie les empêche de se développer. Néanmoins, les champs moyens de l'écoulement calculés en 2D ou en 3D sont comparables, notamment dans le cœur de l'arc. Cette modélisation de la colonne d'arc est une base pour la modélisation complète des arcs électriques.

/GONZALES M., 1999/ a développé une modélisation numérique d'un arc électrique éclatant dans du SF₆ avec des géométries simples mais en traitant la turbulence et les fluctuations par un modèle tridimensionnel permettant de mettre en évidence les plus grosses structures de la turbulence. Le code de calcul utilisé lors de cette thèse est ESTET 3.3, développé par EDF, dans lequel /GONZALES M., 1999/ a intégré un modèle de turbulence, de type Large Eddy Simulation, et implémenté l'électromagnétisme (potentiel électrique, densité de courant, potentiel vecteur, champ magnétique, force de Laplace et effet Joule) permettant de simuler des arcs électriques en 3D. La notion de potentiel vecteur introduite dans ESTET lors de cette étude permet de traiter les forces électromagnétiques en 3D ce que ne permet pas le théorème d'Ampère, utilisé pour traiter des configurations 2D axisymétriques. Les résultats de simulation faisant intervenir le potentiel vecteur sont comparés à des valeurs expérimentales et l'on observe une bonne adéquation entre les deux méthodes.

/RAVARY B., 1999/ a, quant à lui, modélisé la zone plasma en étudiant les forces électromagnétiques mises en jeu lors de la génération d'un plasma d'arc triphasé éclatant entre trois électrodes en courant alternatif. L'auteur a mis au point un modèle analytique des forces électromagnétiques qu'il a ensuite intégré, sous la forme, d'un terme source dans le code de calcul FLUENT 5.0. L'arc étudié est instationnaire et tourne avec la fréquence du courant.



Figure I-16 : Eclatement d'un arc électrique triphasé entre 3 électrodes

Le modèle analytique développé permet d'évaluer les forces de Laplace dans un système d'arc triphasé, dans une géométrie simplifiée à partir de la formule de Biot et Savart. Le calcul en fonction du temps de ces forces s'exerçant sur les points d'un arc, dues au reste du circuit proche (électrodes et deux autres arcs), est réalisé ; les principales hypothèses sont les déplacements des arcs limités et l'assimilation des arcs à des conducteurs solides. La force est en moyenne centrifuge et dirigée vers le bas du four, elle

dépend du point de l'arc considéré et du temps. Elle a une période égale à une demi-période du courant. La périodicité provenant du courant affecte la zone limitée des arcs et a principalement des effets tridimensionnels, qui par ailleurs sont négligés. Les résultats de ce type de simulation ont été comparés qualitativement aux déformations des arcs visibles sur des films obtenus avec une caméra rapide et sont en accord avec l'expérimentation /FULCHERI L. et al, 1995/.

Ici le traitement original de l'arc électrique entré en tant que terme source dans le code de calcul FLUENT 5.0 paraît être bien adapté à cette configuration d'arcs triphasés en courant alternatif. Cependant le fait de ne traiter qu'une électrode et de faire abstraction des autres ne permet pas de définir la forme de l'arc comme on le recherche dans notre étude.

/BAUDRY C. et al, 2003/ étudient par une simulation 3D le comportement de l'arc électrique à l'intérieur de la tuyère d'une torche à plasma d'arc soufflé. Cette étude s'intègre dans la simulation globale d'un procédé de projection plasma. La modélisation est réalisée avec le code de calcul ESTET 3.4. Le but de la simulation est de mieux maîtriser la reproductibilité des propriétés du dépôt en caractérisant l'arc électrique. Les premiers résultats de modélisation montrent le comportement erratique de l'arc électrique dans la torche. Cependant, la température du gaz, la tension de l'arc et la fréquence de claquage semblent trop élevées par rapport aux valeurs expérimentales. Un travail sur une définition de conditions aux limites mieux appropriées est nécessaire afin de recalibrer le modèle.

I - 5 - 2 - 1 - 2 - Modélisation de procédés

/GATT J.M., et al., 1993/ a étudié la modélisation d'un four centrifuge supportant un plasma d'arc horizontal dans le but de fondre des oxydes hautement réfractaires. Cette

modélisation est intégrée dans le programme de prédiction des accidents graves de réacteurs nucléaires et plus particulièrement sur le comportement du résidu (corium) provenant de la fusion du cœur du réacteur. La modélisation du procédé développé par le CEA (VULCANO) s'est déroulée en deux étapes : une modélisation de l'arc électrique par le code Mélodie (EDF) et une modélisation du four par le code Castem 2000. Les calculs sont effectués en 2D avec un maillage reposant sur la méthode des éléments finis. Les conditions aux limites choisies correspondent aux mesures de pertes thermiques effectuées sur le pilote. La modélisation de l'arc électrique montre que l'écoulement est régi par deux jets en opposition. De plus la forte constriction de l'arc cathodique entraîne un maximum de dissipation radiative dans la région cathodique. La pénétration de l'azote dans la colonne d'arc est ralentie par la recirculation des gaz au niveau des électrodes ce qui limite la tension d'arc. Simultanément le fonctionnement du four est simulé par le code Castem 2000. Les résultats de calcul sont comparés avec les pertes thermiques dues au refroidissement des électrodes. /GATT J.M., et al., 1993/ note que les résultats sont similaires à la fin du calcul, par contre au départ, les résultats de simulation ne donnent pas de valeurs satisfaisantes. En conclusion, les résultats de simulation de l'arc électrique sont conformes aux valeurs expérimentales, cependant les calculs sont très longs, /GATT J.M., et al., 1993/ propose donc un modèle simplifié qui ne tient pas compte de l'arc plasma pour la simulation du fonctionnement du four. Les résultats ainsi obtenus sont en accord avec les expériences menées sur le procédé VULCANO.

/CHOUDHARY M.K., 1997/ a développé un modèle 3D afin d'étudier les échanges de matières et les transferts thermiques dans un four électrique industriel de fusion de verre. La puissance électrique du four est de 4,6 MW. Le but de cette étude est de déterminer et de corriger les conditions de débit et de température dans le four qui rendent le verre de mauvaise qualité en déterminant l'échauffement par effet Joule, le débit de verre, et la distribution de température. Le modèle développé repose sur les équations de conservation du potentiel électrique et de la quantité de mouvement. Le verre est chauffé par effet Joule puisque le four est constitué de six groupes d'électrodes plongeant dans le verre en fusion et permettant le transfert du courant. Les équations sont résolues en utilisant une méthode numérique basée sur les différences finies. Les résultats de simulation obtenus par ce code de calcul semblent être en accord avec les observations effectuées sur le four industriel bien que l'auteur précise que le modèle n'est pas encore suffisamment performant pour obtenir une prédiction fiable de la fusion du verre dans ce type d'installation.

/DUSSOUBS B., 1998/ s'est attaché à modéliser un procédé de projection plasma de poudre à l'aide du code de calcul ESTET 3.2, développé par EDF. L'auteur a séparé son

travail en deux grands thèmes que sont l'écoulement plasma et le traitement des particules. Dans le cadre de cette étude, le procédé utilise une torche à plasma d'arc soufflé, un injecteur de poudre placé en périphérie du jet de plasma et une cible sur laquelle la poudre doit se déposer. L'auteur a effectué plusieurs simulations en faisant varier l'injecteur (géométrie, position, débit du gaz vecteur), l'atmosphère du gaz environnant (influence du gaz plasmagène, du gaz gainant le plasma). Chaque étape de la modélisation a été confrontée à des résultats expérimentaux obtenus en laboratoire. Pour mener à bien toutes ces simulations, certaines modifications ont dû être apportées au code de calcul standard comme l'introduction de profils de vitesse et de température du gaz aux entrées du domaine de calcul, une détermination rigoureuse des propriétés thermodynamiques et de transport des mélanges gazeux, l'intégration des termes de chauffage des particules dans le module lagrangien et une correction des coefficients de transfert plasma-particules. Lors de cette étude, le module lagrangien d'ESTET 3.2 a été éprouvé et les résultats obtenus ont permis de mettre en évidence certains problèmes liés à l'injecteur de particules. C'est ainsi qu'un nouvel injecteur de forme courbe a été conçu et son utilisation permet d'obtenir une meilleure distribution des particules dans le panache de plasma et donc un meilleur rendu sur la cible.

/DOUCE A., 1999/ a développé une partie du code de calcul 3D, ESTET 3.2, appliqué à la modélisation du chauffage d'un bain métallique par un plasma d'arc transféré. La simulation du four de fusion a été réalisée en deux parties distinctes : le domaine plasma pour l'écoulement gazeux et le domaine bain relatif à l'étude de la fusion du métal. Ensuite, les deux domaines de calculs sont couplés par les conditions aux limites imposées sur les parois du bain dans les deux domaines. Cela revient à dire que les simulations des deux domaines sont menées en parallèle, jusqu'à atteindre un état "stationnaire", et que les résultats de champ de température, de vitesse et la répartition du potentiel électrique obtenus sur la paroi "métal" du domaine plasma deviennent une condition à la limite sur la paroi "métal" du domaine bain. Cette technique de couplage des deux domaines de calculs est dite de type "itérative". /DOUCE A., 1999/ s'est basé sur le code de calcul ESTET implémenté de l'électromagnétisme (en relation avec /GONZALES M., 1999/) et a développé, pour le domaine plasma, un module de transfert de chaleur par rayonnement dans les milieux semi transparents. Ainsi un module de rayonnement déjà existant dans le code ESTET standard a été remplacé par un module plus général permettant de restituer toute l'énergie rayonnée par l'arc sur les parois de la chambre de chauffage avec une bonne précision. Les résultats de simulation des écoulements semblent satisfaisants à la fois dans le domaine plasma et dans le bain métallique. Les simulations menées dans le bain métallique montrent que la

configuration du four choisi conduit à une stratification thermique importante et rend difficile la fusion complète du métal. Ces calculs semblent réalistes car les expériences menées sur le four expérimental ont montré qu'il est souvent difficile de maintenir le bain métallique liquide.

/FRETON P., 2002/ a étudié une torche de découpe de métaux par plasma thermique sous oxygène. La torche est commercialisée par Air Liquide, elle fonctionne à basse intensité en créant un dard plasma très fin (de l'ordre de 1 mm). Le but de la modélisation dans cette étude est de caractériser le plasma d'oxygène qui est créé. La modélisation du procédé a été entreprise avec le code de calcul FLUENT intégrant plusieurs modifications apportées par /GONZALEZ J.J., 1992/. Ainsi plusieurs modules spécifiques ont été introduits comme la résolution du potentiel vecteur pour tenir compte de l'électromagnétisme en 3D (méthode décrite par /GONZALES M., 1999/) ou encore un module de traitement du rayonnement. Le code, ainsi modifié est validé sur un cas d'arc libre. Ces simulations en 2D ont été confrontées à des résultats expérimentaux obtenus par spectroscopie d'émission ; la modélisation 2D est validée puisque l'auteur obtient des résultats cohérents entre l'expérimentation et la simulation. Ensuite, une approche 3D de la modélisation a été effectuée afin de simuler l'ensemble du procédé de découpe par un plasma d'arc transféré entre une électrode (cathode) et une tôle d'acier, méthode ne présentant plus de plan de symétrie particulier. La simulation 3D a également été validée sur un arc libre. La simulation globale en 3D a ensuite été confrontée à la simulation en 2D et selon /FRETON P., 2002/, la caractérisation du plasma en surface de la tôle d'acier est meilleure en utilisant le code 2D alors que l'étude de la saignée réalisée lors de la découpe plasma est mieux définie par le code 3D.

/DEME I., 2002/ a étudié la production de noir de carbone dans un réacteur supportant un plasma d'arc transféré entre 3 électrodes. La modélisation a été menée avec le code de calcul FLUENT 5.0 modifié par /RAVARY B., 1999/. De plus, des modifications ont été apportées au pilote en particulier sur la position de l'injection du gaz plasmagène et sur sa géométrie, parfaitement cylindrique intégrant en partie haute du four un cône évitant ainsi aux particules de noir de carbone de recirculer dans la zone plasma. L'auteur s'est penché sur les propriétés radiatives d'un milieu diphasique constitué d'un plasma et de particules de noir de carbone. Il considère que seules les particules de carbone rayonnent et qu'elles sont définies par le domaine de diffusion de Rayleigh. En conclusion, lors de la modélisation, le milieu est considéré comme purement absorbant et le rayonnement est pris en compte par FLUENT via un coefficient d'absorption sans adaptation particulière du code de calcul. Dans

cette étude, la modélisation de la formation de noir de carbone est simplifiée puisque seuls deux gaz sont considérés : l'azote et le méthane. Ces deux composés étant considérés comme deux espèces non réactives, la cinétique de craquage du méthane, puis la formation des particules de carbones ne sont pas modélisées. Les résultats de simulation sont confrontés à des valeurs expérimentales et selon l'auteur, après un ajustement de certains paramètres (conductivité thermique des parois verticales et horizontales), les transferts de chaleur et le champ de température dans le réacteur sont assez bien décrits quelque soit le mode de fonctionnement (avec ou sans injection d'hydrocarbure). La fin de l'étude a porté sur une tentative de dimensionnement d'une unité industrielle à partir des données de simulation.

I - 5 - 2 - 1 - 3 - Conclusions sur l'étude bibliographie

Cette étude bibliographique montre qu'il existe bien deux principaux codes de calculs commerciaux performants (ESTET standard, FLUENT) mais aussi des codes développés localement afin de répondre des besoins précis. Cependant, on remarque également que les codes commerciaux ne peuvent pas être utilisés en version standard pour modéliser de manière globale des unités de production ou des réacteurs expérimentaux.

Chaque étude particulière nécessite un développement spécifique de l'outil de calcul afin d'obtenir des résultats en accord avec les résultats expérimentaux.

I - 5 - 2 - 2 - Le code de calcul retenu pour notre étude

Dans notre cas, nous avons choisi d'utiliser le code de calcul ESTET 3.41 accompagné du module effet Joule et du module arc électrique. Ce logiciel, développé par EDF /DELALONDRE C. et al, 1997/ est un code de simulation numérique d'écoulements, turbulents ou laminaires, tridimensionnels, écrit en volumes finis. Le logiciel permet la simulation instationnaire, et peut ainsi être utilisé pour atteindre un état quasi-stationnaire.

Ce code de calcul semble être le plus adapté afin de répondre à nos études. En effet, il permet de traiter des arcs électriques en 3D puisqu'il intègre dans ses solveurs, le module de résolution des équations de l'électromagnétisme en 3D par le biais du potentiel vecteur.

Dans notre cas, le plasma est généré entre deux électrodes métalliques aériennes, il ne présente aucun axe de symétrie, c'est pourquoi nous sommes contraints de réaliser nos simulations en 3D.

Les développements réalisés dans le cadre de l'étude de fours de verrier ont permis d'adapter le logiciel pour un traitement en continu des situations dans lesquelles on rencontre des zones liquides et des zones solides.

II - DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET METHODES

II - 1 - Le pilote

Le pilote SHIVA (Système Hybride d'Incinération Vitrification Avancée) présenté sur la Figure II-1 est constitué d'un four supportant un dispositif plasma à Torches Jumelées Bipolaires (TJB), d'un creuset contenant le bain de verre, d'un inducteur et d'un système de traitement des gaz. Le réacteur ainsi que les torches sont refroidis à l'eau sous pression par deux circuits totalement indépendants. L'installation est constituée des ensembles suivants :

- ✓ un système à induction intégrant des organes comme un générateur à haute tension et haute fréquence permettant de fournir un courant à une fréquence d'environ 300 kHz nécessaire à la fusion du verre,
- ✓ un four à plasma intégrant les deux torches aériennes fonctionnant sous oxygène et des parois métalliques refroidies,
- ✓ un système de filtration constitué d'un filtre expérimental suivi d'un filtre à manches et d'une colonne de lavage,
- ✓ enfin un système annexe de refroidissement de tous les composants de l'installation.

L'installation étant un pilote en cours de développement, elle est actuellement placée en zone inactive, c'est-à-dire que l'on ne traite que des déchets simulés.

II - 1 - 1 - Le chauffage par induction

II - 1 - 1 - 1 - Le générateur à haute fréquence

Le générateur Haute Fréquence (287 kHz) fournit une puissance maximale de 200 kW. Ce générateur est constitué d'un redresseur comprenant 10 ponts de thyristors, refroidis par convection forcée d'air et par circulation d'eau sous pression.

Le paramètre de régulation du générateur est la puissance délivrée. La tension et l'intensité délivrées s'adaptent selon la consigne de puissance et l'impédance de la charge (bain de verre). La puissance peut être commandée en local sur le générateur ou à distance devant le four.

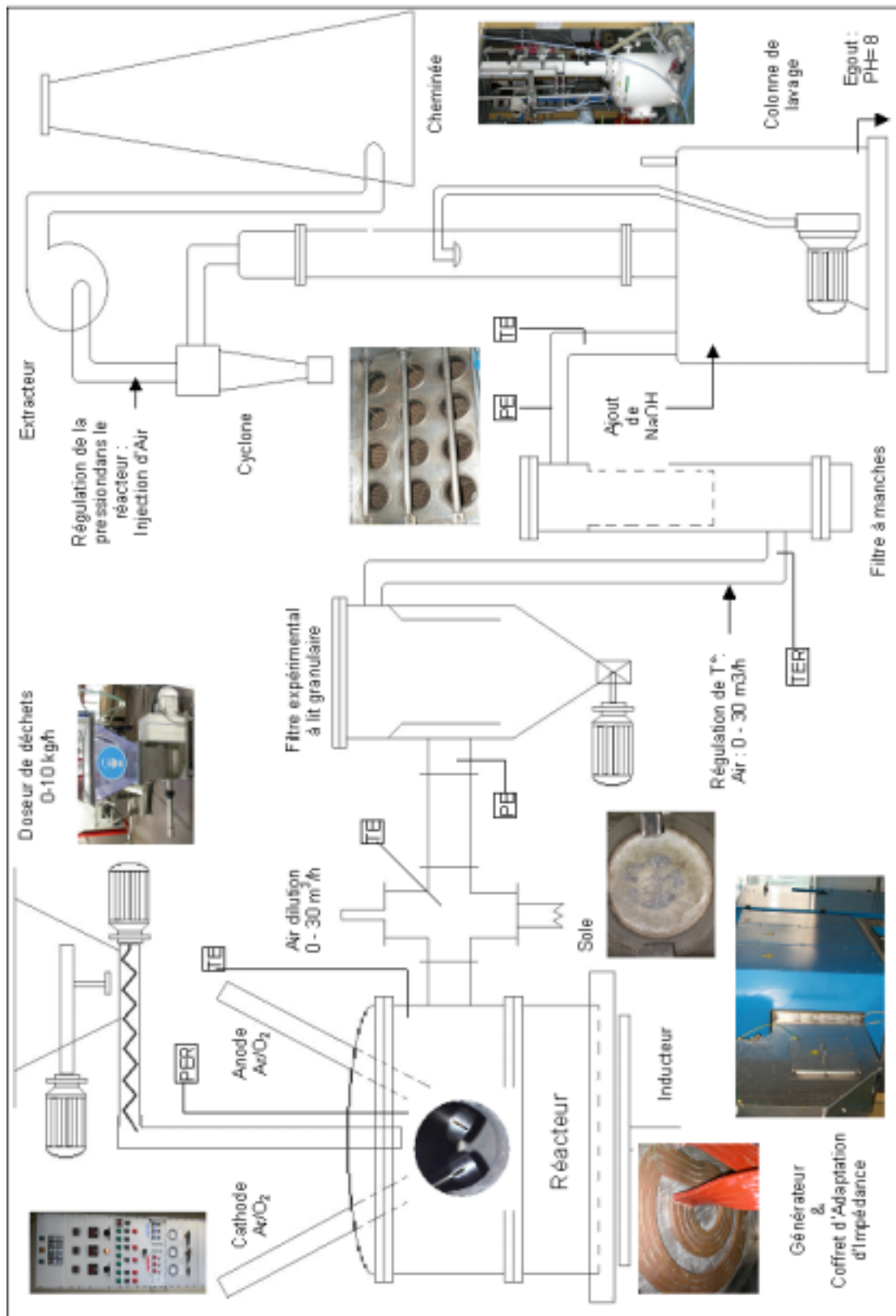


Figure II-1 : Synoptique d'ensemble de l'installation SHIVA

II - 1 - 1 - 2 - Le coffret d'adaptation d'impédance

Il permet d'adapter la charge vue par le générateur HF pour un fonctionnement optimum. En effet, l'impédance varie en fonction de la résistivité du verre dans le creuset ainsi que de la configuration inducteur - charge. Dans le but de faire face à différents types de verre, le coffret (CAI) est donc composé d'un ensemble de capacités refroidies à l'eau sous pression, montées en élévateur capacitif. Ceci permet d'élever la tension entre la sortie du générateur et les bornes de l'inducteur et permet également d'ajuster la fréquence et l'impédance.

Le coefficient d'élévation a été fixé à 10 pour un fonctionnement nominal avec une charge habituelle.

II - 1 - 1 - 3 - La ligne d'induction et l'inducteur

La ligne d'induction permet de passer la tension corrigée par le CAI à l'inducteur. Cette ligne est dessinée spécifiquement pour amener le courant à haute fréquence vers l'inducteur sans perturbation liée à la HF (concentration de lignes de champ en surface, problème d'ignition d'arcs électriques vers les parois métalliques, ...). Elle est constituée de deux plaques de cuivre énergiquement refroidies et isolées par des feuilles de téflon. La ligne est entièrement capotée par un caisson en aluminium qui assure un blindage électromagnétique et une isolation électrique pour les intervenants.

La liaison avec l'inducteur est obtenue par serrage d'une entretoise sur les méplats de la ligne et de l'inducteur. Ce dernier, horizontal et plat, ayant une forme de spirale est constitué de tubes de cuivre enroulés en "escargot" formant deux spires d'un diamètre extérieur de 560 mm.

II - 1 - 2 - Le système plasma

Le système plasma est constitué de deux électrodes métalliques aériennes, d'un système d'amorçage de l'arc électrique (starter) et d'un générateur de courant continu.



Figure II-2 : Photographie des torches jumelées bipolaires

II - 1 - 2 - 1 - La cathode



Figure II-3 : Photographie de la cathode associée à ses manchons

Elle est composée d'une électrode de cuivre de 12 mm de diamètre supportant à son extrémité une pointe à 90° dopée par 2 % de ThO_2 . Cette électrode est gainée par un premier manchon en cuivre refroidi à l'eau ; elle permet la circulation d'argon autour de la cathode afin de diminuer son érosion par oxydation. Un second manchon en inox, également refroidi, sert à injecter un autre gaz tel que l'oxygène à la périphérie du jet plasma issu de

la torche.

II - 1 - 2 - 2 - L'anode



Figure II-4 : Photographie de l'anode associée à ses manchons

Elle est constituée d'une électrode de cuivre de 16 mm de diamètre. Un premier manchon en cuivre vient se positionner autour de l'électrode afin de lui assurer un gainage de protection à l'argon pour limiter son érosion, tandis qu'un second manchon en inox permet la circulation d'un autre gaz ou d'un mélange de gaz en périphérie du jet plasma.

II - 1 - 2 - 3 - Le système d'amorçage de l'arc

Le schéma du système d'amorçage de l'arc est présenté sur la Figure II-5.

Les manchons des deux électrodes sont connectés au travers d'un circuit comprenant : un contacteur commandé à distance, une résistance ballast ($\sim 1 \Omega$) refroidie par circulation d'air et l'enroulement secondaire d'un transformateur également refroidi par circulation d'air. Aux bornes de l'enroulement primaire du transformateur est connecté un générateur HF (10 000 V – 1,5 à 2 MHz).

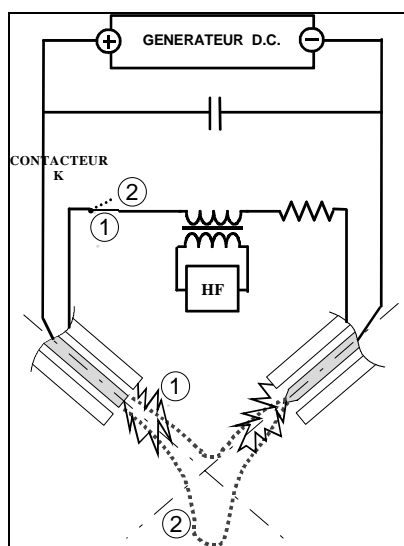


Figure II-5 : Illustration de l'amorçage de l'arc

Après établissement de la tension à vide entre les deux électrodes, les extrémités respectives de leurs manchons étant distantes d'environ 25 mm, le contacteur K est fermé. Deux étincelles sont alors créées entre chaque électrode et son manchon, auxquelles viennent immédiatement se substituer deux arcs. La zone d'espace faiblement chargée se réduit considérablement, comme illustré sur la Figure II-5 et l'ouverture du contacteur K provoque le transfert de l'arc entre les deux électrodes. Le four est connecté à la terre, les électrodes étant portées respectivement aux potentiels (+) et (-). Les manchons des électrodes, isolés électriquement, se trouvent en potentiel flottant.

II - 1 - 2 - 4 - Le générateur de courant continu

Le redresseur MERLIN GERIN est alimenté par un réseau 380 V et présente les caractéristiques suivantes : fréquence : 50 kHz ; puissance : 170 kVA ; U_{primaire} : 380 V ; $U_{\text{secondaire}}$: 450 V. Le courant est redressé par un pont de Graëtz refroidi par convection forcée, et constitué par six thyristors. Trois résistances ballast (450 Ω , 800 W) en série permettent la commande du pont à vide.

L'intensité maximum disponible est de 300 A.

Une self, d'intensité nominale 300 A et d'inductance 12 mH, sert à la fois à réduire le facteur d'ondulation du courant d'arc (rapport de l'écart des valeurs minimales et maximales du signal sur sa valeur moyenne), et à le stabiliser lors des rapides variations de charge dues aux instabilités du plasma.

II - 1 - 3 - Le four

Le réacteur se décompose en quatre parties distinctes : le four, le creuset, la voûte et l'alimentation en déchets.

II - 1 - 3 - 1 - Les parois et la voûte

Le four est constitué d'un cylindre de 600 mm de diamètre et 250 mm de hauteur en tôle d'acier inoxydable de 6 mm d'épaisseur. Les parois supportent quatre piquages placés à 90° les uns des autres permettant l'évacuation des gaz et le positionnement d'un hublot d'observation de la colonne d'arc et de la surface du bain de verre. Deux des piquages sont des réserves.

La voûte se compose d'un tronc de cône en double paroi d'acier inoxydable permettant le passage d'eau de refroidissement. Elle supporte les deux torches plasma, le système d'injection des déchets, les capteurs de température et de pression et un hublot d'observation de l'arc électrique et du verre en fusion.

II - 1 - 3 - 2 - Le creuset et la sole

Le creuset, en double paroi de tôle d'acier inoxydable de 6 mm d'épaisseur, est constitué d'un cylindre de 600 mm de diamètre et 200 mm de hauteur. Le creuset est également pourvu d'une vanne guillotine permettant la coulée du verre en fusion lors d'essai en continu.

Il repose sur une sole minérale présentant une bonne conductivité thermique et intégrant un réseau de tubes également en matière minérale permettant la circulation d'eau de refroidissement. La sole est donc, par le choix de ses matériaux de construction, quasiment transparente aux champs électromagnétiques sans être sectorisée.

II - 1 - 3 - 3 - L'alimentation en déchets

Suivant le type de déchet traité, nous avons à disposition plusieurs systèmes d'injection.

Les déchets solides sont envoyés dans le four par l'intermédiaire d'un doseur volumétrique à vis sans fin dont le débit d'injection est régulé par action sur la fréquence de rotation du moteur associé à la vis.

Les déchets liquides sont introduits gravitairement ou par l'intermédiaire d'une pompe dont le débit est régulé.

Les débits d'alimentation peuvent varier de 1 à 10 kg.h⁻¹.

II - 1 - 4 - Le traitement des fumées

Le traitement des gaz s'effectue en trois étapes distinctes : la dilution, la filtration et le lavage des gaz.

II - 1 - 4 - 1 - La dilution

Réalisée avec de l'air à température ambiante, elle permet de refroidir brutalement les gaz issus du four de combustion ; ils passent d'une température voisine de 500 à 200 °C (cette température est à maîtriser pour obtenir de bonnes conditions de filtration).

Le débit d'injection de l'air de dilution est directement fonction de la température des gaz en aval. En régime permanent de fonctionnement, il est proche de $20 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

II - 1 - 4 - 2 - La filtration

Le système de filtration comporte deux filtres : un filtre expérimental à lit granulaire et un filtre à manches.

Le filtre à lit granulaire expérimental, étudié sur l'installation, se présente sous la forme d'un réservoir de billes de verre millimétriques. La filtration s'effectue par passage des fumées à épurer au travers de la masse de billes. La température des gaz dans ce filtre est maintenue à 200°C grâce à un calorifugeage et par chauffage par des résistances électriques si besoin. Le suivi de colmatage est assuré par la mesure de perte de charge dans le filtre. Le soutirage des billes en partie basse du filtre couplé à l'apport de nouvelles billes en partie supérieure permet le décolmatage du filtre. Quant aux billes chargées de poussière, elles sont destinées à être recyclées dans le four de combustion - vitrification en tant qu'ajout de verre. Ce recyclage n'est pas encore opérationnel.

Les gaz issus de ce filtre sont ensuite envoyés vers un filtre à manches. Ce dernier est constitué de 12 manches en téflon. Comme pour le filtre à billes, le suivi de la perte de charge dans le filtre indique le taux de colmatage des manches ; dès la valeur seuil atteinte, le décolmatage est effectué par contre pression et les poussières sont alors recueillies dans un cendrier.

Ensuite les gaz sont acheminés vers la colonne de lavage.

II - 1 - 4 - 3 - La colonne de lavage

Cette colonne de 3,78 m de hauteur est conçue en fibre de verre mélangée à de la résine. Elle est remplie d'anneaux Raschig afin d'augmenter la surface d'échange entre les gaz

et la solution de lavage. Elle fonctionne comme un éjecteur à jet liquide et assure une dépression de 50 mm de colonne d'eau.

Les gaz sont alors lavés par pulvérisation d'eau sodée (3 g.L^{-1}), ce qui permet de mettre en solution les acides présents sous forme gazeuse (HCl , H_2SO_4 , ...). Le pH est maintenu à environ 7,5 durant l'essai. Le volume de la solution de lavage est de 100 L, et une pompe centrifuge assure une pulvérisation de $2 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ dans la colonne.

A la fin de l'essai, le pH est vérifié et si besoin ajusté à 7,5, puis la solution est envoyée à l'égout.

Les gaz sont ensuite dévésiculés par passage à travers un séparateur de gouttes puis rejetés à l'atmosphère grâce à un extracteur.

II - 1 - 5 - Le système de refroidissement

L'ensemble des organes de l'installation est refroidi par circulation d'eau sous pression dans des circuits indépendants. Le système de refroidissement est constitué d'un réservoir mis à la pression atmosphérique ; ce dernier alimente une pompe centrifuge qui assure une pression de 5 bars dans les différents circuits de refroidissement. L'eau traverse ensuite un échangeur à plaques permettant de refroidir l'eau de retour grâce à la circulation à contre courant d'eau industrielle (à température ambiante) ou d'eau glacée (présentant une température constante fixée à 17°C). L'eau de refroidissement de l'installation circule en circuit fermé et sa température est mesurée en sortie de l'échangeur. Afin de réaliser les bilans thermiques, les circuits d'eau sont tous équipés d'un thermocouple et d'un débitmètre sur la sortie.

Les torches plasma bénéficient d'un système de refroidissement totalement indépendant car elles nécessitent une pression d'eau beaucoup plus élevée. En effet, leur constitution très complexe engendre des pertes de charges importantes. Ce groupe de refroidissement est similaire dans sa conception à celui précédemment décrit.

II - 2 - Description d'un essai de combustion/vitrification

Nous nous limiterons ici à la description d'un essai représentatif du fonctionnement typique du réacteur SHIVA, ainsi qu'à la présentation des résultats obtenus en ce qui concerne la combustion des déchets, le verre obtenu, et la comparaison qui peut être faite entre les valeurs expérimentales et les résultats de modélisation.

II - 2 - 1 - Préambule

L'essai présenté ici concerne l'étude de l'incinération de résines échangeuses d'ions en surface d'un bain de verre en fusion. Les résines étudiées sont représentatives de celles rencontrées dans les circuits primaires de refroidissement du cœur des centrales nucléaires ou dans les installations de traitement des eaux des piscines de stockage.

Le but de cet essai est d'évaluer la faisabilité de la combustion des résines par le plasma en maintenant le bain de verre en fusion grâce à l'induction. Pour ce faire, on étudie le comportement des résines lors de leur incinération (forme de combustion), le comportement du groupement sulfonique contenu dans ce déchet (intégration dans le verre ou départ dans les fumées), et on caractérise les différents dépôts rencontrés dans l'installation à l'issue de l'essai.

Durant l'essai, tous les paramètres de fonctionnement de l'installation sont enregistrés (débit d'eau de refroidissement, température des différents circuits, tension et intensité de l'arc, ...) afin de dresser des bilans thermiques rigoureux qui seront nécessaires à la définition des conditions aux limites lors de la modélisation du procédé.

II - 2 - 2 - Composition du verre utilisé

Pour cet essai, nous avons utilisé un verre de type boro-sodo-silicaté, correspondant à un mélange homogène de deux frites de verre commerciales.

La composition massique de ce mélange de fritte de verre est présentée dans le Tableau II-1.

Composition en oxydes	SiO ₂	B ₂ O ₃	Na ₂ O	Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃	Li ₂ O	ZnO	ZrO ₂
% massique	53,09	18,36	12,05	7,98	2,67	2,48	1,32	1,67	0,38

Tableau II-1 : Composition massique de la fritte de verre

La fritte de verre est colorée en marron par la présence d'oxydes de fer. Cette légère coloration limite les pertes par rayonnement du verre vers les parois du creuset et facilite la fonte du verre. Cela aboutit à améliorer le transfert des courants induits dans le verre.

La composition du verre définie ci-dessus correspond à un bon compromis, en l'état actuel de la technologie, pour la conduite des essais et pour un confinement spécifique de la charge minérale (dont les radioéléments) contenus dans les résines échangeuses d'ions.

II - 2 - 3 - Composition et mode d'injection du déchet

Le déchet traité lors de cet essai est constitué de résines échangeuses d'ions anionique et cationique. Elles sont toutes deux formées d'un squelette carboné (de type polystyrène) intégrant un groupement ammonium quaternaire (pour les résines anioniques) et un groupement sulfonique (pour les résines cationiques). Leur pouvoir calorifique inférieur (PCI) est voisin de 13 MJ.kg^{-1} (pour les résines humides).

Pour l'essai présenté ici, ces résines ont été saturées avec différents éléments (cf. Tableau II-2 et Tableau II-3) simulant les radionucléides mais aussi les produits de corrosion et permettant de tracer le devenir du déchet dans le four. On pourra ainsi mesurer la teneur de ces éléments dans le verre et dans les poussières retrouvées sur les parois du four ou entraînées par les gaz dans les différents filtres.

Ces résines se présentent sous forme de billes millimétriques et sont injectées humides (teneur en eau voisine de 50% massique) dans le four.

Eléments	Co	Cs	Fe	Ni	B	Li
Charge minérale	0,0404	0,0485	3,6438	8,5063	6,1580	7,1563

Tableau II-2 : Taux de charges minérales du déchet (g.kg^{-1} de résines humides à 50%)

Elements	H ₂ O	C	H	S	O	N
Teneur en organique	50	34,5	3,5	3,5	7,0	1,5

Tableau II-3 : Composition élémentaire en composés organiques du déchets (en % massique)

II - 2 - 4 - Initialisation des débits gazeux et positionnement des torches

Les électrodes sont placées en position de démarrage, c'est-à-dire qu'elles plongent dans le four de 26,5 cm (mesure prise par rapport au repère de la voûte) et forment un angle d'environ 90° .

L'amorçage de l'arc plasma se fait pour une tension à vide de $\sim 300\text{V}$ et une consigne d'intensité proche de 150 A. Les débits d'argon dans les manchons sont respectivement pour l'anode et la cathode de 40 et de 30 NL.min^{-1} en périphérie des torches.

II - 2 - 5 - Déroulement de l'essai

Cet essai d'incinération - vitrification s'est déroulé sur deux jours avec un redémarrage sur verre figé. Les différents résultats sont regroupés et le déroulement de l'essai est présenté sur une seule journée.

Le creuset est préalablement rempli avec 49 kg de mélange de fritte de verre, et la trémie du doseur contient 9 kg de résines sèches mélangées.

Tout d'abord, le plasma est démarré seul, l'intensité est rapidement portée à 230 A ; la tension résultante est de 85 V soit une puissance électrique fournie de 19,55 kW. Cette première phase a pour but de fondre une partie du verre. Au cours du démarrage de l'essai, l'intensité est souvent modifiée en tenant compte de la volatilisation d'éléments du verre. Dès que l'ambiance se charge, on limite la puissance fournie au système en diminuant l'intensité de l'arc.

Après 1h30 de fonctionnement du plasma, un thermocouple est introduit dans le bain de verre : la température est mesurée en deux endroits différents (cf. Figure II-6) :

- ✓ $t = 240^{\circ}\text{C}$ au fond du creuset (surface de la sole)
- ✓ $t = 315^{\circ}\text{C}$ à 5 cm au-dessus de la sole

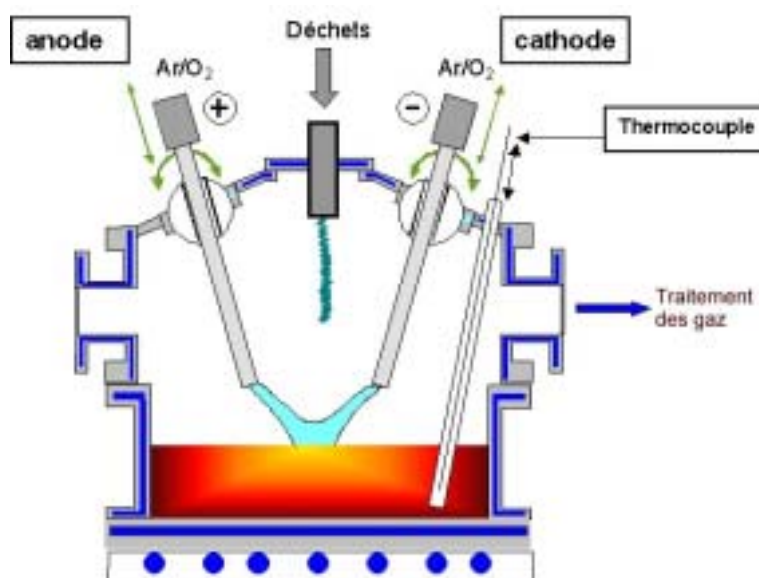


Figure II-6 : Mesure instantanée de la température du verre

Le générateur HF est enclenché afin de fondre plus rapidement et surtout de manière plus homogène la totalité du verre contenu dans le creuset. Dès que les pertes thermiques dans la ligne d'induction et dans l'inducteur diminuent de manière significative, on peut conclure à un couplage de l'induction dans le verre. On s'assure que la totalité du verre est fondue par la vérification des pertes thermiques dans les différents circuits de refroidissement, soit 3h39min après le démarrage. L'injection des résines débute avec un débit de $3,90 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$.

Ensuite, en fonction des analyses de gaz et de l'observation de l'ambiance dans le four, les débits d'oxygène sont ajustés, on passe à $80 \text{ NL}\cdot\text{min}^{-1}$ dans les deux manchons.

Après environ 8h00 de fonctionnement, l'essai est arrêté pour vérifier l'état des électrodes que l'on remplace. Dans le même temps, le générateur est arrêté afin de permettre un refroidissement du verre durant environ 5 heures avant de redémarrer sur une matrice solidifiée.

La procédure de redémarrage est la même qu'au lancement de l'essai et après 1h20, durée correspondant à la phase d'amorçage, l'alimentation en déchet est remise en fonctionnement.

Un relevé des analyses de gaz rejetés à la cheminée a été effectué après environ 18h00 d'essai et les résultats sont les suivants :

- ✓ [NO] = 660 ppm,
- ✓ [NO₂] = 904 ppm,
- ✓ soit au total [NO_x] = 1564 ppm.

Après incinération de 56,570 kg de résines, l'alimentation en déchets est stoppée ainsi que le plasma. La température du bain de verre est relevée à plusieurs niveaux (cf. Figure II-6) :

- ✓ à la surface de la sole : $t = 722^{\circ}\text{C}$,
- ✓ à 3cm au-dessus de la sole: $t = 990^{\circ}\text{C}$,
- ✓ à 5cm au-dessus de la sole: $t = 1120^{\circ}\text{C}$,
- ✓ à 7cm au-dessus de la sole: $t = 1200^{\circ}\text{C}$,
- ✓ à 9cm au-dessus de la sole: $t = 1110^{\circ}\text{C}$.

Le bain de verre est agité par l'intermédiaire d'une canne d'alumine et le chauffage par induction est maintenu durant 15 minutes environ pour améliorer l'homogénéité du verre, et assurer une bonne intégration des éléments minéraux dans la matrice.

La durée de fonctionnement des torches est de 17h51min pour 9h10min d'injection. 56,570 kg de résines échangeuses d'ions humides ont été incinérées avec un débit moyen d'injection de $5,32 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$.

Le four est démonté et des échantillons de verre, de poussières et de la solution de lavage sont prélevés et analysés au laboratoire afin de réaliser un bilan matière le plus correct possible.

Les Figure II-7 et Figure II-8 présentent l'évolution des paramètres électriques de l'arc plasma et du générateur d'induction.

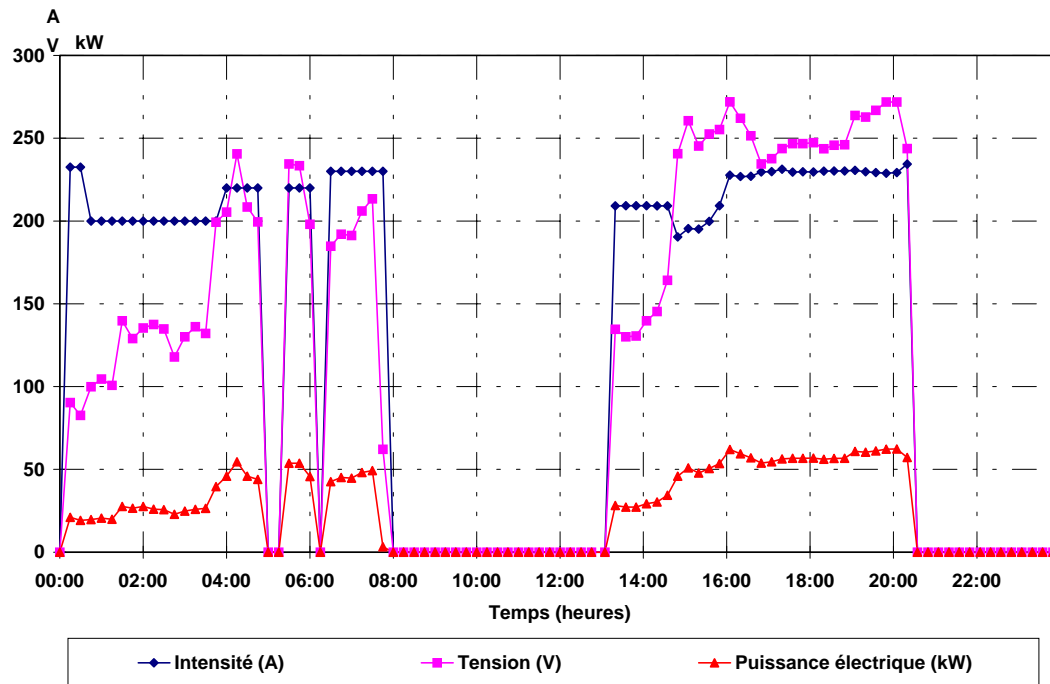


Figure II-7 : Paramètres électriques de l'arc

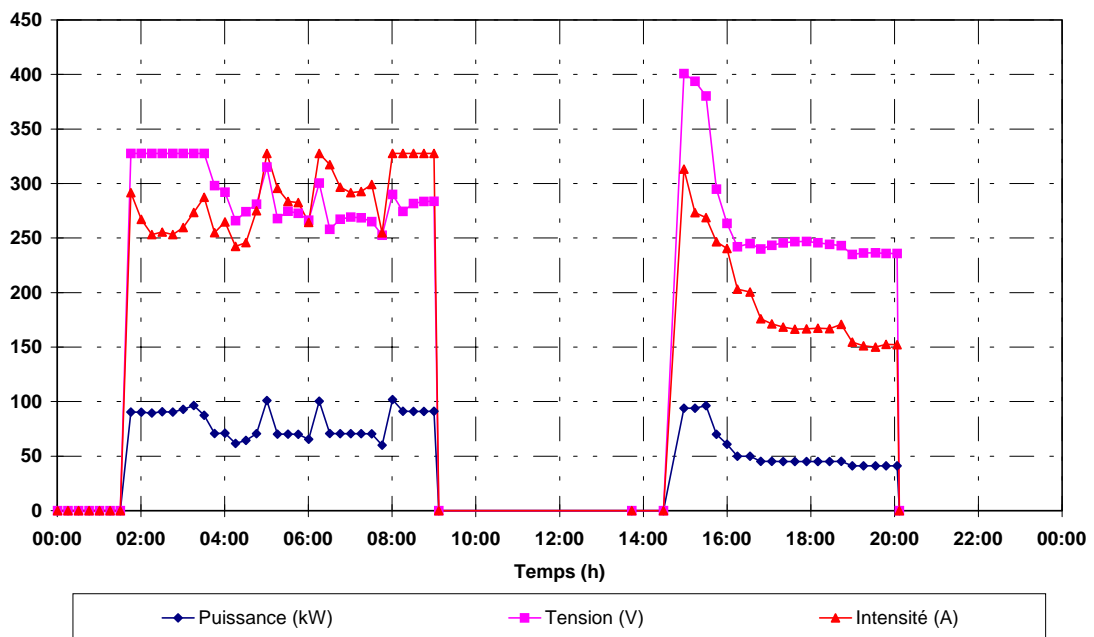


Figure II-8 : Paramètres électriques du générateur d'induction

II - 2 - 6 - Bilans matières

II - 2 - 6 - 1 - Etude du verre

II - 2 - 6 - 1 - 1 - Analyse macroscopique

Le verre élaboré est présenté sur la photographie de la Figure II–9. Pour ce type d'essai de courte durée, le verre contenu dans le creuset n'est pas coulé mais recueilli sous la forme d'un bloc dans le creuset. Ce bloc de verre pèse 47,70 kg, il est circulaire (d'un diamètre de 576 mm). L'épaisseur de l'autocreuset en paroi de la virole creuset est de 12 mm alors que sur la sole, son épaisseur varie de 8 mm en périphérie à 4 mm au centre.

Le bloc de verre est d'aspect assez homogène en couleur et en texture ; on ne distingue pas de stratifications, ni d'inclusions.

La Figure II–9 montre l'autocreuset c'est-à-dire la fine couche de fritte de verre faisant l'interface entre le verre en fusion et les parois froides du creuset. On observe ici les paillettes de fritte de verre agglomérées mais non fondues caractéristiques de l'autocreuset.

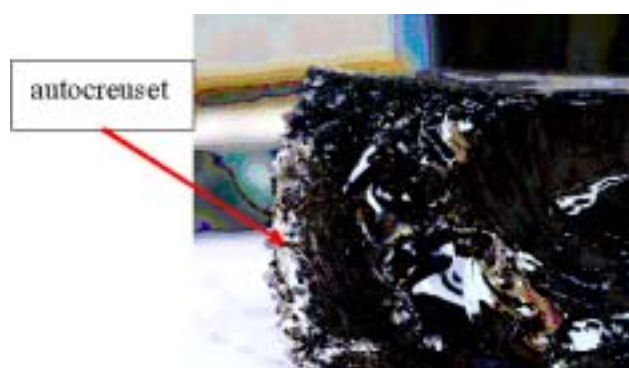


Figure II–9 : Photographie d'une coupe verticale du bloc de verre présentant l'autocreuset

Des échantillons de verre ont été prélevés à différents endroits dans le creuset, comme il est montré sur la Figure II–10. Ils sont ensuite analysés afin de déterminer la composition chimique du verre obtenu et de vérifier l'homogénéité du verre.

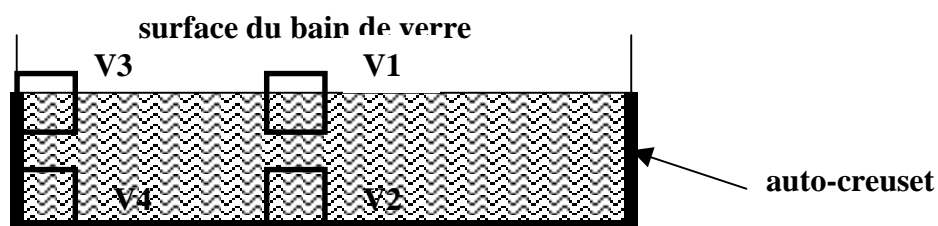


Figure II–10 : Localisation des prises d'échantillons dans le creuset

II - 2 - 6 - 1 - 2 - Analyses physico-chimiques du verre

Afin de quantifier les éléments présents dans le verre, on a recours aux trois types d'analyses suivantes.

✓ la fluorescence X

Cette méthode est utilisée pour doser les éléments ayant une masse molaire supérieure à celle du sodium soit 23 g.mol^{-1} . Le protocole opératoire consiste en une refusion à 1000°C d'un échantillon de verre à analyser (2g) ; pour homogénéiser l'échantillon on ajoute 6g de tétra-borate de lithium (transparent à la fluorescence X) dans une coupelle en platine. Une fois refroidi, l'échantillon est soumis à un faisceau d'électrons et on mesure le signal de fluorescence X associé.

✓ l'ICP

Cette technique analytique nous permet de doser le potassium, le bore et le lithium : un échantillon de 200 mg de verre broyé est mis en solution par attaque acide avec un mélange d'acide nitrique et d'acide chlorhydrique chauffé par micro-ondes. Une fois la solution refroidie, on ajoute de l'acide fluorhydrique et on injecte l'échantillon dans le plasma. Le signal obtenu, comparé à une table, permet d'obtenir la teneur des éléments désirés.

✓ le LECO

Les analyses conduites sur cet appareil permettent de déterminer la concentration en soufre et en carbone dans un échantillon de matière solide ou liquide. L'appareillage est adapté à des mesures dans un verre si sa température de transition est suffisamment faible. L'échantillon de verre broyé (100 mg), avec ajout de tungstène favorisant l'évaporation est évaporé dans un four à induction portant l'échantillon à une température voisine de 2000°C . Le carbone et le soufre sont alors oxydés en CO_2 et SO_3 et ils sont dosés par chromatographie en phase gazeuse.

Les résultats d'analyse sont présentés dans le Tableau II-4 : on constate un léger appauvrissement de la matrice en certains éléments qui ont été volatilisés par surchauffe locale du verre (SiO_2 , B_2O_3 , Na_2O) et un enrichissement en Li_2O , NiO et Fe_2O_3 . Ces éléments correspondent aux charges minérales des résines intégrées dans le verre. En ce qui concerne

le bore, 350 g sont introduits par le déchet et le verre élaboré est cependant appauvri en cet élément. Ce constat s'explique par une vaporisation importante du bore lors du démarrage de la fusion de verre avec le plasma pour former des borates de sodium et de lithium.

Le soufre est un élément qui s'incorpore très difficilement dans les matrices de verre borosilicaté. En effet, le comportement du soufre à la vitrification est étroitement lié à l'état redox dans lequel il se trouve. Le soufre peut exister sous 4 états d'oxydation (S^{+VI} , S^{+IV} , S^0 , et S^{-II}) et seuls les états +VI et -II lui permettent d'être chimiquement dissous dans les oxydes fondus constituant le verre en fusion. Dans les états +IV et 0, le soufre est stabilisé sous forme gazeuse. Il peut être dissous physiquement dans le verre fondu (sans liaison chimique) ou être volatilisé.

En partant du principe qu'un gaz est plus difficilement retenu dans un verre en fusion qu'une espèce ionique (dont les interactions avec le mélange sont plus fortes), augmenter la solubilité du soufre dans un verre d'oxydes consiste à se placer dans les conditions où le soufre se présente majoritairement sous la forme ionique, c'est-à-dire dans des conditions très oxydantes ou très réductrices. Dans ce cas, il se dissout dans la matrice vitreuse soit sous forme oxydée pour former des sulfates dissous, soit sous forme réduite pour former des sulfures dissous. Ce principe a été vérifié sur un verre borosilicaté par /SCHREIBER H.D. et al, 1987/ qui obtiennent des courbes de solubilité du soufre dans un verre borosilicaté en fonction de l'état redox du verre. Selon /LANGOWSKI M.H., 1996/, la solubilité maximale du soufre dans les verres silicatés oxydés en fusion ne dépasse pas la teneur massique de 1%. Cette tendance est vérifiée par les études menées par /PINET O. et al, 2000/ et /VINCENT J.J. et al, 2000/ sur des verres élaborés en milieu oxydant.

Cependant les analyses montrent que le soufre est présent en quantité non négligeable dans le verre. Une étude par observation au microscope électronique d'un échantillon de verre montre que le soufre dosé ici est combiné au nickel pour former du NiS dissout dans la matrice mais non visible à l'œil sous forme d'inclusion. Lorsque le verre est liquide, le nickel et le soufre cohabitent sans s'associer et dès que la température baisse, la différence de solubilité des éléments entraîne une précipitation de sulfure de nickel, comme le présente la photographie (cf. Figure II-11) prise au microscope électronique à balayage.

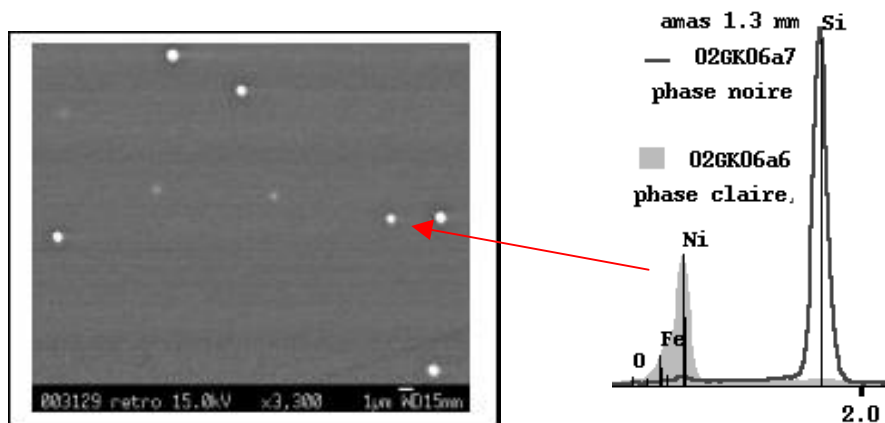


Figure II-11 : Photographie au MEB des inclusions

Eléments (oxydes)	Matrice de départ (% massique)	Echantillons				Moyenne (%)	Ecart quadratique moyen
		V1	V2	V3	V4		
SiO ₂	53,09	51,30	51,60	49,70	50,80	50,85	0,522
Al ₂ O ₃	7,99	7,44	7,72	7,18	7,35	7,42	0,038
B ₂ O ₃	18,36	17,00	16,80	16,70	16,60	16,77	0,022
Na ₂ O	12,05	9,60	11,10	9,10	9,63	9,86	0,558
Li ₂ O	1,32	2,70	2,39	2,85	2,52	2,61	0,031
CaO	2,7	3,50	3,20	3,35	3,50	3,39	0,015
ZnO	1,67	2,20	1,86	2,40	2,47	2,23	0,056
ZrO ₂	0,36	0,70	0,32	0,63	0,75	0,60	0,028
Fe ₂ O ₃	2,50	4,36	3,63	4,60	4,34	4,23	0,131
NiO		0,51	0,58	1,50	0,93	0,88	0,153
SO ₃		0,08	0,21	1,37	0,45	0,53	0,254
CoO		<0,06	<0,06	<0,06	<0,06	<0,06	0
Cs ₂ O		<0,18	<0,18	<0,18	<0,18	<0,18	0

Tableau II-4 : Analyse élémentaire (% massique) des échantillons de verre

II - 2 - 6 - 2 - Bilans matières

On dresse dans le Tableau II-5 les analyses élémentaires des produits récupérés ainsi que la répartition des éléments dans les différentes zones de l'installation.

On constate donc, comme l'a montré l'analyse élémentaire du verre élaboré, que les éléments minéraux ne quittent pas la matrice alors que certains éléments tels que B, Na, et Li

se volatilisent en quantité non négligeable très probablement sous forme de borates d'alcalins. Le bore et le sodium se déposent rapidement sur les parois froides du four par condensation mais une fraction atteint le premier filtre où elle est pratiquement stoppée. On ne retrouve qu'environ 1% (en masse) de ces éléments dans le filtre à manches. Le filtre à lit granulaire permet donc de retenir ces éléments qui pourraient être réinjectés dans le four au moyen d'un dispositif de recyclage. Le lithium présente un comportement similaire à ces deux éléments mais il semble plus volatil puisqu'on le retrouve en plus grande quantité dans le filtre à manches.

II - 2 - 6 - 2 - 1 - Bilan matière du cobalt

La seule source de cobalt est la charge minérale des résines, soit 2,29 g de cobalt injectés pour 56,57 kg de résines humides incinérées, soit une charge théorique de 0,06 % dans le verre. Les analyses montrent que l'on retrouve du cobalt dans différents organes de l'installation comme dans le système de filtration (filtre à billes et filtre à manches), 12 % (en masse) (cf. Figure II-12). La teneur en cet élément dans le verre est obtenue par équilibre du bilan à 100 %.

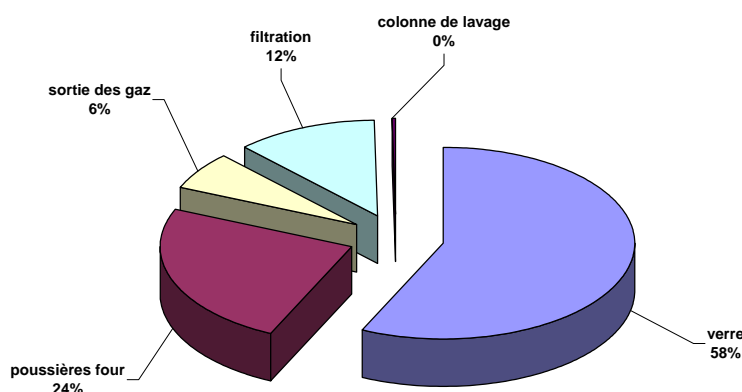


Figure II-12 : Répartition du cobalt dans l'installation

Sur ce schéma, les "poussières four" sont constituées du dépôt des imbrûlés et des éléments volatils condensés sur les parois de la virole du four. On observe aussi qu'environ 60 % (en masse) du cobalt est inséré dans le verre, ce qui est plus faible que les valeurs obtenues par /GIROLD C., 1997/ qui étaient proches de 80 %. Cependant, il faut noter que les essais réalisés par cet auteur se faisaient en absence de soufre, or il peut se former des sulfures de cobalt ou de césium qui sont très volatils.

II - 2 - 6 - 2 - 2 - Bilan matière du césium

De la même manière, la seule source de césium introduite dans le four est due à la charge minérale des résines. La masse introduite est donc de 2,74 g, soit en théorie une charge du verre de 0,06 % ce qui est très faible donc difficilement détectable dans le verre.

On note que seulement 40 % du césium injecté avec les déchets est confiné dans le verre, 30 % atteint l'unité de filtration. Le césium est également retrouvé dans l'eau de la colonne de lavage où il est totalement arrêté car sa vitesse de migration n'est pas très importante et le lavage à l'eau sodée permet de retenir les plus fines poussières. De la même manière que pour le cobalt, la teneur en césium dans le verre est obtenue pour un équilibre à 100 % du bilan matière.

La migration de poussières jusqu'à la colonne de lavage n'est pas une situation normale de fonctionnement d'un tel procédé. Ceci est expliqué par le faible facteur de décontamination des filtres expérimentaux mis en œuvre et par l'absence de filtre à haute efficacité sur l'installation.

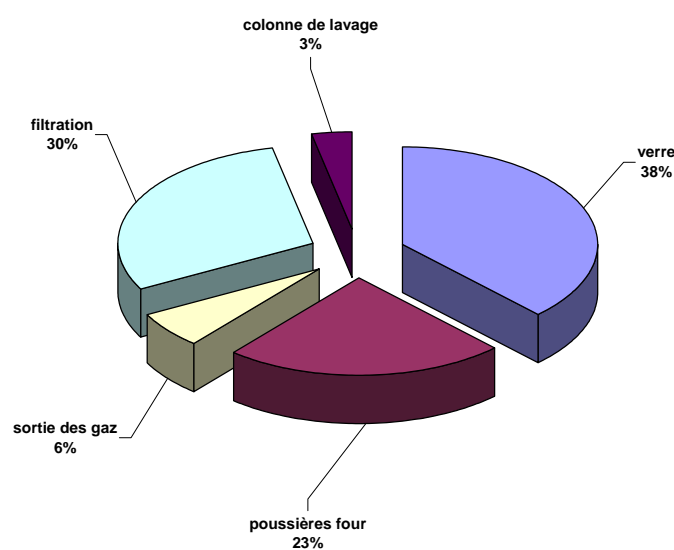


Figure II-13 : Répartition du césium dans l'installation

II - 2 - 6 - 2 - 3 - Bilan matière du nickel

Le nickel est introduit dans le four par le biais des résines, soit 481,5 g. Une partie du nickel présent dans le verre est combiné au soufre sous forme de nanoparticules de NiS. La Figure II-14 montre la répartition du nickel dans l'installation.

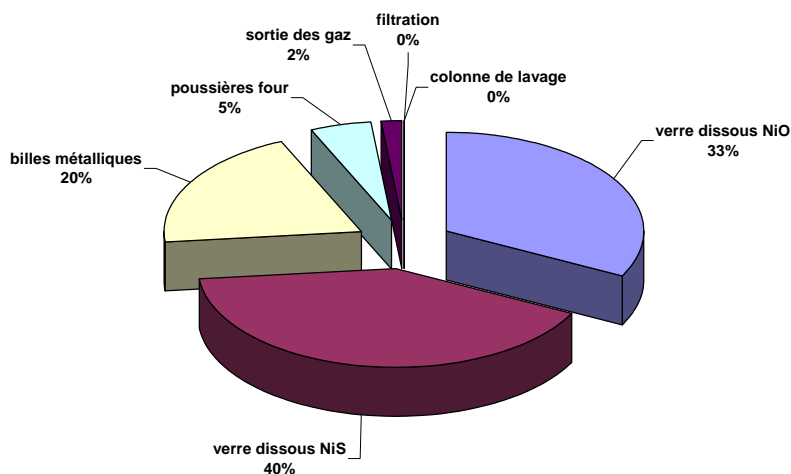


Figure II-14 : Répartition du nickel dans l'installation

II - 2 - 6 - 2 - 4 - Bilan matières global

Le Tableau II-5 présente la répartition des éléments dans le pilote :

- ✓ P1 : poussières recueillies sur les parois du four,
- ✓ P2 : poussières recueillies dans la liaison entre le four et le filtre granulaire ainsi que dans la croix permettant la trempe rapide des gaz issus du four,
- ✓ P3 : poussières stoppées par le système de filtration (filtre à lit granulaire et filtre à manches),
- ✓ P4 : eau de la colonne de lavage et de neutralisation.

Tous les pourcentages massiques ont été ramenés à 100% de la masse injectée de chaque élément.

La Figure II-15 et la Figure II-16 montrent la dissémination des éléments dans le pilote. Il faut noter que les résultats d'analyse sont donnés à $\pm 10\%$. Les valeurs sont ramenées à 100 % de la masse totale injectée.

On observe aisément que les constituants majeurs de la matrice verrière (Si, Ca, Al, Zn, Zr, Fe) s'échappent peu de l'enceinte du four. Pour ces éléments, leur teneur dans le verre élaboré est très proche de celle du mélange des frites de verre.

Eléments introduits dans le réacteur														
Eléments	Si	B	Na	Li	Ca	Fe	Al	Zr	Zn	Ni	Co	Cs	S	C
Verre initial % oxyde	53,09	18,36	12,05	1,32	2,7	2.5	8.0	0.4	1.7					
47700 g élément	11817.8	2717.9	4264.5	291.6	919.3	833.8	2020.2	141.2	651.5					
Déchets g élément		348.5		405.1		206.2				481.5	2.29	2.74	2063.6	19496
Total g élément	11817.8	3066.5	4264.5	696.6	919.3	1040.1	2020.2	141.2	651.5	481.5	2.29	2.74	2063.6	19496
Eléments récupérés dans l'installation														
Verre % oxyde	50.85	16.77	9.86	2.61	3.39	4.23	7.42	0.6	2.23	0.88				
47700g g élément	11319.2	2482.5	3489.5	576.5	1155.0	1410.9	1873.8	211.9	854.6	329.8	1.32	1.07		
%du total introduit	95.78	80.96	81.82	82.76	125.5	135.65	92.75	150.0	131.11	68.51	58.11	38.98		
% ramenés à 100%	99.9	91.22	92.70	82.88	99.82	98.67	99.91	100	100	72.84	59.94	40.47		
P1 % oxyde	2.20	28.00	12.10	10.40	0.20	2.90	0.30			4.30	0.10	0.10	32.60	4.40
g élément	7.10	60.17	62.17	33.35	0.99	14.04	1.09			23.39	0.54	0.65	90.30	30.47
%du total introduit	0.06	1.96	1.46	4.79	0.11	1.35	0.05			4.80	23.81	23.79	4.37	0.15
% ramenés à 100%	0.06	2.21	1.65	4.79	0.09	0.98	0.05			5.10	24.56	24.70		
P2 % oxyde	5.80	26.70	12.00	4.37	0.53	4.20	0.65			6.00	0.10	0.10	33.5	1.5
g élément	4.60	14.09	15.13	3.44	0.64	4.99	0.58			9.86	0.13	0.16	22.78	2.55
%du total introduit	0.04	0.46	0.35	0.49	0.07	0.49	0.29			2.05	5.84	5.85	1.10	0.01
% ramenés à 100%	0.04	0.52	0.40	0.49	0.05	0.36	0.31			2.18	6.02	6.10		
P3 g élément		133.88	189.55	79.6							0.22	0.67	1.39	
%du total introduit		4.36	4.44	11.43							9.61	24.45	0.07	
% ramenés à 100%		4.92	5.04	11.44							9.91	25.38		
P4 g élément		30.94	5.85	2.69							0.08	0.09		
%du total introduit		1.00	0.14	0.39							0.34	3.44		
% ramenés à 100%		1.13	0.16	0.39							0.35	3.57		
Total g élément	11330.9	2721.6	3762.2	695.6	1156.6	1429.9	1875.5	211.9	854.6	452.8	2.22	2.64	114.47	38.3
%	95.9	88.75	88.26	99.85	125.7	137.5	92.83	150	131.1	94.05	96.94	96.32		

Tableau II-5 : Répartition des principaux éléments dans l'installation

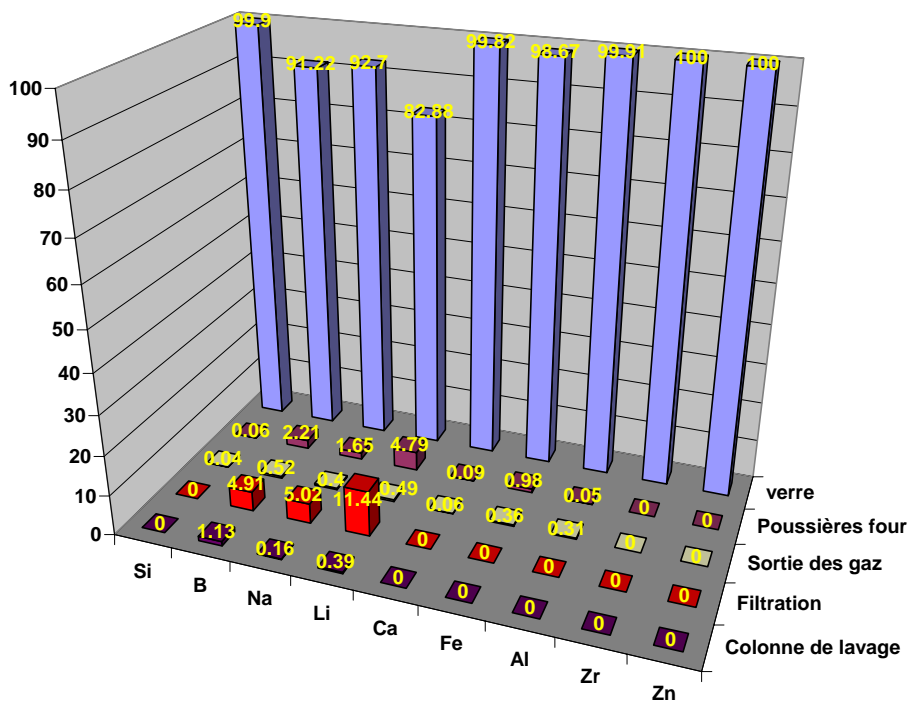


Figure II-15 : Répartition des éléments constituant la matrice de verre dans l'installation

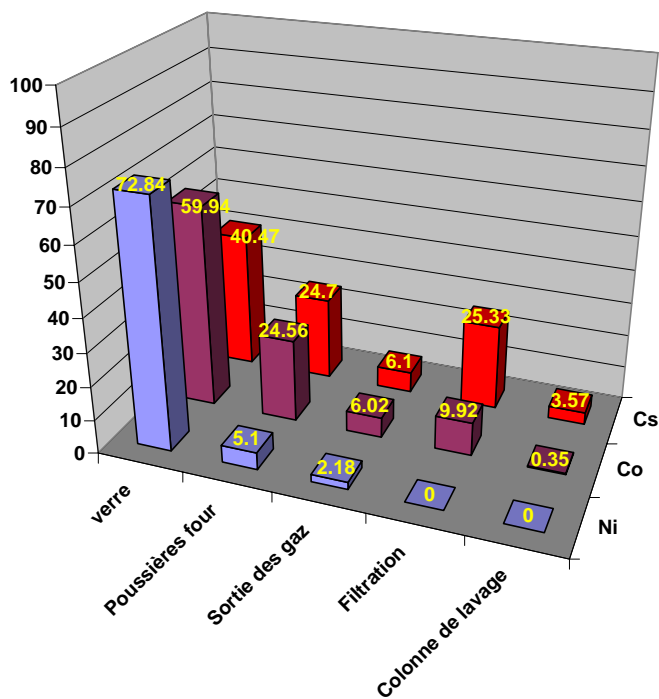


Figure II-16 : Répartition des traceurs ajoutés au déchet dans l'installation

II - 2 - 7 - Bilans thermiques

Un bilan thermique est effectué à un moment où l'équilibre thermique est pratiquement atteint, pour $t = 18h00$. En analysant les courbes des Figure II-17, Figure II-18 et Figure II-19, on peut en déduire les valeurs de puissance thermique dissipée dans les différents organes de l'installation (cf. Tableau II-6).

	Perte thermique (kW)	Perte thermique (%)
Cathode et ses manchons	5,00	4,3
Anode et ses manchons	7,41	6,5
Générateur HF	4,36	3,7
CAI	5,88	5,3
Ligne et inducteur	16,65	14,4
Châssis	1,13	0,1
Sole	7,90	6,8
Virole creuset	23,52	22,2
Vanne de coulée	2,32	
Voûte	10,75	11,5
Brides voûte	2,63	
Virole four	20,02	21,3
Piquages de la virole four et chicane	4,61	
Sortie des gaz	4,34	3,8
Total pertes mesurées	116,52	100

Tableau II-6 : Répartition des dissipations thermiques sur l'installation

La puissance plasma disponible (puissance électrique de 55,81 kW moins les pertes dans les électrodes et les manchons des torches) est de 43,40 kW.

La puissance électrique délivrée mesurée aux bornes du générateur HF est de 49,45 kW mais, ne sachant pas mesurer le rendement de l'installation, on ne connaît pas la puissance effective permettant de fondre le verre.

En outre, la puissance thermique apportée au système par dégradation chimique du déchet lors de son incinération est voisine de 20 kW.

La puissance thermique totale dans le système lors de l'incinération est alors voisine de 120 kW alors que la totalité des pertes thermiques se rapproche de 118 kW (116,52 + ~ 2 kW dans les fumées)

Sur la Figure II-17, on observe de fortes variations des pertes thermiques dans le circuit nommé "ligne et inducteur". Ces dernières sont directement liées à la mise en fonction du générateur HF puis au couplage de l'induction dans le verre. En effet, au départ, toute la puissance fournie par le générateur est dissipée dans les circuits de refroidissement de la ligne, de l'inducteur, de la sole et du châssis supportant la sole. Ensuite, dès que le courant atteint le verre, c'est-à-dire, dès que le chauffage du bain par induction débute les pertes thermiques dans ce circuit diminuent fortement. En cours d'essai, c'est un des paramètres (avec la chute de tension et l'augmentation de l'intensité à puissance constante) qui nous permet de conclure au couplage de l'induction dans le verre.

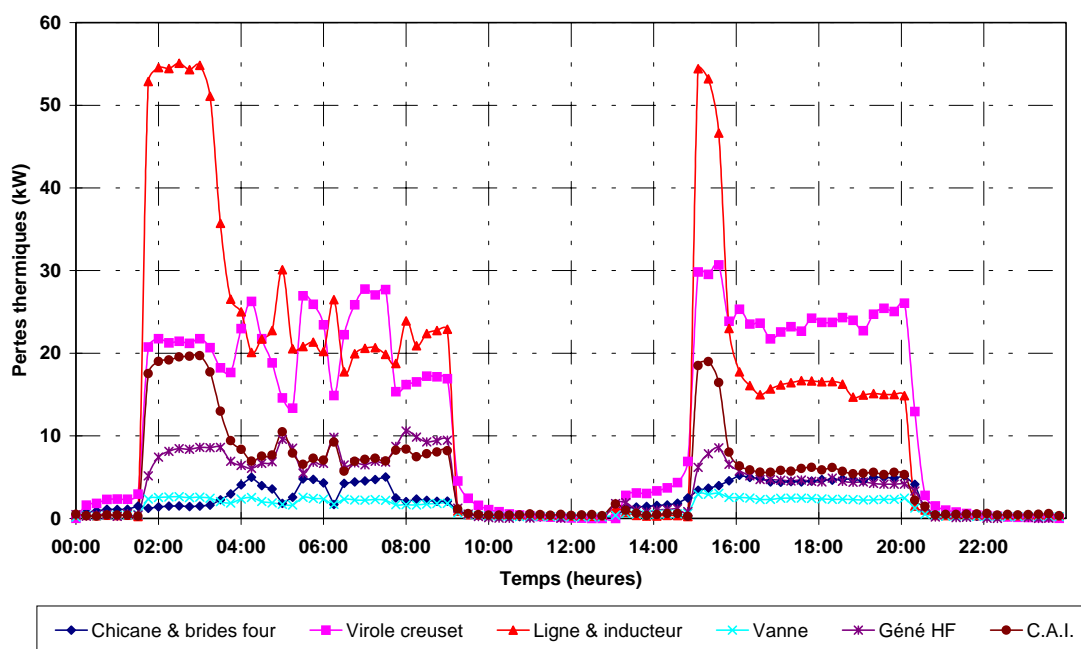


Figure II-17 : Pertes thermiques dans les circuits de refroidissement de l'installation (1)

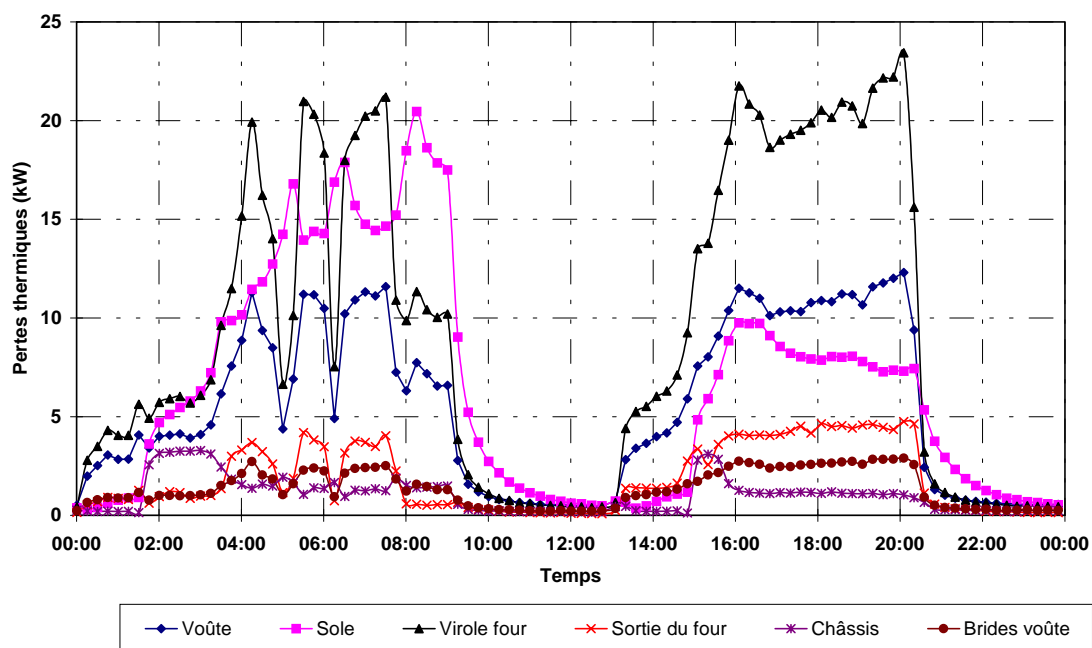


Figure II-18 : Pertes thermiques dans les circuits de refroidissement de l'installation (2)

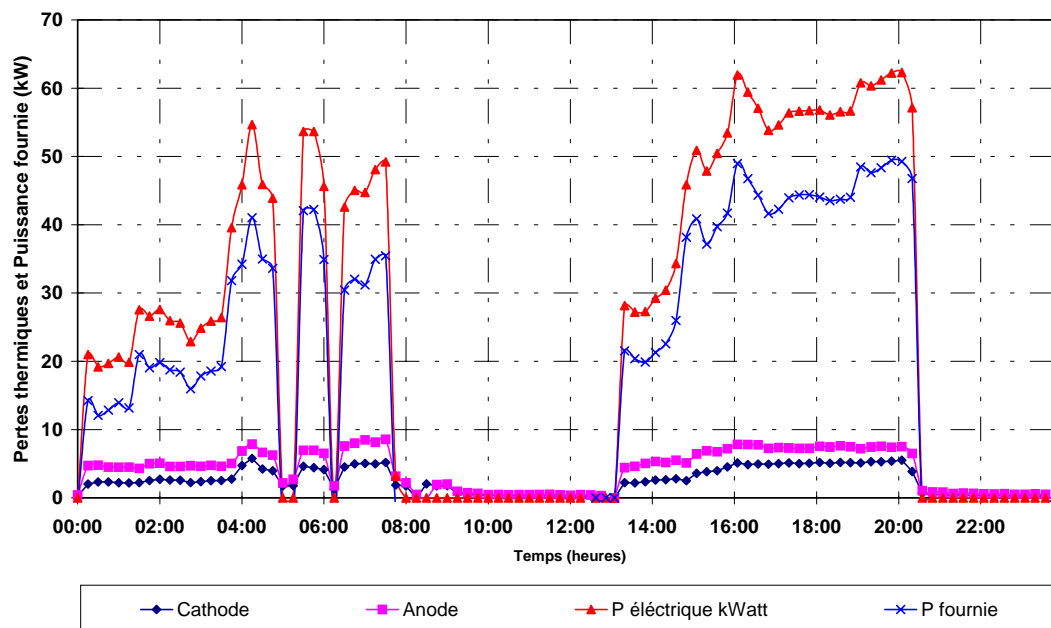


Figure II-19 : Puissance fournie par le plasma

Durant toute la durée de l'essai, les pertes thermiques dans les différents circuits de refroidissement de l'installation sont enregistrées. On remarque sur la Figure II-19 que les pertes thermiques sont deux fois plus élevées à l'anode qu'à la cathode. Cette différence est

expliquée par le fait que l'électrode anode a une section plus importante que la cathode, donc elle reçoit plus d'énergie à dissiper. On peut également noter que les pertes thermiques au niveau des torches sont en grande partie dues au rayonnement du plasma et du verre sur les manchons extérieurs. Sur cette figure, on ne peut pas le voir car les circuits de refroidissement des électrodes et des manchons sont en série, les pertes thermiques présentées sont des pertes globales dans les torches.

La Figure II-17 présente les pertes thermiques dans la partie fusion du verre et on remarque que le circuit de refroidissement du creuset dégage le plus d'énergie. Ceci est dû d'une part au verre en fusion et d'autre part au rayonnement du verre et du plasma sur la partie non recouverte des parois.

Sur la Figure II-18, on observe que les pertes thermiques sont importantes sur les parois du four et de la voûte. Cette dernière reçoit la majeure partie du rayonnement du plasma. C'est le cas également pour les parois du four qui supportent en plus l'apport d'énergie de la dégradation des déchets.

Ces valeurs nous permettent de vérifier les résultats de simulation et donc de définir les conditions de calcul les plus appropriées pour décrire correctement le fonctionnement de l'installation.

De plus les données recueillies par l'analyse du verre et des différents prélèvements effectués sur l'installation nous informent sur le devenir du déchet lors de son traitement. On peut alors vérifier la validité des zones d'ingestion du déchet ou des poussières obtenues par modélisation en les comparant à celles réellement détectées après analyse du verre.

Afin d'estimer au mieux le flux thermique reparté sur le verre en fusion, nous avons employé deux techniques de mesures de la température (pyrométrie et caméra infrarouge) de la surface du verre mais elles nécessitent l'arrêt du plasma car sa forte luminosité fausse la mesure des appareils. En effet, la configuration du four SHIVA ne permet pas de réaliser une visée de la surface du verre sans être perturbé par le plasma, c'est qui n'est pas le cas dans d'autres configurations de four telles que celle de VULCANO (les dimensions de l'installation permettent de réaliser une mesure instantanée de la température de surface du corium en visant à côté de l'arc électrique). Dès que le plasma est arrêté, le verre refroidit rapidement donc par pyrométrie, on ne peut atteindre qu'une seule mesure en un point de la surface du verre ; la valeur obtenue ($\sim 1\ 400^{\circ}\text{C}$) n'est donc pas représentative de la température de la surface globale du verre.

II - 3 - Diagnostic spectroscopique du plasma

II - 3 - 1 - Préambule

Après avoir présenté un essai de combustion/vitrification de déchets dont les données pourront servir de base à la simulation globale du procédé, nous avons également voulu caractériser le plasma d'arc transféré. En effet, après avoir recueilli un maximum d'informations sur la fusion du verre par plasma puis par couplage plasma et induction, ainsi que sur le devenir des déchets dans le four, il est nécessaire de définir des paramètres spécifiques au plasma d'arc transféré entre deux électrodes métalliques aériennes (géométrie, température, composition) qui seront également très utiles à la modélisation.

Dans ce paragraphe, nous présentons une méthode originale de détermination de la température du plasma par spectroscopie d'émission atomique. Cette méthode permet de prendre en compte les fluctuations de l'arc électrique entre la surface du bain de verre et les torches et d'approcher au mieux la température de l'arc dans les deux jets et dans la zone de couplage de l'arc cathodique et de l'arc anodique.

Pour nos travaux, cette nouvelle méthode sera uniquement utilisée pour caractériser en 2D le plasma en considérant une loi de fluctuation du plasma de type "dent de scie".

Les champs de température ainsi obtenus pourront être confrontés aux résultats de modélisation de l'arc électrique. En fonction de l'écart observé, le modèle sera validé ou recalé.

Enfin, il faut préciser que cette caractérisation de l'arc électrique a été menée avec le four à plasma du Laboratoire de Chimie des Plasmas de Limoges. La configuration de fonctionnement de ce four est différente de celle de SHIVA. Ainsi l'angle formé entre les torches est de 110° au lieu de 90° , et les gaz sont extraits dans l'axe des torches alors que sur SHIVA, l'évacuation se fait face au plasma. La nature et la distribution des gaz plasmas sont les mêmes pour les deux installations (plasma d'oxygène et d'argon).

Toutefois, les distributions de températures obtenues sont tout à fait transposables sur le four SHIVA puisque les conditions opératoires sont quasi-similaires (puissance électrique dissipée, débit des gaz plasmagènes, intensité et tension d'arc...). Seule la forme spatiale de l'arc, atteinte par cette méthode de diagnostic, est différente.

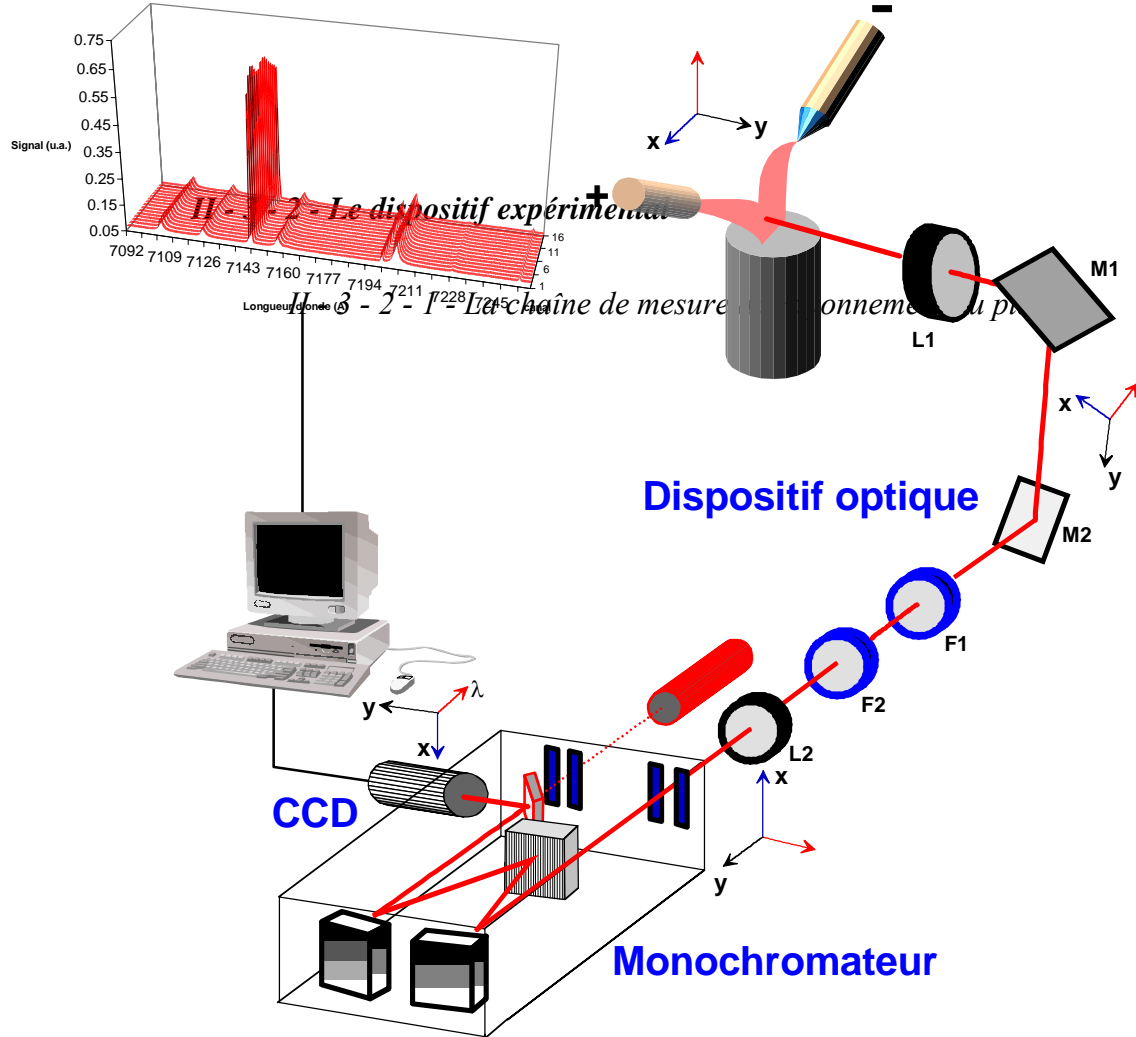


Figure II-20 : Schéma du dispositif de diagnostic spectroscopique

Le schéma d'ensemble de la chaîne de mesure du rayonnement plasma est présenté sur la Figure II-20.

II - 3 - 2 - 2 - Le montage optique

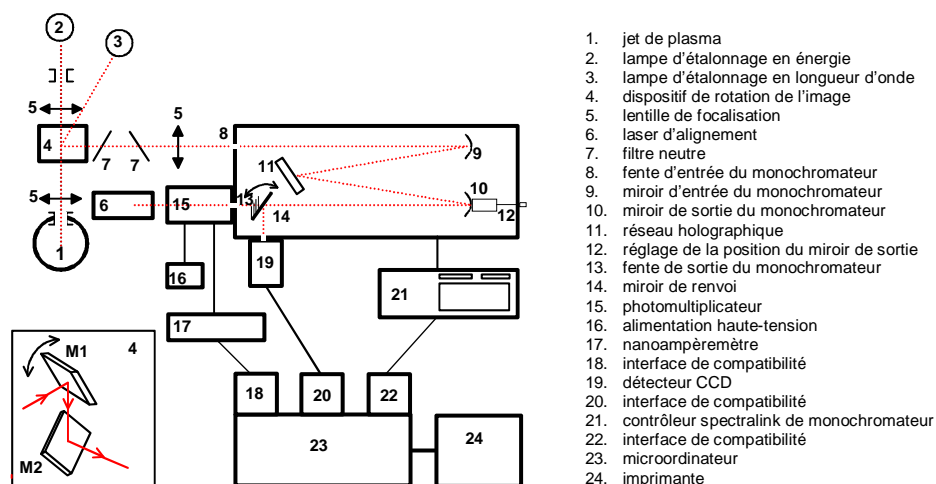


Figure II-21 : Description du dispositif de diagnostic spectroscopique

Le laser d'alignement (6) – He/Ne, 5 mW – placé sur l'axe optique de sortie du monochromateur permet, à l'aide d'un jeu de caches placés sur les miroirs et le réseau, de "matérialiser" le trajet optique à l'intérieur et à l'extérieur du monochromateur. Ainsi, nous connaissons avec précision le point d'analyse dans le plasma ou dans une source d'étalonnage. Nous pouvons ainsi, avant l'amorçage de l'arc, repérer par rapport à l'axe optique avec une précision de l'ordre du millimètre la position initiale de l'extrémité de chacune des deux électrodes.

Face à la fente d'entrée du monochromateur, 1 ou 2 filtres neutres (7), dont nous avons mesuré les coefficients de transmission, atténuent l'intensité du rayonnement issu du plasma.

Le plasma (1) et la fente d'entrée (8) du monochromateur coïncident respectivement avec les foyers des lentilles convergentes traitées anti-reflet (5). Les grandissements obtenus par combinaison des deux lentilles sont adaptés au volume du plasma étudié et à la hauteur du détecteur CCD. Nous avons utilisé, côté plasma une lentille de focale 1m et diamètre 4" et, du côté monochromateur une lentille de focale 0,25m et de diamètre 3" ; ainsi le grandissement est de $\frac{1}{4}$.

La fente d'entrée du monochromateur est verticale. Pour analyser une section horizontale du plasma, il est nécessaire de faire tourner de 90° son image. Cette rotation de l'image est assurée au moyen de deux miroirs plans M1 et M2 disposés selon le schéma (4). La rotation de 90° du miroir M1, réalisée à l'aide d'une platine, permet de substituer sur la fente d'entrée du monochromateur (8) à l'image du plasma (1) celle d'une source d'étalonnage

que l'on souhaite observer : soit une lampe spectrale (3) pour l'étalonnage en longueur d'onde, soit une lampe à ruban de tungstène (4) pour l'étalonnage en énergie.



Figure II-22 : Photographie du montage optique

II - 3 - 2 - 3 - *Le monochromateur*

Le monochromateur utilisé ("THR 1000" de Jobin-Yvon, de type Czerny-Turner) est de focale 1 mètre et d'ouverture f9. Il est équipé d'un réseau holographique (11) à $1\,200 \text{ traits.mm}^{-1}$ et dont le domaine d'utilisation s'étend de $1\,700$ à $7\,000 \text{ \AA}$, sa largeur utile est de 134 mm ; le pouvoir de résolution du réseau calculé suivant la formule de Rayleigh est de $160\,000$.

La rotation du réseau permettant le défilement en longueur d'onde est assurée par un moteur pas à pas ($1 \text{ pas} = 0,02 \text{ \AA}$), fonctionnant par pas entier ou par demi pas. Il est piloté par une console de commande désigné ci-après par "Spectralink" (21).

Les fentes d'entrée (8) et de sortie (13) d'axe vertical, sont courbes et du type fente de Fastié. Leurs hauteurs sont réglables indépendamment l'une de l'autre. Le rayon de courbure des fentes de Fastié est de 10 cm . Leurs largeurs sont réglables indépendamment l'une de l'autre de 10 à $3\,000 \text{ \mu m}$; la précision du dispositif d'écartement n'est pas suffisante pour assurer une bonne reproductibilité de la largeur de fente qui est usuellement de 20 \mu m . La variation de la dispersion linéaire réciproque est de $7,6 \text{ \AA.mm}^{-1}$ à $5\,000 \text{ \AA}$.

Un miroir de renvoi (14) permet de former l'image de la fente d'entrée soit sur la fente de sortie (13) si l'on veut utiliser le photomultiplicateur comme détecteur, soit dans le plan de la face avant du détecteur CCD (19).

Un collimateur de sortie sur glissière (12) permet, par un léger déplacement du miroir de sortie (10), de pallier les légères variations de focalisation, et par conséquent de résolution, en fonction des conditions ambiantes de température et de pression.

II - 3 - 2 - 4 - La caméra CCD

Il s'agit d'un analyseur d'images multicanaux de marque Hamamatsu de type C7041 équipé d'un capteur S7031-1008 composé d'une matrice de détecteurs au silicium (CCD : Charge Coupled Devices) utilisant une architecture MOS (Metal Oxide Semiconductor), éclairée par l'arrière pour permettre aux photons incidents d'être absorbés par le silicium photosensible sans devoir traverser les électrodes ; les capteurs sont amincis à environ 10-15 μm pour minimiser la recombinaison des photoélectrons produits par l'absorption UV au voisinage immédiat de la surface du silicium.

Le capteur est refroidi à environ -10°C par effet Peltier afin de minimiser le bruit de fond. L'effet Peltier peut être considéré comme une pompe à chaleur ; en effet, si on branche une source de courant continu aux bornes de deux conducteurs électriques différents, il en résulte une production de chaleur sur une jonction et un refroidissement sur l'autre. La quantité de chaleur absorbée à la jonction la plus froide est appelée chaleur de Peltier /ZAHRA A.M. et al, 1989/. Le capteur, dont la largeur est de 24,576 mm et la hauteur de 6,000 mm, est constitué d'une matrice de 1024 colonnes et 256 lignes de pixels élémentaires dont la taille est de $24 \times 24 \mu\text{m} \times \mu\text{m}$ (nombre de pixels actifs : 1024 x 256).

L'image se formant sur la tête du détecteur peut être échantillonnée dans les deux dimensions, selon un mode de balayage de la cible défini à l'avance par un jeu de paramètres. La scrutation de la cible s'effectue selon N_p pistes regroupant N_c canaux. A l'intérieur d'une piste, un canal est formé par la juxtaposition de ΔY pixels. Chaque canal, quelle que soit la hauteur, est exploré en un temps τ_c défini lors de la programmation de la cible. En orientant convenablement la tête du détecteur, on choisit de faire correspondre chaque canal par piste à une longueur d'onde et chaque piste à une direction de visée (de position y sur la Figure II-20). L'image peut être lue en mode "binning" (ou mode "barrette" ou mode "image linéaire") ou en mode "scanning" (ou mode matriciel).

En mode "binning", avec une fréquence d'horloge interne de 1 MHz, le temps de "lecture" de la cible constituée de 1 piste composée de 1044 canaux, chaque canal étant lui-même composé de 128 pixels, est de 6,23 ms.

En mode "scanning", avec une fréquence d'horloge interne de 1 MHz, le temps de "lecture" de la cible constituée de 24 pistes composées chacune de 1044 canaux, chaque canal étant lui-même composé de 10 pixels, est de 108 ms.

Pour l'ensemble des enregistrements, la cible est lue suivant 24 pistes horizontales hautes de 10 pixels et équidistantes de 11 pixels. Les spectres en longueur d'onde sont ainsi acquis, en tenant compte du grandissement optique (1/4), suivant un échantillonnage spatial dans le volume du plasma. Chaque piste est scrutée sur toute la largeur de la cible (1024 pixels utiles), soit une bande spectrale d'environ 180 Å (valeur qui varie légèrement avec la dispersion linéaire réciproque du monochromateur, elle-même fonction de la position du réseau).

II - 3 - 2 - 5 - Etalonnage en longueur d'onde et en énergie

Nous disposons d'un jeu de cinq lampes spectrales de marque Philips (Hg, Ar, Na, Cs, et Hg/Cd/Zn) et de deux lampes à ruban de tungstène de marque Philips et Osram respectivement pour les étalonnages en longueur d'onde et en énergie.

II - 3 - 3 - Méthode de diagnostic

La spectroscopie d'émission atomique est une méthode bien adaptée au diagnostic des plasmas d'arc. En effet, la lumière émise par le milieu est intense, et cette technique ne perturbe pas l'écoulement du milieu. Elle consiste à déterminer les paramètres locaux du plasma par l'analyse du rayonnement issu de ce dernier.

II - 3 - 3 - 1 - La grandeur mesurée

La grandeur mesurée en spectroscopie d'émission atomique est la luminance spectrale L_λ , qui représente la puissance rayonnée par une source, autour d'une longueur d'onde, dans une direction donnée (\vec{r}), par unité d'angle solide ($d\Omega$), par unité de surface (dS) perpendiculaire à la direction d'observation, et par unité de longueur d'onde ($d\lambda$). L'intensité spécifique I_λ est la grandeur mesurée dans une direction (\vec{r}) passant par le milieu émissif. Elle résulte des contributions respectives des différents éléments du volume considéré, et a la même dimension que la luminance spectrale. Elle est définie à partir de la puissance mesurée dans l'intervalle de longueur d'onde $\Delta\lambda$, par le système optique de surface ΔS et présentant un angle solide $\Delta\Omega$:

$$P_{\text{ray}} = \int_{\Delta\lambda} \int_{\Delta\Omega} \int_{\Delta S} I(\lambda) d\lambda d\Omega dS \quad (\text{II-1})$$

De même, nous appellerons intensité absolue le terme :

$$I = \int_{\lambda} I(\lambda) d\lambda \quad (\text{II-2})$$

II - 3 - 3 - 2 - Emission du rayonnement en volume

Le plasma émet du rayonnement en volume. Celui-ci résulte des propriétés locales d'émission, d'absorption et de diffusion du milieu considéré. La luminance spectrale résulte des contributions respectives des différents éléments du volume considéré. Si on néglige la diffusion, l'accroissement de la luminance spectrale dans la direction (\vec{r}), pour un plasma stationnaire s'écrit :

$$\frac{dI(\lambda, r)}{dr} = \left[\frac{dI(\lambda, r)}{dr} \right]_{\text{émission}} - \left[\frac{dI(\lambda, r)}{dr} \right]_{\text{absorption}} = \varepsilon(\lambda, r) - k(\lambda, r)I(\lambda, r) \quad (\text{II-3})$$

qui est l'équation de transfert radiatif dans laquelle :

- ✓ r est l'abscisse suivant la direction d'observation,
- ✓ $\varepsilon(\lambda, r)$ est le coefficient d'émission volumique spectral défini par :

$$\varepsilon(\lambda, r) = \frac{h c}{4 \pi \lambda} A_e N_e(r) P_e(r, \lambda) \quad \left(\frac{W}{m^3 \text{ sr m}} \right) \quad (\text{II-4})$$

- ✓ A_e est la probabilité de transition du niveau haut vers le niveau bas,
- ✓ N_e la densité locale du niveau d'émission,
- ✓ $P_e(r, \lambda)$ le profil d'émission,
- ✓ $k(\lambda, r)$ le coefficient d'absorption qui s'exprime par

$$k(\lambda, r) = \frac{\lambda^4}{8 \pi c} A_e N_a \frac{g_e}{g_a} P_a(\lambda, r) \left\{ 1 - \frac{N_e}{N_a} \frac{g_a}{g_e} \frac{P_e(\lambda, r)}{P_a(\lambda, r)} \right\} \quad (m^{-1}) \quad (\text{II-5})$$

Dans cette expression :

- ✓ g_e et g_a sont les poids statistiques des niveaux d'émission et d'absorption,
- ✓ N_e et N_a les densités des niveaux d'émission et d'absorption,
- ✓ $P_e(\lambda, r)$ et $P_a(\lambda, r)$ sont les profils d'émission et d'absorption.

Par la suite, nous appellerons coefficient d'émission volumique le terme $\varepsilon(r)$ défini par :

$$\varepsilon(r) = \int_{\text{profil}} \varepsilon(\lambda, r) d\lambda \quad \left(\frac{W}{m^3 \text{ sr}} \right) \quad (\text{II-6})$$

La résolution de l'expression (II-3) permet d'accéder au paramètre local défini par le coefficient d'émission volumique $\varepsilon(r)$. Elle dépend de la géométrie du milieu émissif et peut se simplifier lorsque cette dernière présente des éléments de symétrie (volume à symétrie axiale, plane, ...).

Dans notre configuration, les électrodes étant disposées dans le plan passant par l'axe du réacteur et symétriquement à celui-ci, nous supposons que le volume du plasma étudié admet ce plan de symétrie. Nous définissons sur la Figure II-23 le système d'axes de coordonnées (x, y) qui sera utilisé par la suite, y étant la direction de mesure précédemment nommée r .

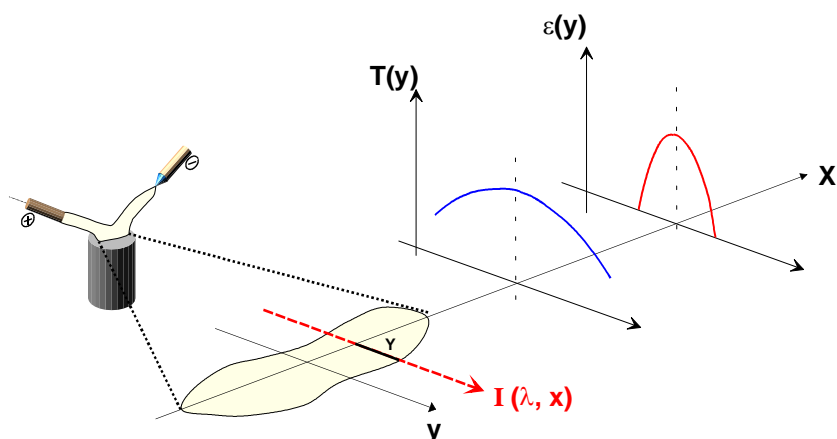


Figure II-23 : Système d'axes utilisés

Si nous considérons une section de la colonne d'un plasma de largeur y_{lim} pour lequel $\varepsilon(\lambda, y \geq y_{\text{lim}}) = 0$ et $k(\lambda, y \geq y_{\text{lim}}) = 0$, la luminance spectrale enregistrée suivant une direction de visée d'abscisse x , est solution de l'équation différentielle du premier ordre :

$$I(\lambda, x) = 2 \int_0^{y_{\text{lim}}} \varepsilon(\lambda, y) \left\{ \exp \left\{ - \int_y^{y_{\text{lim}}} k(\lambda, y) dy \right\} \right\} \quad (\text{II-7})$$

Si le plasma étudié est supposé optiquement mince, milieu rayonnant non auto-réabsorbant, l'expression (II-7) se simplifie de la manière suivante :

$$I(\lambda, x) = 2 \int_0^{y_{\text{lim}}} \varepsilon(\lambda, y) dy \quad (\text{II-8})$$

Cependant, même dans le cas d'un plasma optiquement mince, déterminer la distribution du coefficient d'émission volumique $\varepsilon(x, y)$ à partir de la distribution de la luminance $I(x)$ et de l'expression (II-8) reste impossible directement. Un certain nombre d'hypothèses sur l'état du plasma doivent être avancées.

De plus, comme l'indique l'équation (II-4), la détermination du coefficient d'émission volumique nous permet d'accéder uniquement à la connaissance des densités des particules dans leurs états excités et des électrons dans certains intervalles d'énergie. Ces informations ne conduisent à la connaissance des concentrations totales des particules et de la température, (si celle-ci peut être définie), que si l'état du plasma est décrit par un modèle.

L'état du plasma est caractérisé par l'ajustement se créant entre les particules et les champs électromagnétiques, ou entre les particules (processus élémentaire d'ionisation, de recombinaison, d'excitation, de désexcitation, ...).

Dans le paragraphe suivant, nous présentons le modèle utilisé et décrivons les méthodes de traitement des données expérimentales.

II - 3 - 4 - Le modèle

Compte tenu des valeurs de la concentration électronique ($>$ quelques 10^{16} cm^{-3}) et des températures rencontrées dans les zones analysées, nous supposons vérifiées les hypothèses :

- ✓ de l'équilibre thermodynamique local,
- ✓ d'une distribution de Boltzmann des populations sur les niveaux excités des atomes et des ions,
- ✓ d'un équilibre de Saha entre atome et ion.

Ces différentes hypothèses sont présentées et justifiées dans les paragraphes suivants.

II - 3 - 4 - 1 - L'équilibre thermodynamique local

L'équilibre thermodynamique complet (ETC) implique, pour le volume de plasma considéré dans sa totalité, la microréversibilité de tous les processus élémentaires, l'absence de gradient de température et la réabsorption totale du rayonnement. En utilisant les méthodes statistiques, cet état peut être décrit microscopiquement par un ensemble de lois de distribution fonctions de la température et d'autres variables macroscopiques qui régissent les équilibres des différents processus élémentaires :

✓ Loi de Maxwell :

Elle régit l'équilibre des processus de collision élastique entre les particules et traduit la distribution et la conservation de l'énergie cinétique des particules du système. Elle permet de connaître le nombre dN de particules, pour une espèce donnée dans un milieu de température T , dont la vitesse est comprise entre v et $v + dv$:

$$dN = N f(v) dv = N 4 \pi v^2 \left(\frac{m}{2\pi k T} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{m v^2}{2k T} \right) dv \quad (\text{II-9})$$

où N est le nombre total de particules de l'espèce considérée et m leur masse.

✓ Loi de Boltzmann

Cette loi régit l'équilibre des processus collisionnels d'excitation et de désexcitation des particules. Elle donne, pour un milieu de température T , le rapport des concentrations de population N_n et N_m de deux niveaux n et m d'un atome (ou d'un ion), d'énergies et de poids statistiques respectifs E_n et E_m , g_n et g_m :

$$\frac{N_n}{N_m} = \frac{g_n}{g_m} \exp\left(-\frac{E_n - E_m}{k T} \right) \quad (\text{II-10})$$

La densité de population N_n peut aussi s'exprimer par rapport à la densité de population totale relative à tous les niveaux de l'atome (ou de l'ion) $N = \sum_i N_i$

$$\frac{N_n}{N} = \frac{g_n}{Q(T)} \exp\left(-\frac{E_n}{k T} \right) \quad (\text{II-11})$$

où

$$Q(T) = \sum_i g_i \exp\left(-\frac{E_i}{k T} \right) \quad (\text{II-12})$$

est appelée fonction de partition interne de l'espèce considérée.

✓ Loi de Saha

Elle régit l'équilibre des processus collisionnels d'ionisation et de recombinaison des particules. Elle exprime le rapport des densités de population de deux états successifs d'ionisation d'un atome, dans un milieu de température T , considérés dans leurs niveaux fondamentaux :

$$\frac{N_{N^+}}{N_N} = \frac{g_e}{N_e} \frac{Q_{N^+}(T)}{Q_N(T)} \left(\frac{2 \pi m_e k T}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E^i - \Delta E^i}{k T} \right) \quad (\text{II-13})$$

où N et N^+ sont considérés comme étant les éléments Ar et Ar^+ dans notre cas, N_e est la densité des électrons, $g_e (=2)$ le poids statistique associé à l'électron, $Q_N(T)$ et $Q_{N^+}(T)$ les fonctions de partitions internes respectives des espèces Ar et Ar^+ , h la constante de Planck et E^i l'énergie d'ionisation de l'espèce de plus faible degré d'ionisation. ΔE^i est l'abaissement du potentiel d'ionisation, il est lié à l'influence du nuage électronique de particules chargées entourant la particule considérée.

✓ Loi de Planck

Cette loi régit l'équilibre des processus radiatifs. Dans une enceinte à l'équilibre thermodynamique à la température T , le rayonnement est de type corps noir. A chaque fréquence, chaque volume élémentaire de plasma émet autant de rayonnement qu'il en absorbe. La puissance émise par unité de surface, de fréquence et d'angle solide est :

$$B(\nu, T) = \frac{2 h \nu^3}{c^2} \frac{1}{\exp\left(\frac{h \nu}{k T}\right) - 1} \quad (\text{II-14})$$

où c est la vitesse de la lumière, et ν la fréquence du rayonnement.

Comme on l'a dit précédemment, l'ETC implique la vérification de la loi de Planck, l'absence de gradient de température et de concentration de l'espèce.

Or, dans les plasmas d'arc transférés, cet état n'est pas vérifié : d'une part toutes les radiations émises ne sont pas réabsorbées ce qui induit la non vérification de la loi de Planck et d'autre part, la température sur l'axe est plus élevée que dans les zones périphériques, entraînant des gradients de pressions partielles qui provoquent des phénomènes de diffusion. Si le volume total de plasma ne peut être considéré à l'ETC à une température unique T , on le décompose en sous-systèmes, le flux d'énergie entre deux sous-systèmes adjacents étant faible. Si chaque sous système peut être caractérisé par une température (T_1, T_2, \dots, T_n), le plasma est alors considéré à l'équilibre thermodynamique local (ETL). Cet état n'est défini que sous certaines conditions constituant le domaine de validité de l'ETL.

Pour que les flux d'énergie soient faibles, les flux de diffusion doivent être réduits et, par conséquent, les forts gradients de température et de concentration inexistantes. De même, le temps de relaxation nécessaire à une particule provenant d'un système à la température T_1 , pour se mettre en équilibre dans un système à la température T_2 , doit être très petit. De plus, les phénomènes radiatifs doivent être négligeables devant les processus collisionnels.

Localement, les distributions de vitesse des électrons et des particules lourdes sont Maxwelliennes si l'énergie cinétique des électrons, prise au champ électrique durant leurs libres parcours moyens, est très inférieure à l'énergie échangée lors des processus collisionnels /DRAWIN H.W., 1970/. Ceci implique un faible champ électrique et un nombre suffisant de collisions élastiques et par conséquent une densité de particules élevée.

Nous supposons que dans le volume de plasma étudié, correspondant aux jets anodique et cathodique ainsi qu'à la zone de couplage de ces deux jets, étudié par /MEGY S., 1994/ et /BOUSRHI S., 1995/, l'ETL est établi et donc que les équations (II-9) à (II-14) sont vérifiées.

II - 3 - 5 - La méthode de traitement

La détermination des paramètres locaux du plasma nécessite la résolution de l'équation de transfert radiatif pour une transition donnée :

$$I(x) = 2 \int_0^{\infty} \varepsilon(x, y) dy \quad (\text{II-15})$$

où $\varepsilon(x, y)$ est le coefficient d'émission volumique au point de coordonnée x suivant la direction perpendiculaire à la visée. Il vient pour un plasma supposé en ETL :

$$\varepsilon(x, y) = \frac{hc}{4\pi\lambda} A_{ki} \frac{g_k}{Q_a} N_a \exp\left(-\frac{E_k}{kT}\right) \quad (\text{II-16})$$

avec $T = T(x, y)$.

La méthode utilisée ici, dite méthode localisation, est basée sur la forte croissance en fonction de la température du coefficient d'émission volumique intégré d'une raie, dans le cas où la température demeure inférieure à la température normale T_m de la transition considérée. Son application suppose donc un plasma inhomogène avec une décroissance monotone de la température de l'axe du plasma (dans le plan des électrodes supposé être un plan de symétrie) vers sa périphérie et une température sur l'axe $T_0 < T_m$.

Dans ces conditions, l'évolution du coefficient d'émission volumique le long de la direction y est largement dominé par le terme en exponentielle dans l'expression (II-16).

Pour une raie spectrale donnée et une pression partielle de l'espèce émettrice constante le long de la direction y , $P = N_a kT$, en supposant que la variation de la fonction de partition de la dite espèce le long de y varie peu avec la température ($Q_a(T) \sim \text{cte}$) et que $kT \ll E^i$ (E^i est l'énergie d'ionisation), le coefficient d'émission volumique de la raie à la position (x, y) peut s'écrire :

$$\varepsilon(x, y) = C \frac{1}{T} \exp\left(-\frac{E_k}{kT}\right) \quad (\text{II-17})$$

avec :

$$C = \frac{hc}{4\pi k} \frac{1}{\lambda} \frac{P}{Q_a} A_{ki} g_k \quad (\text{II-18})$$

Si l'on admet, ce qui a été vérifié /MEGY S., 1994/ que la distribution de température le long de l'axe y peut être ajustée par le profil :

$$T(x, y) = T_0(x, 0) \frac{1}{1 + (y/y_0)^\alpha} \quad (1 \leq \alpha \leq \infty) \quad (\text{II-19})$$

où $T_0(x) = T(x, y=0)$, $y_0(x)$ est un paramètre qui détermine la profondeur du volume de plasma le long de la direction d'observation y. Le paramètre α définit la forme du profil de température : d'un profil linéaire à forte pente ($\alpha = 1$) à un profil rectangulaire pour un plasma homogène ($\alpha = \infty$) en passant par un profil parabolique ($\alpha = 2$).

En introduisant l'approximation décrite par l'équation (II-17) et le profil de température (II-19) le long de y, on obtient après intégration de l'expression (II-15) :

$$I(x) = 2 \varepsilon_0(x) y_0 \frac{\Gamma(1/\alpha)}{\alpha} \left(\frac{k T_0}{E_k}\right)^{1/\alpha} \left(1 + \frac{1}{\alpha} \frac{k T_0}{E_k}\right) \quad (\text{II-20})$$

où $\varepsilon_{0(x)} = \varepsilon(x, y=0)$ est le coefficient d'émission volumique pour le maximum de la distribution de température et $\Gamma(1/\alpha)$ est la fonction Gamma.

Dans les conditions de notre étude, la distribution de température dans une direction perpendiculaire au plan des électrodes peut être ajustée par un profil parabolique ($\alpha = 2$). Ainsi, $\alpha = 2$ et $\Gamma(1/2) = \pi^{1/2}$ et tant que $kT_0 \ll \alpha E_k$, l'équation (II-20) devient :

$$I(x) = \sqrt{\pi} \varepsilon_0(x) y_0 \sqrt{\frac{k T_0(x)}{E_k}} \quad (\text{II-21})$$

On remplace alors dans l'expression (II-21), $\varepsilon_0(x)$ par son expression (II-17) compte tenu de (II-18).

Par comparaison de la mesure des intensités de deux raies spectrales 1 et 2 issues de deux niveaux d'énergie distincts, d'un même atome ou d'un même ion, on peut calculer la température.

Ainsi, en enregistrant deux intensités de deux raies d'argon, on peut déterminer directement la température dans le plan de symétrie par l'équation suivante :

$$T(x, 0) = \frac{E_{m2} - E_{m1}}{k} \left\{ \ln \left[\frac{I_2(x) A_1 g_1 \lambda_2 \left(\frac{E_{m2}}{E_{m1}} \right)^{1/2}}{I_1(x) A_2 g_2 \lambda_1} \right] \right\}^{-1} \quad (\text{II-22})$$

que l'on peut écrire sous la forme :

$$T(x, 0) = - \frac{\Delta E_k}{k} \times \left(\Delta \ln \frac{I_{ki} \lambda_{ki} E_k^{1/2}}{A_{ki} g_k} \right) \quad (\text{II-23})$$

Si l'on suppose le plasma non-stationnaire, en prenant en compte, par exemple, le mouvement plus ou moins erratique de l'arc anodique au voisinage du bain, il faut considérer que l'expression (II-20) représente une valeur instantanée de l'intensité d'une raie spectrale. Elle peut aussi s'écrire sous la forme suivante :

$$I(x) = \frac{2 y_0}{\alpha} \mu^{1/\alpha} \varepsilon(T_0) \left(1 + \frac{\mu}{\alpha} \right) \Gamma \left(\frac{1}{\alpha} \right) \quad (\text{II-24})$$

où $\mu = kT_0/E$.

En remplaçant $\varepsilon(T_0)$ dans l'équation (II-24) par son expression (II-17), sachant que $kT_0 \ll \alpha E_k$ soit $\mu/\alpha \ll 1$, il vient en faisant le rapport des intensités I_1 et I_2 de deux raies spectrales 1 et 2 selon l'expression (II-24).

$$kT_0 \approx (E_1 - E_2) \left[\ln \left(\frac{C_1}{C_2} \right) - \ln \left(\frac{I_1}{I_2} \right) - \alpha^{-1} \ln \left(\frac{E_1}{E_2} \right) \right]^{-1} \quad (\text{II-25})$$

où $C_{1,2}$ est un paramètre propre à chacune des raies.

Il a été montré /BARONNET J.M. et al, 1999/ que, parmi les paramètres T_0 , y_0 , α qui déterminent la loi de distribution de températures selon y , T_0 est celui dont les fluctuations en fonction du temps influencent le plus les intensités des raies spectrales.

En conséquences, les fluctuations de T_0 autour de sa valeur moyenne \bar{T}_0 ont été choisies pour représenter l'instabilité du plasma /ERSHOV-PAVLOV E.A. et al, 2001/. Si on considère que le mode de fluctuation obéit à une loi de type "dent de scie" /CERQUEIRA N. et al, 2002/, la fonction de distribution de probabilité des fluctuations de température est donnée par la relation suivante:

$$\Psi_{\text{Sw}}(T) = \frac{1}{2\Delta T} \quad \text{avec} \quad |T - \bar{T}_0| \leq \Delta T \quad (\text{II-26})$$

La loi (II-26) traduit une probabilité constante de réalisation de la valeur de la température : à l'intérieur du domaine d'amplitude des fluctuations, toutes les valeurs de température sont également probables.

La valeur moyenne de l'intensité $\langle I \rangle$ d'une raie spectrale donnée émise par un volume donné de plasma non-stationnaire peut être obtenue en moyennant la valeur de l'intensité instantanée donnée par la relation (II-24) où la température est introduite avec sa fonction de probabilité (II-26). On obtient :

$$\langle I \rangle = C y_0 \frac{\Gamma(1/\alpha)}{\alpha} \frac{1}{\sigma} \frac{1}{T_0} \mu^{1/\alpha+1} \left(1 + \frac{\mu}{\alpha} \right) \exp\left(-\frac{E_k}{k T_m} \right) \quad (\text{II-27})$$

$$\sigma \text{ étant défini par } \sigma = \frac{\Delta T}{T_0}, \text{ et } \mu = \frac{k T_0}{E_k}.$$

$T_m = \overline{T_0}(1+\sigma)$ est la plus haute valeur prise par la température T_0 le long de la direction de visée y durant le temps d'observation, c'est-à-dire le temps d'enregistrement du spectre par le détecteur CCD, soit 0,6 s pour la configuration décrite précédemment.

La valeur T_m peut se déduire du rapport des intensités moyennes de deux raies spectrales distinctes d'un même atome ou d'un même ion. Il est légitime de négliger μ/α devant 1 et l'on obtient en prenant $\frac{(1+\alpha/\mu)_1}{(1+\alpha/\mu)_2} \approx 1$, lorsque l'on fait le rapport des intensités de

deux raies spectrales 1 et 2 :

$$T_m \approx \left[\frac{E_1 - E_2}{k} \right] \left[\ln\left(\frac{C_1}{C_2} \right) - \ln\left(\frac{I_1}{I_2} \right) - \Omega \ln\left(\frac{E_1}{E_2} \right) \right]^{-1} \quad (\text{II-28})$$

$$\text{où } C = \frac{hc}{4\pi k \lambda} \frac{1}{Q_a} A_{ki} g_k \text{ et } \Omega \text{ est le facteur correctif :}$$

- ✓ $\Omega = 1/\alpha$ pour un plasma non fluctuant et donc tel que $T_m = T_0$ indépendante du temps,
- ✓ $\Omega = 1/\alpha + 1$ pour un plasma supposé présenter une distribution de fluctuations de type "dent de scie".

L'équation (II-28) est équivalente à l'équation (II-25), mais la présence du facteur Ω la rend plus générale :

- ✓ pour un plasma homogène $\alpha = \infty$ et stationnaire $\Omega = 0$,
- ✓ pour un plasma homogène $\alpha = \infty$ et présentant une distribution de probabilité de type "dent de scie", $\Omega = 1$,
- ✓ et enfin pour un plasma présentant une distribution de température le long de y de type parabolique, $\alpha = 2$, et une distribution de probabilité de fluctuations de type "dent de scie", $\Omega = 1,5$.

L'équation (II-28) peut s'écrire :

$$T_m = \frac{\Delta E_k}{k} \Delta \left(\ln \frac{A_{ki} g_k}{I_{ki} \lambda_{ki} E_k^\Omega} \right) \quad (\text{II-29})$$

soit :

$$\ln \left(\frac{A_{ki} g_k}{I_{ki} \lambda_{ki} E_k^\Omega} \right) = \frac{E_k}{k T} + \text{constante} \quad (\text{II-30})$$

Le Tableau II-7 présente les caractéristiques spectroscopiques des raies spectrales sélectionnées car présentant l'avantage de se trouver sur un intervalle de longueur d'onde inférieur à 180 Å, tout en étant issues de niveaux d'énergie très différents.

	λ (Å)	$A_{\text{sup inf}} (10^8 \text{ s}^{-1})$	$E_{\text{inf}} (\text{cm}^{-1})$	$E_{\text{sup}} (\text{cm}^{-1})$	$E_{\text{sup}} (\text{eV})$	g_{inf}	g_{sup}
Ar	7141,041	$6,25 \cdot 10^{-3}$	93143,76	107131,709	13,28	5	3
	7107,477	$4,50 \cdot 10^{-3}$	105617,27	119683,082	14,84	5	5
	7125,820	$6,00 \cdot 10^{-3}$	107131,709	121164,314	15,02	3	3
	7206,980	$2,48 \cdot 10^{-3}$	107289,7	121161,314	15,02	5	3
Ar ⁺	7121,737	$5,00 \cdot 10^{-3}$	145668,884	159706,533		4	2
	7233,536	$3,70 \cdot 10^{-2}$	147228,052	161048,741		2	4

Tableau II-7 : Caractéristiques des raies spectrales considérées

L'évolution des coefficients d'émission volumiques de ces raies est présentée sur la Figure II-24. On constate que la température dite normale des raies considérées de Ar est de l'ordre de 15 000 K. En conséquence, la méthode décrite précédemment ne peut être utilisée avec ces raies dans les zones où la température est susceptible de dépasser 15 000 K, c'est-à-dire dans le bulbe situé au voisinage immédiat de la pointe de cathode.

Par ailleurs, on peut constater que les coefficients d'émission volumiques de ces deux raies varient d'un ordre de grandeur lorsque la température varie de 1000 à 2000 K donc on ne peut mesurer la température que dans un intervalle restreint par rapport au maximum des températures $T_0(x)$.

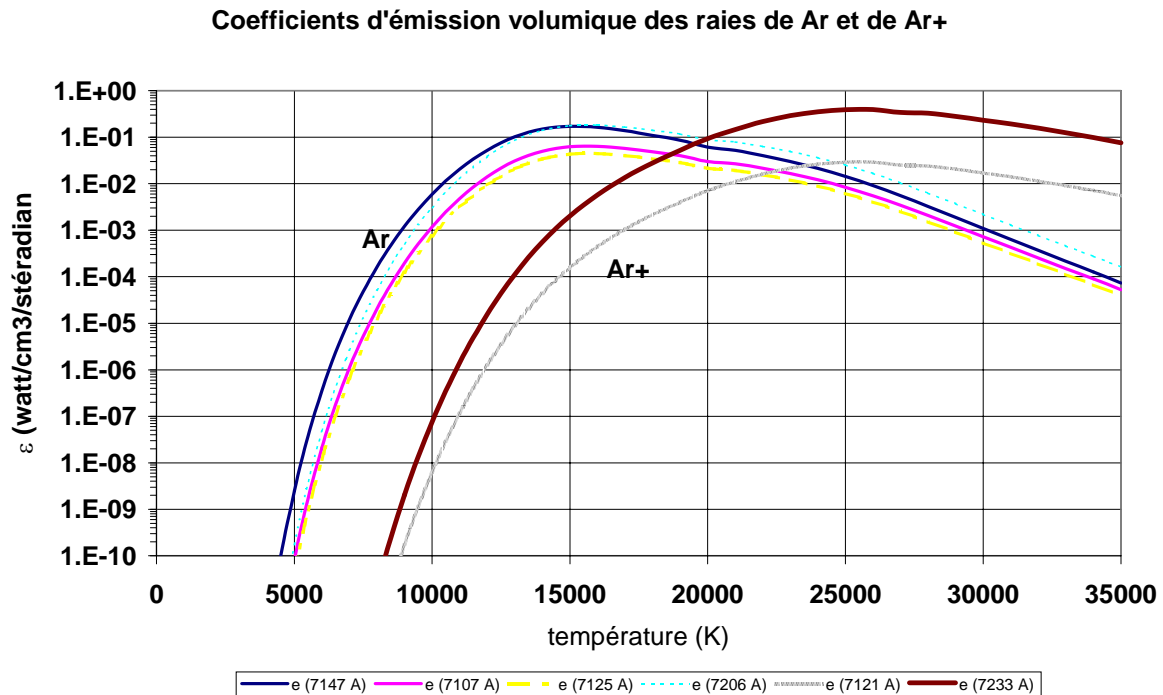


Figure II–24 : Evolution des coefficients d'émission volumique des raies de Ar et Ar⁺

Ainsi, pour une mesure à l'altitude z , à partir du profil d'intensité enregistré sur une piste de la cible, c'est-à-dire correspondant à une direction de visée y à la position x , nous déterminons, à partir de leurs surfaces respectives après soustraction de leur continuum, les intensités relatives des raies spectrales 7147, 7107, 7125 et 7206 Å de Ar. Ensuite, on représente (cf. Figure II–25) pour chacune des raies de l'argon du Tableau II-7, en unité arbitraire, la valeur de $\ln\left(\frac{A_{ki} g_k}{I_{ki} \lambda_{ki} E_k^{1,5}}\right)$ d'une part et la valeur de $\ln\left(\frac{A_{ki} g_k}{I_{ki} \lambda_{ki} E_k^{0,5}}\right)$ d'autre part en fonction de E_k du niveau de départ. Les quatre points représentatifs de chacune des séries sont ajustés sur une droite dont la pente nous donne les valeurs de $1/T_m$ (pour un plasma fluctuant suivant une fonction de distribution de probabilité en "dent de scie") et de $1/T_0$ (pour un plasma non fluctuant), l'un et l'autre présentant un profil de température parabolique suivant y .

Cette procédure permet d'évaluer l'amplitude de l'incertitude du résultat introduite par la prise en compte, ou la non prise en compte, des instabilités du plasma : ~ 800 K dans les conditions de cet exemple. L'opération est réitérée pour les différentes pistes de deux cibles, d'une part côté anode, d'autre part côté cathode (cf. Figure II–26).

De l'ensemble des considérations qui précèdent, on peut estimer que, compte tenu de la méthode utilisée et des incertitudes propres à la mesure des intensités des raies spectrales, on pourra obtenir les températures $T_0(x, y)$ avec une précision de l'ordre de 10% entre 9000 et 15 000 K.

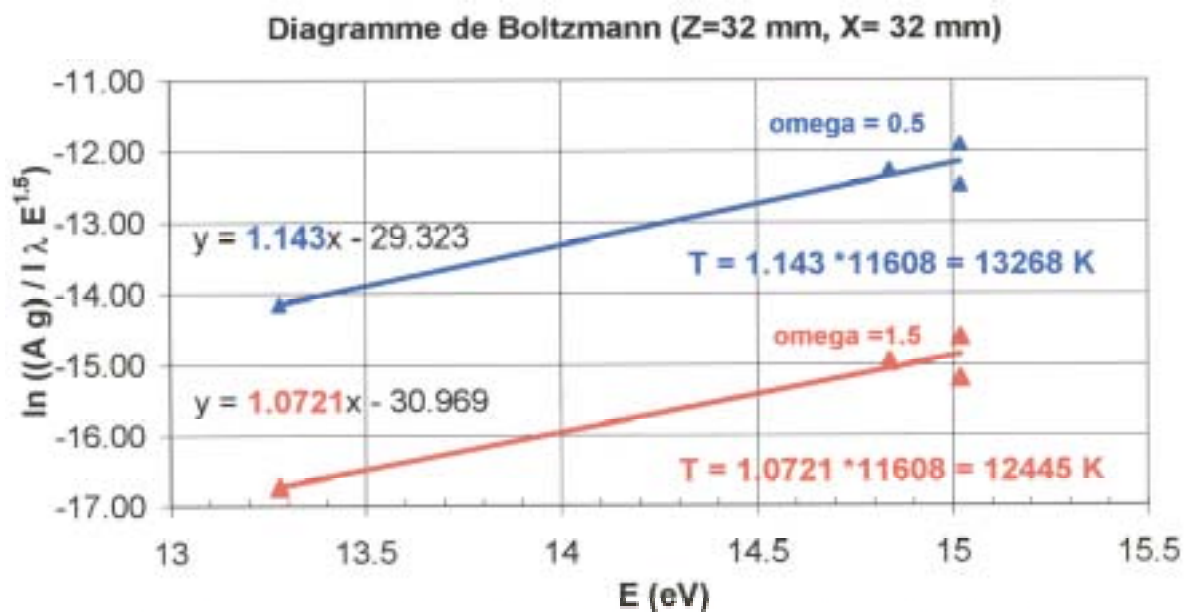


Figure II-25 : Détermination de la température en un point

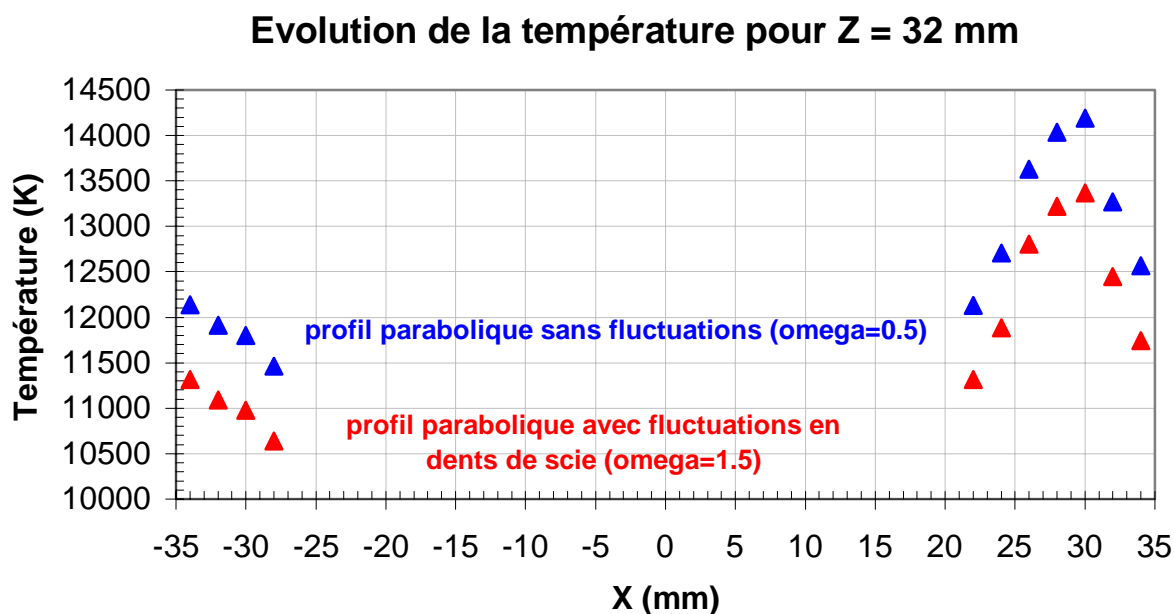


Figure II-26 : Profils de température à l'altitude z = 32 mm

II - 4 - Mesure de la conductivité thermique de la fritte de verre

II - 4 - 1 - Préambule

La conductivité thermique est la grandeur qui caractérise la diffusion de la chaleur dans les milieux sans mouvement macroscopique de matière /DEGIOVANNI A., 2000/ et /DEGIOVANNI A., 2000/.

Dans un matériau homogène et isotrope, la densité φ de flux de chaleur est liée au gradient de température par l'intermédiaire de la conductivité thermique λ selon la loi de Fourier :

$$\varphi = -\lambda \nabla T \quad (\text{II-31})$$

La conductivité thermique s'exprime en $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Pour un transfert de chaleur dans un mur d'épaisseur e dont les températures T_1 et T_2 des deux faces planes de surfaces S sont maintenues uniformes et constantes, si $T_1 > T_2$, la puissance thermique Φ (quantité de chaleur traversant le mur) s'exprime en régime permanent par l'expression suivante :

$$\Phi = \lambda \frac{S}{e} (T_2 - T_1) \quad (\text{II-32})$$

Les méthodes de mesure de la conductivité thermique sont habituellement classées en deux grandes catégories : les méthodes en régime permanent et celles en régime transitoire. Dans les premières, le temps n'intervient pas ; elles permettent d'atteindre uniquement la conductivité thermique ; dans les secondes, les mesures sont effectuées en fonction du temps et permettent l'identification de plusieurs paramètres : conductivité, diffusivité, effusivité ou d'autres groupements des variables de conductivité thermique (λ), chaleur massique (c) et masse volumique (ρ). Pour être complet, il conviendrait d'ajouter les méthodes spécifiques à la mesure de la capacité thermique massique : les méthodes calorimétriques.

Les méthodes en régime transitoire sont actuellement les plus utilisées. Toutes ces méthodes consistent à appliquer sur un échantillon à l'équilibre une perturbation thermique et à mesurer une ou plusieurs températures ou flux en fonction du temps. Les perturbations peuvent être classées suivant leur type : échelon (flux constant), dirac (flux impulsionnel), périodiques ou encore de forme quelconque mais finie.

II - 4 - 2 - Méthode choisie

Il existe différentes méthodes de mesure de la conductivité thermique : en régime permanent, en régime quasi-stationnaire ou en régime transitoire.

L'objectif de notre travail étant d'avoir une méthode simple d'utilisation et de mise en œuvre, les méthodes en régime transitoire ou semi-permanent sont exclues car elles nécessitent un montage trop complexe au regard du résultat attendu. La mesure peut s'effectuer sur des temps longs donc seules les méthodes en régime permanent sont retenues, parmi elles la méthode dite des plaques chaudes a été choisie. Cette méthode permet d'atteindre des résultats assez précis. La conception du banc de mesure est relativement simple car elle repose sur l'utilisation de cylindres de cuivre placés de manière coaxiale. La fritte de verre est placée entre les deux cylindres. Le chauffage se fait par le cylindre extérieur à l'aide de cordons chauffants et la mesure du flux est obtenue par l'intermédiaire d'une circulation d'eau, dans le cylindre intérieur, dont on mesure la température d'entrée et de sortie à l'aide de sondes de température de type Pt 100. Cette configuration est plus simple à mettre en œuvre que celle par exemple du fil chaud, par contre, elle ne permet pas de s'affranchir des pertes de chaleur par l'extérieur donc le four est nécessairement calorifugé (cf. Figure II-27). Ce calorifuge permet de limiter la convection naturelle autour du cylindre, qui pourrait fausser la valeur du flux passant réellement dans la fritte de verre. Les cylindres sont installés verticalement afin d'assurer un refroidissement homogène et donc de simplifier la mesure de puissance. La température est mesurée le long d'un rayon par des sondes de température de type Pt 100. Ceux-ci sont placés parallèlement à l'axe des cylindres, c'est-à-dire selon les isothermes dans le verre afin de lever la possibilité de mesure d'une autre température. Le choix du cuivre pour les parois des cylindres s'est imposé car il est de faible émissivité et très bon conducteur de la chaleur, ce qui facilite l'obtention de températures uniformes sur les parois et donc une bonne transmission de la chaleur vers la fritte.

Un des principaux problèmes qui se pose lors des mesures de conductivités thermiques de verre est que les transferts de chaleur à travers de tel milieu ne sont pas purement conductifs. En effet, le verre est un milieu semi-transparent ; il émet son propre rayonnement volumique et transmet, diffuse et absorbe le rayonnement provenant de l'extérieur. Cela influe sur le champ de température et donc sur la méthode d'identification théorique de la conductivité. Cependant il a été montré que le rayonnement n'a d'effet significatif par rapport à la conduction qu'au dessus de 800°C, ce qui est supérieur à la température maximale de mesure /DEGIOVANNI A., 2000/.

La méthode que nous avons choisie d'appliquer, dite des plaques chaudes, nécessite de dimensionner le four afin de n'obtenir qu'un flux radial. Pour cela, on limite au maximum les effets de bords en dimensionnant les cylindres de grande taille par rapport au diamètre (on a pris une hauteur 8 fois plus importante que l'espace situé entre les deux cylindres).

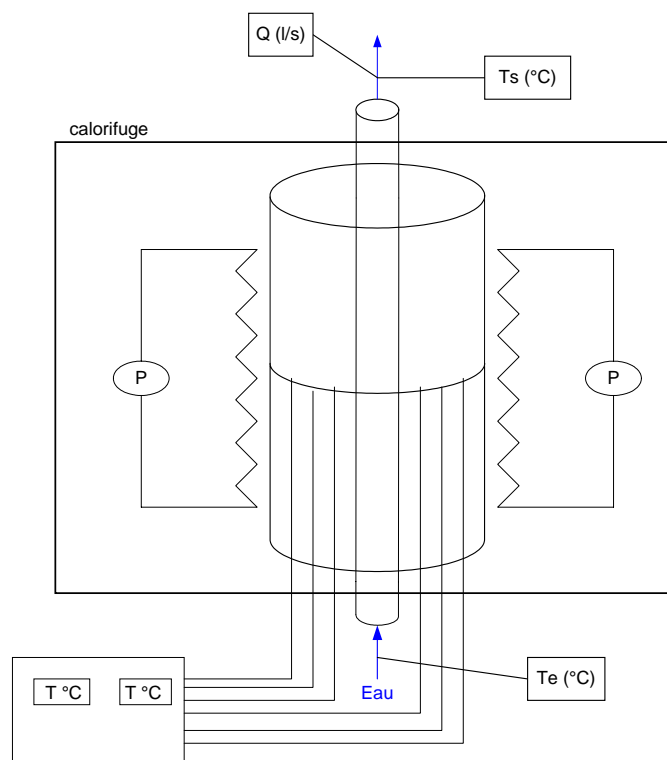


Figure II–27 : Banc de mesure de la conductivité thermique de fritte de verre

II - 4 - 3 - Identification des paramètres

Selon le modèle adopté, on peut trouver plusieurs façons d'identifier la conductivité thermique à partir d'un relevé de température et de puissance. La connaissance de cette dernière est indispensable car c'est la seule grandeur faisant intervenir la conductivité. La puissance doit intervenir soit directement (mesure) soit indirectement en la calculant en fonction de la température et du coefficient global de transfert thermique ($\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$).

Plusieurs méthodes ont été recensées dans la littérature et mises en œuvre afin de vérifier la cohérence des résultats. Les différentes méthodes utilisées sont décrites rapidement. Elles sont par la suite appliquées à la fritte de verre choisie pour cette étude : R7/T7.

II - 4 - 3 - 1 - Méthode 1

La conductivité est indépendante de la température (ou au moins considérée constante sur une plage de température) avec pour condition à la limite une température imposée sur les deux cylindres. En permanent, le champ de température est alors donné par la relation suivante :

$$\Delta T = 0 = \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \quad (\text{II-33})$$

Par intégration on obtient alors :

$$T = T_i + (T_i - T_{i+1}) \frac{\ln(r/R_i)}{\ln(R_i/R_{i+1})} \quad (\text{II-34})$$

et donc

$$\Phi = 2\pi z \lambda \frac{T_i - T_{i+1}}{\ln(R_i/R_{i+1})} \quad (\text{II-35})$$

z est la hauteur de la zone de mesure, elle est choisie de telle façon qu'à l'intérieur des cylindres la température ne dépende pas de la hauteur à laquelle la mesure est effectuée. On mesure donc Φ , T_i , T_{i+1} et on déduit λ . De manière pratique, on prendra pour R_i et R_{i+1} , deux points de mesures adjacents plutôt que les deux points de mesure extrêmes.

II - 4 - 3 - 2 - Méthode 2

Cette méthode suppose le calcul direct de la conductivité thermique en considérant la conservation du flux de chaleur. On écrit alors l'équation de conservation du flux sans tenir compte de l'évolution théorique de la température mais en évaluant tout de même le gradient de température par la mesure. L'équation s'écrit alors :

$$\lambda = \frac{\Phi}{2\pi r z (\nabla T)} \quad (\text{II-36})$$

II - 4 - 3 - 3 - Méthode 3

Pour cette méthode, on suppose que la conductivité dépend linéairement de la température. En s'imposant une contrainte sur l'évolution de la conductivité en fonction de la température, on peut faire l'identification en tenant compte du gradient de conductivité :

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \lambda \frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad (\text{II-37})$$

En posant $\lambda = \alpha T + \beta$ on obtient après développement :

$$\alpha \left[(\nabla T)^2 + \frac{1}{r} T (\nabla T) + T (\nabla^2 T) \right] + \beta \left[\frac{1}{r} (\nabla T) + (\nabla^2 T) \right] = 0 \quad (\text{II-38})$$

Nous disposons de 5 points de mesures qui donnent des couples (T_j, R_j) et de deux inconnues (α, β) . Mais ce système n'a pas de second membre, la solution sera donc $(0, 0)$, il faut donc ajouter une équation contenant une information sur le flux, par exemple un transfert convectif au centre :

$$\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{R_i} = h(T_i - T_e) \approx (\alpha T_i + \beta) \frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta x} \quad (\text{II-39})$$

Cette dernière équation fournit le second membre du système, elle représente une condition à la limite sur le flux. On dispose alors de 6 équations pour 2 inconnues. Les équations tenant compte des deux premiers rayons peuvent être supprimées car l'équation du flux fait déjà intervenir ces deux points de mesures. On ne résout le système qu'avec les mesures en R_3, R_4 et R_5 puis faire une moyenne des résultats obtenus. Le système à résoudre est donné par la relation suivante :

$$\begin{bmatrix} \left[(\nabla T)_j^2 + \frac{1}{r} T_j (\nabla T)_j + T_j (\nabla^2 T)_j \right] \left[\frac{1}{r_j} (\nabla T)_j + (\nabla^2 T)_j \right] \\ \frac{T_i T_{i+1} - T_i^2}{\Delta r} \quad \frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta r} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha \\ \beta \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ h(T_i - T_e) \end{bmatrix} \quad (\text{II-40})$$

Il suffit maintenant d'inverser la matrice afin d'obtenir α et β , et donc l'évolution de la conductivité thermique sur la plage de température considérée.

Le principal avantage de cette méthode est de résoudre directement l'équation de la thermique. De plus, la mesure de flux n'est pas nécessaire. Par contre, il faut être capable de calculer le coefficient h . Ce dernier peut être déterminé de différentes façons selon les méthode de Sieder et Tate ou de Hausen /DEGIOVANNI A., 2000/ :

II - 4 - 3 - 4 - Méthode 4

Cette méthode est utilisée en supposant que la conductivité dépend quadratiquement de la température.

$$\lambda = \alpha T^2 + \beta T + \gamma \quad (\text{II-41})$$

La matrice est la suivante :

$$\begin{bmatrix} 2T_j (\nabla T)_j^2 + \frac{T_j^2}{r_j} (\nabla T_j + T_j^2 (\nabla^2 T)_j) (\nabla T)_j^2 + \frac{T_j}{r_j} (\nabla T)_j + T_j (\nabla^2 T)_j \frac{1}{r_j} (\nabla T)_j + (\nabla^2 T)_j \\ 2T_k (\nabla T)_k^2 + \frac{T_k^2}{r_k} (\nabla T_k + T_k^2 (\nabla^2 T)_k) (\nabla T)_k^2 + \frac{T_k}{r_k} (\nabla T)_k + T_k (\nabla^2 T)_k \frac{1}{r_k} (\nabla T)_k + (\nabla^2 T)_k \\ T_i^2 \frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta r} & T_i \frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta r} & \frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta r} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha \\ \beta \\ \gamma \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ h(T_i - T_e) \end{bmatrix} \quad (\text{II-42})$$

Comme pour la méthode précédente, il suffit d'inverser la matrice et on en déduit α , β et γ .

II - 4 - 3 - 5 - Méthode 5

Cette méthode suppose que l'on obtient exactement une évolution logarithmique pour la température le long d'un rayon, il est alors possible (par la méthode des moindres carrés qui ne sera pas décrite ici) de déterminer deux coefficients A et B tels que :

$$T = A \times \ln(r) + B \quad (\text{II-43})$$

La conductivité thermique s'exprime alors de la manière suivante :

$$\lambda = \frac{\Phi}{2\pi z A} \quad (\text{II-44})$$

II - 4 - 4 - Application à la fritte de verre R7/T7

Les valeurs expérimentales, obtenues avec le banc de mesure mis au point et décrit dans le paragraphe précédent, sont présentées dans le Tableau II-8.

	Température (°C)
$R_1 = 2,7 \text{ cm}$	82,9
$R_2 = 4,7 \text{ cm}$	115,8
$R_3 = 5,2 \text{ cm}$	121,9
$R_4 = 6,6 \text{ cm}$	136,0
$R_5 = 10 \text{ cm}$	160,7
T_e (eau entrée)	25,8
T_s (eau sortie)	27,5

Tableau II-8 : Relevé de température sur le banc d'essais de mesure de la conductivité thermique de la fritte de verre R7/T7

On note également que le débit d'eau traversant le cylindre intérieur est stabilisé à $48,3 \text{ L.h}^{-1}$ et que la puissance de chauffe des parois externes du cylindre extérieur est de $95,3 \text{ W}$.

Nous avons alors appliqué les différentes méthodes d'identification présentées dans les chapitres précédents, et les résultats obtenus sont les suivants :

✓ Méthode 1

Position	$\lambda \text{ (W.m}^{-1}.\text{K}^{-1})$	T (°C)
Entre R ₅ et R ₄	0,102	148,3
Entre R ₄ et R ₃	0,401	128,9
Entre R ₃ et R ₂	0,627	118,9
Entre R ₂ et R ₁	0,736	99,4

✓ Méthode 2

Position	$\lambda \text{ (W.m}^{-1}.\text{K}^{-1})$	T (°C)
En R ₅	0,546	160,7
En R ₄	0,436	136,1
En R ₃	0,354	121,9
En R ₂	0,955	115,9
En R ₁	1,135	82,9

✓ Méthode 3 et 4

Après établissement des gradients de température dans les deux cas, les coefficients de la matrice sont calculés et on détermine : $\lambda = 0,74 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ avec une loi d'évolution en fonction de la température donnée par la relation suivante :

$$\lambda = -5,65.10^{-2} T + 9,78 \quad (\text{II-45})$$

Pour calculer les coefficients de la matrice, nous avons estimé le coefficient d'échange h en utilisant la méthode de Sieder et Tate non corrigée ; on obtient alors $h = 8390 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$.

✓ Méthode 5

On détermine plusieurs lois d'évolution logarithmique de la température le long du rayon en fonction du temps. Après 16h00 de mise à l'équilibre thermique du banc de mesure, on détermine la relation suivante : $T = 59,412 \ln(r) + 297,55$. On en déduit alors que $A = 59,412$ et donc que $\lambda = 0,626 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Si on prend un autre temps, comme 9h00 après la mise en chauffe, on obtient la relation suivante : $T = 60,048 \ln(r) + 300,42$, les valeurs de A et λ sont alors respectivement de 60,048 et $0,619 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

II - 4 - 4 - 1 - Conclusion

La valeur moyenne de la conductivité thermique de la fritte de verre R7/T7 est : $\lambda = 0,72 \pm 0,12 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. L'incertitude indiquée est en fait obtenue en effectuant une moyenne sur les résultats obtenus par chacune des méthodes appliquées. Cette valeur de la conductivité de la fritte de verre est constante dans une gamme de température allant de 25 à 700°C.

C'est cette valeur de la conductivité thermique qui sera utilisée dans ESTET afin d'appréhender les phénomènes d'autocreuset par la prise en compte des propriétés physiques.

III - MODELISATION DU FOUR SHIVA

L'objectif de ce travail de modélisation est de simuler le fonctionnement du four de combustion/vitrification afin d'appréhender les phénomènes prenant place dans l'écoulement gazeux (plasma et gaz environnant) et dans le verre en fusion.

Nous modélisons à la fois l'écoulement plasma, et celui du bain de verre en utilisant les échanges des différents flux entre ces deux milieux. Le code de calcul permet de traiter simultanément la transition solide - liquide. Les vitesses d'écoulement de la matière dans le verre et dans le plasma sont très différentes. On peut calculer les temps caractéristiques des deux écoulements : ils correspondent au temps qu'il ne faut pas dépasser pour éviter des oscillations qui empêcheraient d'atteindre un état quasi-stationnaire :

✓ pour le verre :

le temps caractéristique de l'écoulement dans le verre en fusion est donné par la relation suivante :

$$\Delta t = \sqrt{\frac{g \Delta \rho}{\rho} z} \quad (\text{III-1})$$

où $\Delta \rho$ représente la différence de masse volumique entre le verre et la fritte de verre ($1\,000\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$), ρ la masse volumique du verre et z la hauteur du creuset (0,2 m). Le pas de temps calculé est de l'ordre de 1 seconde. Ce temps caractéristique doit permettre d'atteindre un écoulement permanent. Dans le verre, on suppose que l'écoulement est de type convection naturelle, ce que l'on peut vérifier en calculant le nombre de Peclet qui est le rapport de nombre de Courant sur le nombre de Fourier. Dans notre cas, le nombre de courant est voisin de $4\cdot 10^{-2}$ et le nombre de Fourier voisin de $1,5\cdot 10^8$: le nombre de Peclet est donc de l'ordre de $3\cdot 10^{-8}$. Enfin, les fortes viscosités rencontrées dans ce type de milieu permettent de considérer l'écoulement comme incompressible. Il est également possible de justifier l'hypothèse d'un écoulement laminaire en déterminant le nombre de Grashof donné par la relation suivante :

$$\text{Gr} = \frac{g \beta \Delta T L^3}{\nu^2} = \frac{V_g L}{\nu}$$

avec V_g : la vitesse de "chute" calculée comme suit : $V_g = \sqrt{g\beta\Delta TH}$. Gr est de l'ordre de 0,8 ; l'écoulement est donc considéré comme laminaire.

✓ pour le plasma :

l'écoulement plasma dépend fortement de la valeur du terme d'effet Joule. On peut donner un ordre de grandeur du temps caractéristique de l'écoulement (permettant d'atteindre un état quasi-stationnaire) dans le plasma par la relation proposée par /DELALONDRE C., 1990/ :

$$\Delta t_c = \rho_c \frac{\Delta H_c}{\vec{J} \cdot \vec{E}} \quad (\text{III-2})$$

avec $\rho_c \sim 10^{-3} \text{ kg.m}^{-3}$, $\Delta H_c \sim 10^8 \text{ J.kg}^{-1}$ et $\vec{J} \cdot \vec{E} \sim 10^{12} \text{ W.m}^{-3}$, on en déduit alors $t_c \sim 10^{-7}$ secondes. Dans le plasma, l'écoulement est de type diffusif et convectif. Les viscosités importantes rencontrées dans la colonne d'arc /DELALONDRE C. et al, 1992/ et /DELALONDRE C. et al, 1994/ permettent de considérer l'écoulement laminaire, justifié par un nombre de Reynolds inférieur à 2 000.

$$\text{Re} = \frac{U_c \Phi}{\eta} \quad (\text{III-3})$$

avec $U_c \sim 150 \text{ m.s}^{-1}$, $\phi \sim 10^{-3} \text{ m}$ et $\eta \sim 10^{-4} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, $\text{Re} \sim 1\,500$, l'hypothèse de l'écoulement laminaire est donc bien justifiée.

Le nombre de Mach, significatif du type d'écoulement (subsonique, supersonique), est calculé de la manière suivante :

$$M = \frac{V}{c} \quad (\text{III-4})$$

avec

$$c = \sqrt{\gamma \frac{RT}{M}} \quad (\text{III-5})$$

Sa valeur, $\sim 0,3$, significative d'un écoulement subsonique, permet d'affirmer que l'hypothèse d'un écoulement incompressible est justifiée : il est possible de négliger les effets de la pression sur la masse volumique.

Ainsi, la différence de 7 ordres de grandeur entre ces deux temps caractéristiques, nous conduit à découpler la modélisation des écoulements dans deux domaines distincts. Les hypothèses et approximations sont alors très différentes et ne permettent pas de réaliser un calcul global. Mais découpler les deux domaines permet de simplifier la mise en œuvre de la modélisation.

Par la suite, nous appellerons *domaine plasma* le domaine de calcul relatif au four à plasma surplombant le *domaine verre*, qui lui concerne uniquement la fusion de verre dans un creuset métallique à parois froides.

La Figure III–1 présente, dans un plan vertical, les différents domaines de calculs : le *domaine plasma* et le *domaine verre*.

Le but recherché est un état stationnaire des deux écoulements. Cependant l'un des points importants permettant de valider les résultats de calcul obtenus serait de vérifier l'instabilité de l'arc électrique, mise en évidence de manière expérimentale grâce à une caméra ultrarapide. On remarque alors un battement de l'arc électrique de bas en haut (et inversement) que l'on peut traduire par une "fréquence de battement" (1 à 10 kHz).

De ce fait, on peut noter que les résultats de la simulation du *domaine verre* (se traduisant par l'obtention d'une cartographie en température de la partie supérieure du verre) constituera une condition à la limite du domaine plasma et inversement ; les flux calculés ainsi que le champ de vitesses obtenu sur cette surface dans le cadre de la modélisation de l'écoulement plasma seront une condition à la limite en surface du bain de verre.

Dans la suite, nous décrivons les équations du modèle dans le cadre du traitement de l'arc électrique puis de la fusion de verre.

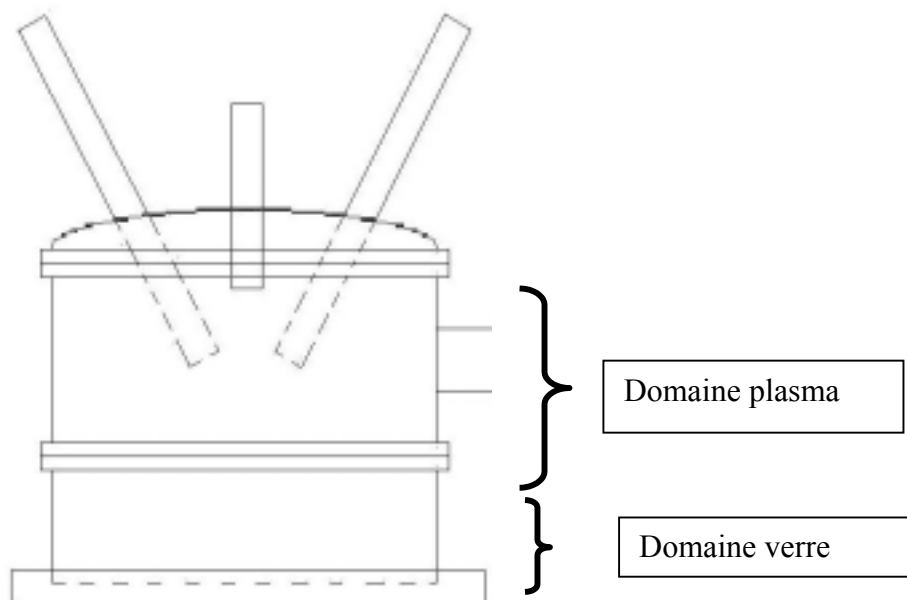


Figure III–1 : Représentation des zones de calculs

III - 1 - Modélisation de l'arc électrique

III - 1 - 1 - Préambule

Dans le cadre de notre étude, l'arc se développe de manière asymétrique entre deux électrodes métalliques aériennes avec une intensité voisine de 200 A ; la densité de courant peut atteindre 10^8 A.m^{-2} /VAQUIE S., 2000/. Cette décharge, contrairement à celle de faible intensité, est dominée par de forts effets dynamiques induits par la force électromagnétique, ou force de Laplace, comme le montre /MAECKER H., 1955/.

Dans les plasmas, de fortes densités de puissances sont mises en jeu ; il en résulte des densités électroniques suffisamment importantes pour que les échanges d'énergie par collisions entre les différentes particules soient suffisamment nombreux et efficaces. L'énergie cinétique moyenne est alors identique pour chacune d'entre elles. On suppose que le plasma vérifie l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local (ETL) introduite lors de l'établissement de la méthode de mesure in-situ de la température de l'arc électrique (cf. II - 3 -).

L'approche la plus largement employée dans la littérature pour la modélisation de colonnes d'arcs électriques à l'ETL est celle de l'utilisation des équations de la magnétohydrodynamique (MHD) : équations de conservation de la dynamique des fluides et de la thermique incluant les effets électromagnétiques décrits par les équations de Maxwell et l'équation de conservation de la densité de courant. Dans la suite, nous commencerons par détailler l'électromagnétisme ainsi que les hypothèses faites puis nous ferons de même avec la dynamique des fluides et la thermique.

L'approche MHD est applicable si certaines valeurs des paramètres que nous avons calculés sont vérifiées. Il faut donc s'assurer que l'hypothèse de neutralité électrique du plasma soit respectée à l'échelle macroscopique, que l'ordre de grandeur du paramètre de Hall soit petit devant l'unité. Enfin, le temps caractéristique de fluctuation d'arc est comparé avec la fréquence de collisions électrons-lourds et la fréquence de Larmor.

✓ Neutralité électrique

La longueur d'atténuation de Debye λ_D est la distance au dessus de laquelle toute perturbation de la neutralité électrique du plasma est résorbée :

$$\lambda_D = \left(\frac{\epsilon_0 k_B T_c}{n_e e^2} \right)^{1/2} \quad (\text{III-6})$$

En prenant une température de 10 000 K, la densité électronique n_e est de l'ordre de 2.10^{22} m^{-3} /KADDANI A. et al, 1995/, on calcule ainsi une longueur de Debye $\lambda_D \sim 5.10^{-8} \text{ m}$.

Le libre parcours moyen λ_e de l'électron est la distance parcourue entre deux collisions fortes :

$$\lambda_e = \frac{1}{\sum_{\beta} n_{\beta} Q_{e\beta}} \quad (\text{III-7})$$

$Q_{e\beta}$ sont les sections efficaces de collision entre l'électron et les particules lourdes β . Elles sont données par /DEVOTO R.S., 1973/. Le libre parcours moyen est de l'ordre de $2,8.10^{-6} \text{ m}$.

Ces deux longueurs caractéristiques du plasma vérifient :

$$\lambda_D \ll \lambda_e \quad (\text{III-8})$$

L'échelle macroscopique, à laquelle le plasma est considéré pour sa modélisation, est au moins aussi grande que λ_e et donc très grande devant λ_D . Par conséquent chaque élément de volume du plasma à l'échelle macroscopique est électriquement neutre.

✓ Paramètre de Hall

Le paramètre de Hall est défini par le rapport suivant :

$$\beta_e = \frac{\omega_e}{\nu_{e\beta}} \quad (\text{III-9})$$

où $\nu_{e\beta}$ est la fréquence moyenne de collision des électrons avec les autres particules.

$$\nu_{e\beta} = \frac{n_e e^2}{m_e \sigma_c} \quad (\text{III-10})$$

Pour une conductivité électrique $\sigma_c = 10^4 \text{ S.m}^{-1}$ ($T_c = 10 \text{ 000K}$), on obtient $\nu_{e\beta} = 2,8.10^{11} \text{ Hz}$. La fréquence de Larmor des électrons ω_e est définie par :

$$\omega_e = \frac{eB_c}{m_e} \quad (\text{III-11})$$

Il est donc nécessaire d'estimer la valeur caractéristique du champ magnétique B_c .

$$B_c = \frac{\mu_0 I}{2 \pi r_{\text{arc}}} \quad (\text{III-12})$$

Les arcs électriques, auxquels on s'intéresse, ont une intensité proche de 200 A pour un rayon de l'ordre du centimètre. On obtient $B_c \sim 4.10^{-3} \text{ T}$ et pour la fréquence de Larmor $\omega_e \sim 7.10^8 \text{ Hz}$. Nous pouvons maintenant estimer l'ordre de grandeur du paramètre de Hall :

$$\beta_e \sim 2,5 \cdot 10^{-3} \ll 1 \quad (\text{III-13})$$

Un paramètre de Hall petit devant l'unité permet d'utiliser la loi d'Ohm sous sa forme simplifiée.

✓ Temps caractéristique des mouvements de l'arc électrique

Il s'agit de l'échelle de temps des fluctuations à l'échelle macroscopique. Une estimation du temps caractéristique t_c a été réalisée par /GONZALES M., 1999/ pour un arc instable dans du SF₆. La mesure a donné une valeur de t_c voisine de 10^{-4} s.

Comme nous l'avons dit précédemment, nous recherchons un état stationnaire de l'arc électrique. En théorie le temps caractéristique d'un arc stable est infini. Il est alors envisageable de faire l'hypothèse que ce temps caractéristique t_c est suffisamment grand dans notre cas pour qu'il vérifie les relations suivantes :

$$t_c \gg v_{e\beta}^{-1} \quad (\text{III-14})$$

$$t_c \gg \omega_p^{-1} \quad (\text{III-15})$$

où ω_p est la fréquence des oscillations du plasma :

$$\omega_p = \left(\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \approx 1,8 \cdot 10^{13} \text{ Hz} \quad (\text{III-16})$$

Cette dernière hypothèse permet également d'utiliser la loi d'Ohm et la loi d'Ampère sous leur forme simplifiée.

La vérification des critères de validité de l'approche MHD est faite pour des grandeurs caractéristiques concernant la colonne d'arc électrique. Cependant, l'ensemble du système est appliqué dans la totalité du domaine plasma. Ceci est dû au fait qu'en dehors de la colonne d'arc, l'influence des termes électromagnétiques devient négligeable, et donc que les équations de la MHD dégénèrent vers celles de l'hydrodynamique classique.

III - 1 - 2 - Equation de l'électromagnétisme

Les écoulements relevant de la magnétohydrodynamique sont décrits par un système d'équations constitué par le couplage des équations de l'aérothermodynamique et des équations de Maxwell.

Les forces de Laplace sont la principale source de quantité de mouvement dans les arcs électriques /MAECKER H., 1955/. La force électrique, qui est un terme de couplage dynamique supplémentaire, n'apparaît pas dans (III-45), puisqu'elle est nulle dans un plasma d'arc considéré comme globalement neutre. Le travail de ces forces, appelé "effet

Joule", constitue le terme de couplage entre la thermique et l'électromagnétisme. Pour évaluer ces termes de couplage entre l'hydrodynamique et l'électromagnétisme, il est nécessaire de connaître les champs électromagnétiques, autrement dit de résoudre les équations de Maxwell.

III - 1 - 2 - 1 - Equations sur les champs électromagnétiques

Les équations de Maxwell nous donnent :

✓ la loi de Gauss :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\rho_v}{\epsilon_0} \quad (\text{III-17})$$

✓ la conservation du flux magnétique :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (\text{III-18})$$

✓ la loi de Faraday :

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{III-19})$$

✓ la loi d'Ampère :

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{III-20})$$

La loi de Gauss se simplifie en considérant la neutralité électrique du milieu ($\rho_v = 0$), elle devient :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \quad (\text{III-21})$$

Par une analyse dimensionnelle, on peut comparer les ordres de grandeurs du courant de déplacement et du courant de conduction dans la loi d'Ampère.

$$\frac{\left| \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right|}{|\vec{J}|} \approx \frac{\epsilon_0 E_c}{t_c \sigma_c E_c} = \frac{\epsilon_0}{t_c \sigma_c} \quad (\text{III-22})$$

Pour les gaz $\sigma_c = \left(\frac{n_e e^2}{m_e \nu_{e\beta}} \right)$ /MITCHNER M. et al, 1973/ ; il s'en suit en tenant

compte de la fréquence caractéristique de l'arc que :

$$\frac{\left| \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right|}{\left| \vec{J} \right|} \approx \frac{\varepsilon_0 m_e v_e \beta}{t_c n_e e^2} = \frac{v_{e\beta}}{t_c \omega_p^2} \quad (\text{III-23})$$

Les relations (III-14) et (III-15) impliquent que $t_c \gg \frac{v_{e\beta}}{\omega_p^2}$ et donc

$$\varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \ll \vec{J} \quad (\text{III-24})$$

A partir de cette relation, nous pouvons négliger dans la loi d'Ampère (II-19) le courant de déplacement par rapport au courant de conduction, ce qui conduit à :

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J} \quad (\text{III-25})$$

Cette simplification est appelée hypothèse quasi-stationnaire.

Les relations établies précédemment nous autorisent à utiliser la loi d'Ohm sous sa forme simplifiée :

$$\vec{J} = \sigma (\vec{E} + \vec{u} \times \vec{B}) \quad (\text{III-26})$$

En combinant les expressions (III-25) et (III-26), on obtient :

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \sigma (\vec{E} + \vec{u} \times \vec{B}) \quad (\text{III-27})$$

Le rotationnel de cette dernière relation, à l'aide de l'expression (III-18) donne une équation de transport sur le champ magnétique :

$$\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \vec{\nabla} \times (\vec{u} \times \vec{B}) + \frac{1}{\mu_0 \sigma} \Delta \vec{B} \quad (\text{III-28})$$

Le terme $\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$ représente le courant induit par les variations temporelles du champ magnétique. Le premier terme du membre de droite constitue le courant induit par le fluide et le second membre le courant de conduction.

En sortant $\Delta \vec{B}$ de la relation (III-28) et en estimant que sa valeur est proche de 1, alors $\mu_0 \sigma \frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$ et $\mu_0 \sigma \vec{\nabla} \times (\vec{u} \times \vec{B})$ ont pour ordre de grandeur respectif :

$$\mathfrak{R}_\omega = \frac{\mu_0 \sigma_c L_c^2}{t_c} \quad (\text{III-29})$$

$$\mathfrak{R}_{\text{mag}} = \mu_0 \sigma_c U_c L_c \quad (\text{III-30})$$

$$\mathfrak{R}_{\text{mag}} = 4\pi \cdot 10^{-7} \times 10^4 \times 150 \times 5 \cdot 10^{-2} = 9 \cdot 10^{-2}$$

\mathfrak{R}_ω est appelé paramètre d'écran et $\mathfrak{R}_{\text{mag}}$ le nombre de Reynolds magnétique. Comme précédemment, t_c est supposé suffisamment grand du fait du comportement quasi-stationnaire de l'arc pour que le paramètre d'écran soit négligeable. Ainsi, il est possible de négliger les courants induits par les variations temporelles du champ magnétique. La loi de Faraday se simplifie alors suivant :

$$\overline{\nabla} \times \overline{\mathbf{E}} = 0 \quad (\text{III-31})$$

Pour le nombre de Reynolds magnétique, nous supposons qu'il vérifie toujours $\mathfrak{R}_{\text{mag}} \ll 1$ /DOUCE A., 1999/, de sorte que les courants induits par le déplacement du fluide ne soient pas pris en compte dans nos modélisations. Cela permet de négliger l'action de la vitesse du fluide sur le champ magnétique, autrement dit, la loi d'Ohm se résume à :

$$\overline{\mathbf{J}} = \sigma \overline{\mathbf{E}} \quad (\text{III-32})$$

Enfin, pour compléter la partie électromagnétique du système d'équations de la magnétohydrodynamique, il faut énoncer la loi de conservation de la charge établie par /DELALONDRE C., 1990/ :

$$\frac{\partial \rho_v}{\partial t} + \overline{\nabla} \cdot \overline{\mathbf{J}} = 0 \quad (\text{III-33})$$

Le plasma d'arc vérifie la neutralité électrique donc (II-32) se met sous la forme :

$$\overline{\nabla} \cdot \overline{\mathbf{J}} = 0 \quad (\text{III-34})$$

III - 1 - 2 - 2 - Equations sur les potentiels

On constate que pour un arc électrique au comportement quasi-stationnaire, les équations de l'électromagnétisme sont simplifiables sous leur forme stationnaire. Cette simplification nous permet d'écrire les équations sur les potentiels électrique et magnétique dans le cadre du régime permanent. Elles prennent la forme d'équations de diffusion, autrement dit, nous disposons déjà, dans ESTET 341, des solveurs nécessaires à la résolution des équations des champs électrique et magnétique.

Lors de nos simulations de l'arc électrique, nous n'avons pas utilisé de modèles de description particulière des régions anodique et cathodique. Nous supposons que l'intensité de l'arc (200 A) est assez importante pour que les forces électromagnétiques associées constrignent suffisamment l'arc du côté cathodique.

III - 1 - 2 - 2 - 1 - Le potentiel électrique Φ

Le champ électrique est irrotationnel ($\vec{\nabla} \times \vec{E} = 0$), donc il dérive d'un potentiel noté

Φ :

$$\vec{E} = -\vec{\nabla} \Phi \quad (\text{III-35})$$

En combinant l'équation précédente à la loi d'Ohm (III-32), on obtient :

$$\vec{J} = -\sigma \vec{\nabla} \Phi \quad (\text{III-36})$$

L'équation sur le potentiel provient de la relation (III-36) combinée à l'équation de la conservation de la charge (III-34) :

$$\vec{\nabla} \cdot (\sigma \vec{\nabla} \Phi) = 0 \quad (\text{III-37})$$

III - 1 - 2 - 2 - 2 - Le potentiel vecteur \vec{A}

Pour le calcul du champ magnétique, la géométrie du domaine de calcul et le type de maillage utilisé revêtent un caractère important.

Quand les arcs électriques présentent une symétrie cylindrique (ce qui n'est pas notre cas), le champ magnétique n'a plus qu'une unique composante non nulle : la composante azimutale B_θ qui peut être calculée par le théorème d'Ampère :

$$B_\theta(R, \theta, z) = \frac{\mu_0}{R} \int_0^R J_z(R, \theta, z) r dr \quad (\text{III-38})$$

Dans le cas d'une géométrie purement 3D, c'est-à-dire ne présentant aucun axe de symétrie, le théorème d'Ampère ne peut plus être appliqué. Le calcul du champ magnétique se fait alors par la détermination du potentiel vecteur. Cette méthode a été validée dans le cadre de comparaison avec le théorème d'Ampère sur des géométries simples et a été utilisée avec succès sur des simulations de plasmas thermiques dans le SF₆ /ZAHRAI S. et al, 1992/ et /GONZALES M., 1999/.

On rappelle brièvement la définition de ce paramètre.

Comme $\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0$, il existe un toujours un vecteur \vec{A} tel que :

$$\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A} \quad (\text{III-39})$$

De plus, la condition suivante, appelée Jauge de Coulomb, doit être vérifiée :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0 \quad (\text{III-40})$$

En combinant les équations (III-25), (III-39) et (III-40), on obtient une équation sur le potentiel vecteur :

$$\Delta \vec{A} = -\mu_0 \vec{J} \quad (\text{III-41})$$

C'est cette équation vectorielle (III-41) qui est résolue. Les composantes du champ magnétique en sont alors déduites (III-39).

Une fois calculés, \vec{J} , \vec{B} et \vec{E} , nous pouvons exprimer la force de Laplace ainsi que l'effet Joule qui sont des termes sources permettant le couplage des équations de la dynamique des fluides à celles de l'électromagnétisme.

$$\vec{F}_{\text{Laplace}} = \vec{J} \times \vec{B} \quad (\text{III-42})$$

$$P_{\text{Joule}} = \vec{J} \cdot \vec{E} \quad (\text{III-43})$$

III - 1 - 3 - Equations de la dynamique et de la thermique du domaine plasma

Les équations de la dynamique gouvernant la colonne d'arc sont introduites sous leur forme vectorielle. Elles décrivent l'écoulement d'un mélange de deux fluides non réactifs de même phase thermodynamique. Nous émettons les hypothèses suivantes : l'écoulement plasma est considéré laminaire et incompressible, cependant, il entre dans la catégorie des écoulements dilatables. C'est-à-dire que la masse volumique du mélange est une fonction unique de la température ; les variations de pression sont négligées (cf. calcul du nombre de Mach). De plus, le code de calcul étant un code instationnaire, même si on considère le fluide comme incompressible et l'écoulement comme stationnaire, la discrétisation des équations se fait par rapport à terme temporelle. Le code est utilisé pour atteindre un état quasi-stationnaire.

On peut donc exprimer les équations de continuité suivantes :

- ✓ la conservation de la masse

On définit ρ et \vec{u} comme la masse volumique et la vitesse moyenne du mélange gazeux.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{u}) = 0 \quad (\text{III-44})$$

- ✓ la conservation de la quantité de mouvement

$$\frac{\partial (\rho \vec{u})}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{u} \otimes \vec{u}) = -\text{grad} P + \rho \vec{g} + \text{div}(\vec{\tau}) + \vec{J} \times \vec{B} \quad (\text{III-45})$$

où P est la pression (somme des pressions partielles) et \vec{g} la gravité. Le tenseur des contraintes visqueuses du fluide multi constituants $\vec{\tau}$ est décrit sous sa forme classique :

$$\tau_{ij} = \mu \left\{ \left(\frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \delta_{ij} \operatorname{div} \vec{U} - \overline{\rho u_i'' u_j''} \right\} \quad (\text{III-46})$$

Le dernier terme de cette équation permettrait d'intégrer la turbulence dans cette équation. Mais, comme nous avons supposé que l'écoulement plasma est laminaire, $\overline{\rho u_i'' u_j''} = 0$.

De plus, la viscosité dynamique μ dépend de la température et de la composition du milieu.

$\vec{J} \times \vec{B}$, représentant les forces de Laplace, est la principale source de quantité de mouvement dans les arcs électriques que nous avons à considérer. Ce terme source assure le couplage des équations de l'électromagnétisme à celles de la dynamique.

✓ la conservation de l'énergie

L'équation de conservation de l'enthalpie massique du mélange h , s'écrit à l'aide des enthalpies h_i d'espèces et des fractions massiques X_i :

$$\rho \left(\frac{\partial h}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} h \right) = \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\lambda_c}{C_p} \vec{\nabla} h \right) - \vec{\nabla} \cdot \left(\sum_i \frac{\lambda_r h_i}{C_p} \vec{\nabla} X_i \right) + \vec{\nabla} \cdot \left(\rho \sum_i h_i D_i \vec{\nabla} X_i \right) + \vec{J} \cdot \vec{E} + S_{\text{rad}} \quad (\text{III-47})$$

avec C_p la capacité calorifique à pression et à composition constantes, et λ_c la conductivité thermique du mélange. D_i est le coefficient de diffusion de l'espèce i parmi les autres espèces.

L'hypothèse d'un nombre de Lewis de chaque espèce i $\left(L_e = \frac{\lambda_c}{\rho C_p D_i} \right)$ égal à l'unité

est faite par /MATTEI J.D. et al, 1996/. Ceci impose que toutes les espèces diffusent comme la chaleur et que la diffusivité thermique D_i s'écrive selon :

$$D_i = \frac{\lambda_c}{\rho C_p} \quad (\text{III-48})$$

La relation (III-48) peut alors se simplifier sous la forme suivante :

$$\rho \left(\frac{\partial h}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} h \right) = \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\lambda_c}{C_p} \vec{\nabla} h \right) + \vec{J} \cdot \vec{E} + S_{\text{rad}} \quad (\text{III-49})$$

L'expression de l'effet Joule est donnée par $\vec{J} \cdot \vec{E}$, qui est le terme de couplage des phénomènes électromagnétiques avec celles de la thermique. S_{rad} est éventuellement un terme source radiatif, il représente le taux d'échauffement ou la puissance volumique libérée par le rayonnement. Nous avons décidé de ne pas tenir compte de la dissipation radiative lors de nos simulations d'arc. Dans notre cas, les parois solides du domaine de calcul (hormis les

électrodes) correspondent aux parois froides du four sur lesquelles on ne cherche pas à déterminer avec précision le flux thermique échangé. De plus, comme la température moyenne de l'arc modélisé est d'environ 10 000 K, les termes de dissipation radiative ($\sim 10^7 \text{ W.m}^{-3}$) sont globalement faibles et sont localement négligeables devant le terme Joule ($\sim 10^9 \text{ W.m}^{-3}$) /DOUCE A., 1999/.

A ces équations de conservation s'ajoute la loi d'état du gaz plasmagène, elle est prise en compte par la variation de la masse volumique $\rho(T_c, X_i)$, fonction de la température et de la composition du milieu.

III - 1 - 4 - Equations du transport des fractions massiques

Le traitement de la colonne d'arc est envisagé en tenant compte du transport de la fraction massique des constituants du gaz plasmagène. On simplifie toutefois la modélisation en écartant l'ensemencement du plasma par l'évaporation d'éléments du verre comme le bore ou le sodium. Cependant le taux d'évaporation de ces éléments est assez faible. Les conductivités électrique et thermique du plasma ne s'en trouvent donc pas affectées.

L'équation résolue sur le transport de la fraction massique est donnée par :

$$\rho \left(\frac{\partial X_i}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} X_i \right) = \vec{\nabla} \cdot (\rho D_i \vec{\nabla} X_i) \quad (\text{III-50})$$

Dans ce cas, D_i représente le coefficient de diffusion d'une espèce dans l'autre, il est déterminé par la relation suivante :

$$D_i = \frac{\nu_i}{\rho_i \text{Sc}} \quad (\text{III-51})$$

Lors de la simulation du plasma d'arc, on ne calcule qu'une fraction massique, en l'occurrence celle de l'argon puisque nous ne travaillons qu'avec un mélange de deux constituants. La fraction massique de l'autre espèce, l'oxygène, est automatiquement déduite de la première.

$$\rho \left(\frac{\partial X_{\text{Ar}}}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} X_{\text{Ar}} \right) = \vec{\nabla} \cdot (\rho D_{\text{Ar}} \vec{\nabla} X_{\text{Ar}}) \quad (\text{III-52})$$

$$X_{\text{Ar}} + X_{\text{O}_2} = 1 \quad (\text{III-53})$$

En chaque point du maillage et à chaque itération de calcul, la fraction massique de chaque constituant est alors connue.

III - 1 - 5 - Propriétés thermophysiques du plasma

A partir de la fraction massique d'argon et de l'enthalpie massique calculées par ESTET en chaque nœud du maillage sous forme d'équations de transport, nous pouvons déterminer la température du milieu pour ensuite calculer toutes les propriétés physiques et les coefficients de transport du plasma.

La composition chimique et les coefficients de transport de l'argon et de l'oxygène ont été calculés à l'aide du logiciel ALEX /SANON A. et al, 1991/ et des données de /FAUCHAIS P., 1994/ et de /CAPITELLI M. et al, 1970/.

III - 1 - 5 - 1 - Calcul de la température du gaz plasmagène

A partir de l'enthalpie massique et de la fraction massique déterminées par ESTET, la température en chaque point du milieu peut-être déterminée en inversant la fonction $h = f(T, X_i)$, pour obtenir $T = g(H, X_i)$. Une fois la température calculée, toutes les propriétés physiques et tous les coefficients de transport du plasma peuvent être établis.

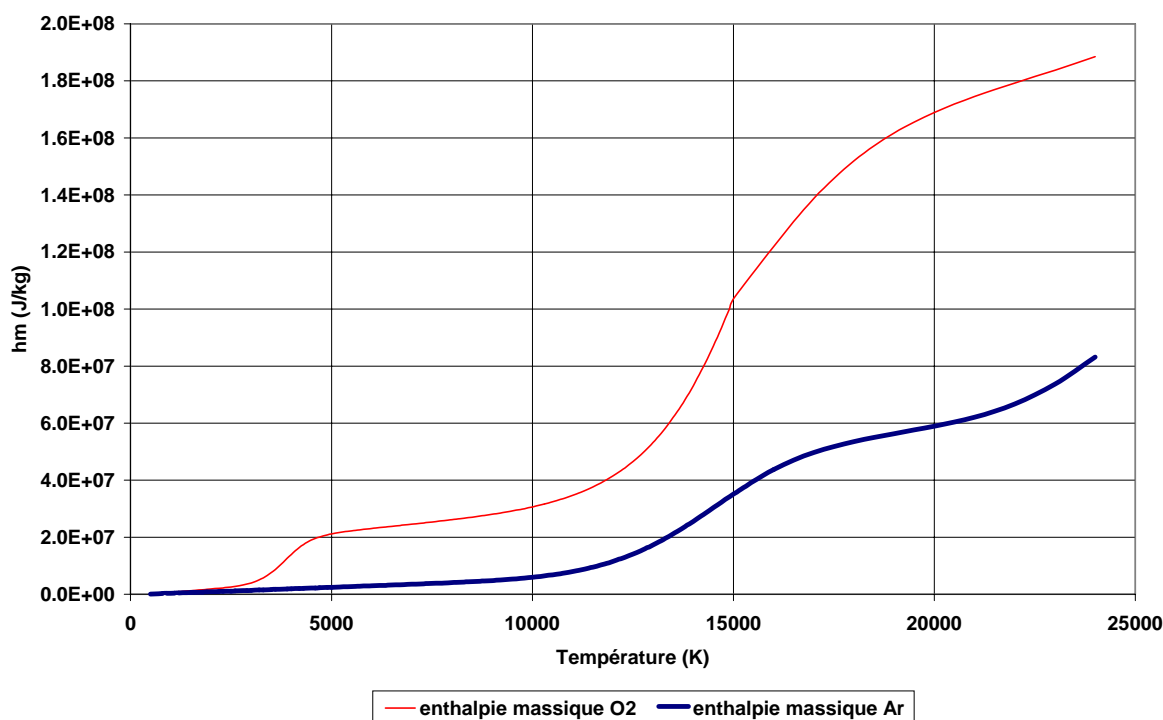


Figure III–2 : Evolution de l'enthalpie massique ($J.kg^{-1}$) en fonction de la température

A titre d'exemple, la Figure III–2 montre l'évolution de l'enthalpie massique de l'argon et de l'oxygène. On remarque une première ionisation de l'argon à environ 15 000 K et une deuxième vers 25 000 K. Pour l'oxygène, on note un pic de dissociation à 4 000 K puis une ionisation à environ 18 000 K.

III - 1 - 5 - 2 - Calcul de la masse volumique du gaz plasmagène

A chaque itération de calcul, la masse volumique de chaque composé est recalculée et on détermine la masse volumique du gaz plasmagène en fonction de sa composition selon la relation que nous avons choisie d'utiliser (cf. (III-54)).

$$\rho_{\text{mel}} = \frac{1}{\frac{X_{\text{O}_2}}{\rho_{\text{Ar}}} + \frac{X_{\text{Ar}}}{\rho_{\text{O}_2}}} \quad (\text{III-54})$$

On observe l'évolution de la masse volumique des corps purs sur la Figure III-3. On remarque sur ces courbes une forte diminution de la masse volumique en fonction de la température.

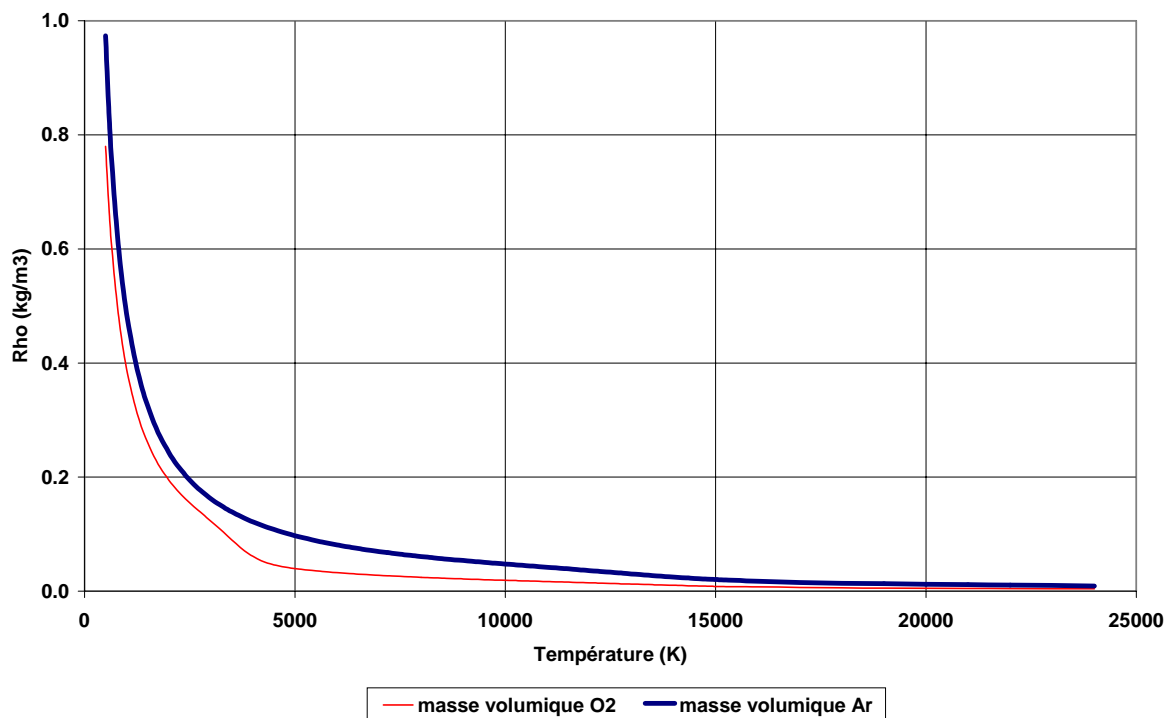


Figure III-3 : Evolution de la masse volumique des gaz purs en fonction de la température

III - 1 - 5 - 3 - Calcul de la viscosité du gaz plasmagène

La viscosité de chaque gaz pur est tabulée dans ESTET sous la forme $\mu = f(T)$. Ensuite, la viscosité du gaz plasmagène est déterminée grâce à la loi de Wilke /WILKE C.R., 1950/. Ce dernier a établi une relation permettant d'obtenir la viscosité d'un mélange gazeux multi constituants. L'auteur a confronté la loi obtenue à des mesures expérimentales et il observe une bonne adéquation entre les résultats des calculs et les valeurs expérimentales.

La loi d'évolution de la viscosité d'un mélange gazeux en fonction de la fraction volumique (y_j) en chaque constituant est donnée par la relation suivante :

$$\mu_{\text{mel}} = \sum_{i=1}^n \frac{\mu_i}{1 + \frac{1}{y_i} \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n y_j \Phi_{ij}} \quad (\text{III-55})$$

où Φ_{ij} est donné par :

$$\Phi_{ij} = \frac{[1 + (\mu_i / \mu_j)^{1/2} (M_j / M_i)^{1/4}]}{(4 / \sqrt{2}) [1 + (M_i / M_j)^{1/2}]} \quad (\text{III-56})$$

Dans la relation (III-55), la viscosité μ représente une viscosité dynamique en Pa.s. Elle est représentée sur la Figure III-4 pour l'argon et l'oxygène.

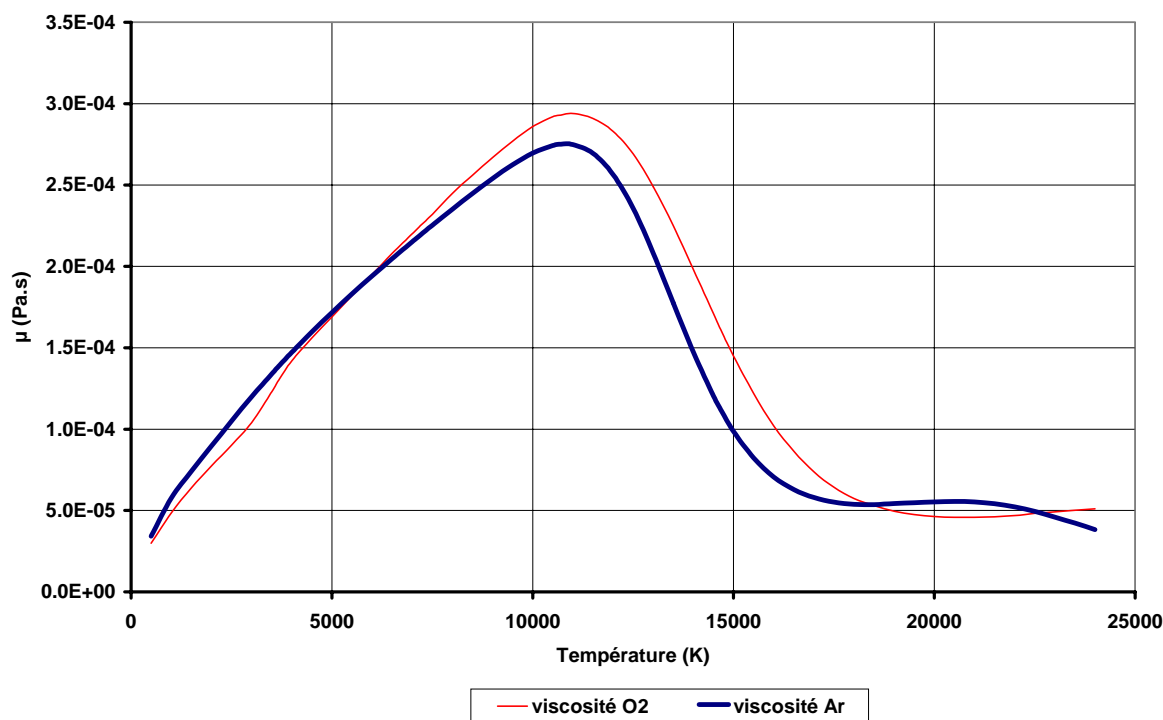


Figure III-4 : Evolution de la viscosité des gaz purs en fonction de la température

III - 1 - 5 - 4 - Calcul de la conductivité thermique du gaz plasmagène

On calcule cette propriété pour chaque gaz pur et on la tabule en fonction de la température. Nous avons ensuite programmé une loi d'évolution de la conductivité thermique en fonction de la composition du milieu gazeux. Pour cela, nous utilisons les lois de /MASON E.A. et al, 1958/ inspirées de /WILKE C.R., 1950/ et données ci-après :

$$\lambda_{\text{mel}} = \sum_{i=1}^n \lambda_i \left[1 + \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq i}}^n G_{ik} \frac{x_k}{x_i} \right]^{-1} \quad (\text{III-57})$$

avec G_{ik} donné par :

$$G_{ik} = \frac{1.065}{2\sqrt{2}} \left(1 + \frac{M_i}{M_k} \right)^{-1/2} \left[1 + \left(\frac{\lambda_i^0}{\lambda_k^0} \right)^{1/2} \left(\frac{M_i}{M_k} \right)^{1/2} \right]^2 \quad (\text{III-58})$$

et :

$$\frac{\lambda_i^0}{\lambda_k^0} = \frac{\eta_i M_k}{\eta_k M_i} \quad (\text{III-59})$$

η représente la viscosité de chaque corps purs.

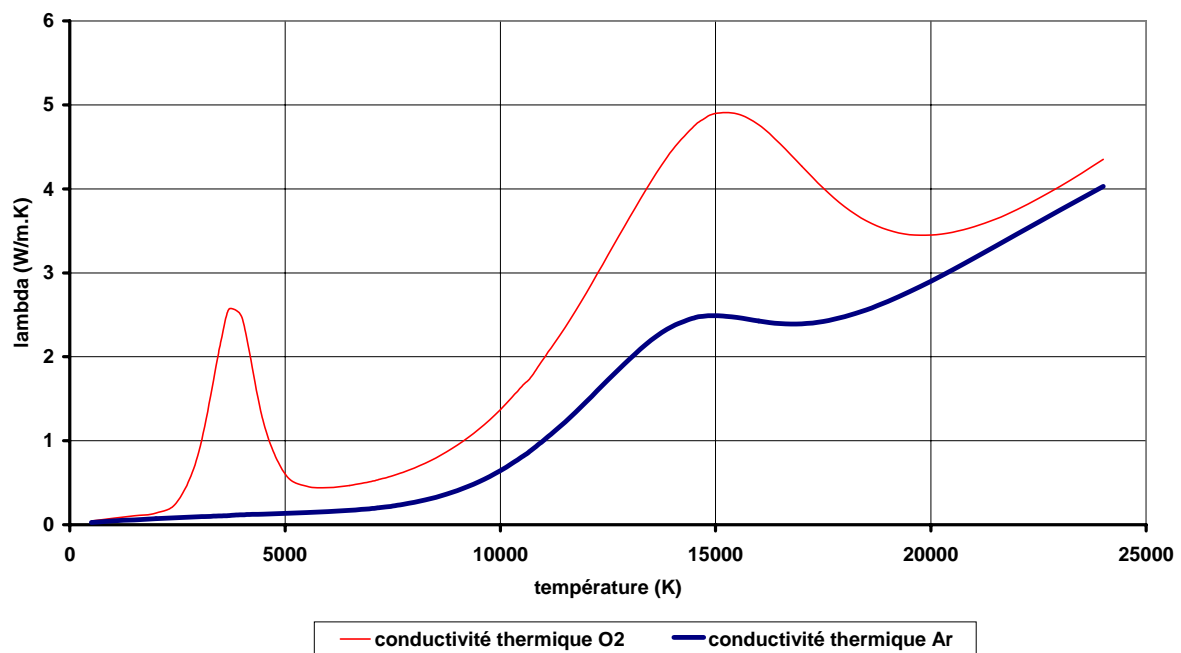


Figure III-5 : Evolution de la conductivité thermique des gaz purs en fonction de la température

III - 1 - 5 - 5 - Calcul de la conductivité électrique du gaz plasmagène

Nous avons choisi de calculer la conductivité électrique du mélange gazeux en fonction de sa composition, c'est-à-dire de la fraction massique de chaque constituant, suivant la loi d'évolution suivante :

$$\sigma_{\text{mel}} = \sum_{i=1}^n X_i \sigma_i \quad (\text{III-60})$$

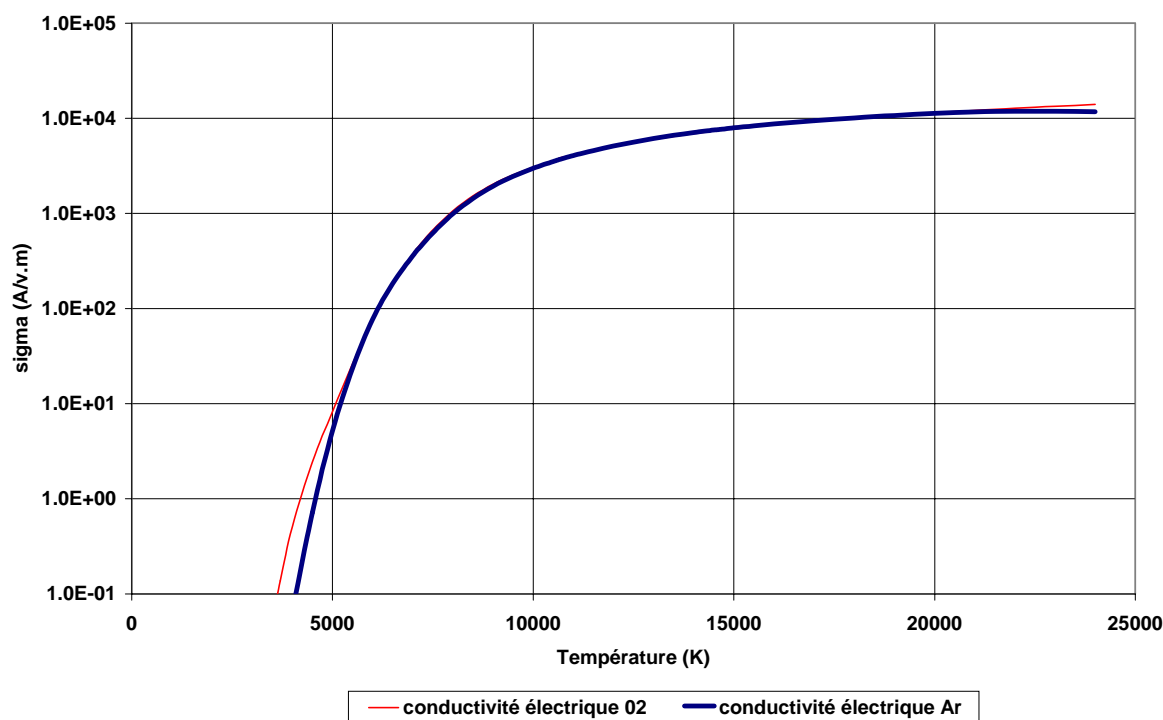


Figure III-6 : Evolution de la conductivité électrique des gaz purs en fonction de la température

III - 1 - 6 - Géométrie et maillage du domaine plasma

La géométrie sur laquelle repose le maillage du domaine plasma est constituée de la partie four du pilote SHIVA. C'est dans ce domaine de calcul (cf. Figure III-7) que nous retrouvons les deux torches, la voûte, les parois du four et l'évacuation des gaz. La zone de fermeture du domaine (surface verre) est considérée comme une paroi sur laquelle on s'attache à déterminer un flux de chaleur qui sera une donnée de type condition à la limite du domaine verre. Le four ainsi que les torches sont de géométrie cylindrique, le four présente un diamètre de 600 mm et une hauteur de 250 mm, et les deux corps de torches un diamètre de 60 mm pour une hauteur de 200 mm.

Le maillage réalisé est de type curviligne et structuré pour sa prise en compte dans ESTET. Le logiciel Simail® a été retenu pour réaliser ce maillage.

Quelques simplifications ont été nécessaires afin d'obtenir un bon compromis entre les résultats de modélisation, les valeurs expérimentales et la durée des calculs. Appliqués à notre géométrie, les maillages structurés obtenus présentent des angles de déformation importants dans les cylindres. On les observe facilement sur la Figure III-8. De plus, le mailleur ne permettant pas de réaliser des plans coniques en structuré (c'est-à-dire de mailler

l'intersection entre un cylindre oblique et une paroi plane), la voûte a dû être considérée comme plate et les torches pénètrent verticalement dans le maillage. La configuration réelle de fonctionnement du four n'est donc pas exactement prise en compte.

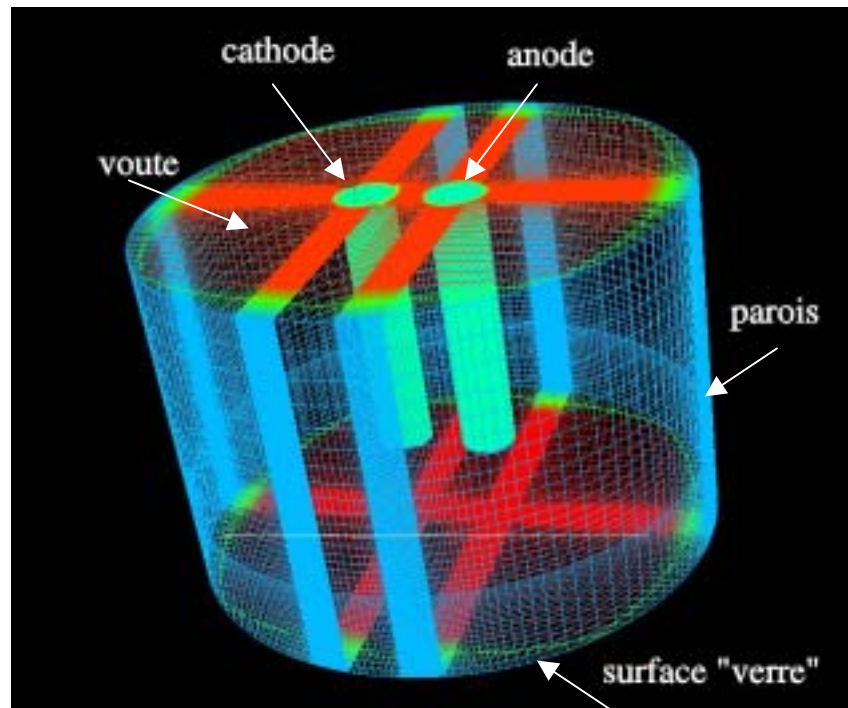


Figure III-7 : Maillage 3D du domaine plasma

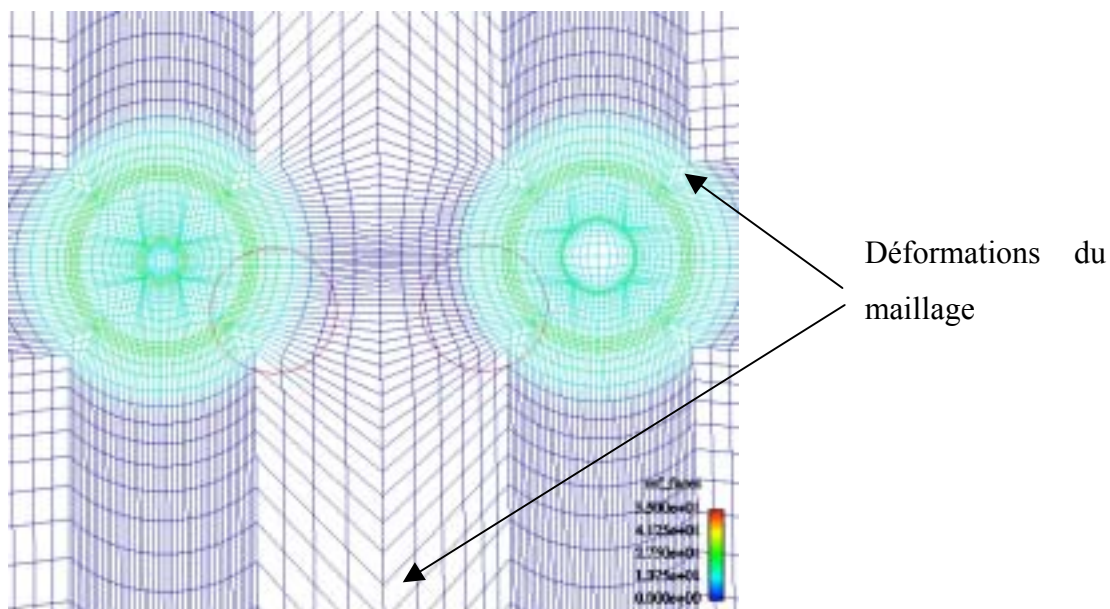


Figure III-8 : Visualisation du maillage de la torche anode (vue de dessous)

Cependant, les simplifications opérées pour obtenir un maillage de bonne qualité ne perturbent pas l'écoulement dans le four car la voûte est suffisamment éloignée de la zone réactive pour avoir une influence.

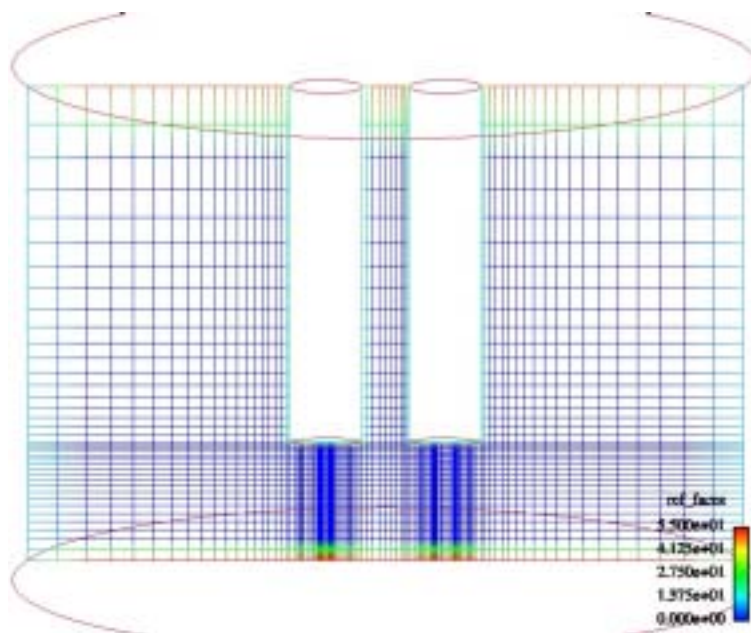


Figure III-9 : Observation du maillage dans le plan (X_m)

La Figure III-9 fait apparaître un raffinement important du maillage en dessous des électrodes. Ce dernier engendre des durées de calculs relativement longues (de l'ordre de 20 heures). Le maillage réalisé est constitué de 133 x 81 x 39 plans, respectivement suivant les directions I, J, K pour un total de 420 147 nœuds de calcul.

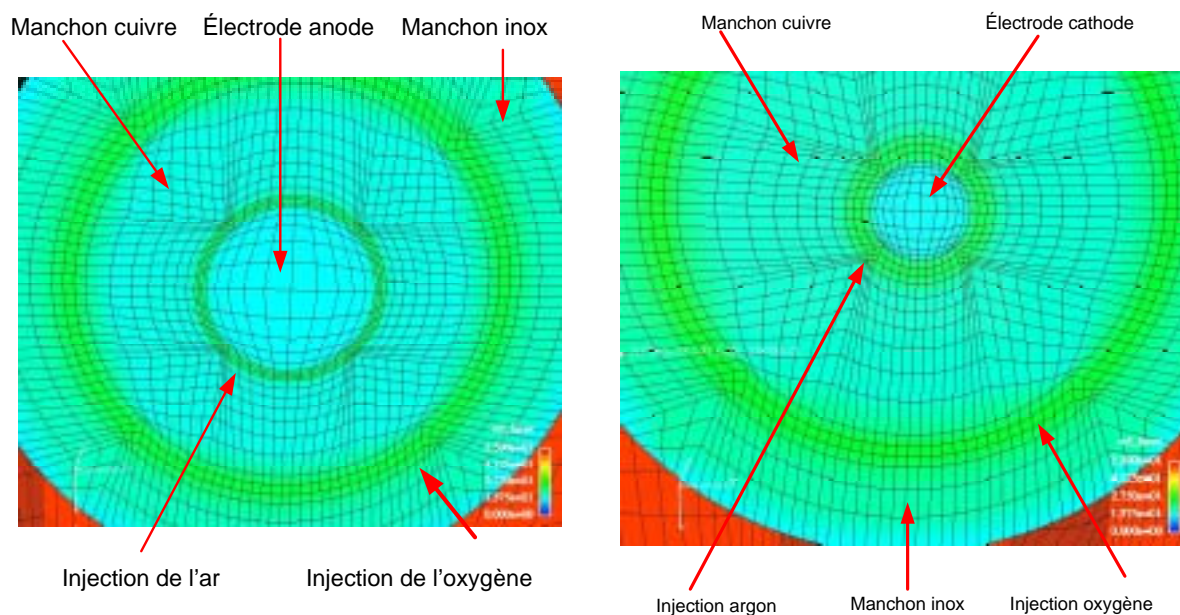


Figure III-10 : Zoom sur le maillage des deux électrodes

III - 1 - 7 - Conditions aux limites pour domaine plasma

Le domaine de calcul défini a des frontières qui peuvent être décomposées de la façon suivante :

- ✓ injection de l'argon à chaque électrode,
- ✓ injection de l'oxygène à chaque torche,
- ✓ corps des torches,
- ✓ parois métalliques du four,
- ✓ cathode,
- ✓ anode,
- ✓ voûte,
- ✓ paroi représentant la surface du bain de verre,
- ✓ sortie des gaz.

Pour chacune des ces zones, nous avons défini des conditions aux limites particulières qui restent en accord avec les grandeurs expérimentales rencontrées sur le pilote SHIVA. Ces conditions aux limites portent sur les variables transportées : la vitesse, l'enthalpie, le potentiel et la fraction massique.

- ✓ Conditions aux limites sur la vitesse

Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'écoulement du gaz plasmagène est supposé laminaire. Le fluide étudié présentant une forte viscosité, on applique une condition d'adhérence sur les frontières solides, ce qui revient à dire que la vitesse est nulle dans les directions tangentielle (t) et normale (n) aux frontières : $u_n = 0$ et $u_t = 0$.

On distingue quatre zones d'injection des gaz plasmagènes que sont l'argon et l'oxygène. Ces gaz sont injectés dans les zones annulaires comprises entre les électrodes et les parois des manchons comme il est montré sur les Figure III-11 et Figure III-12. Les valeurs des vitesses sont données dans le Tableau III-1.

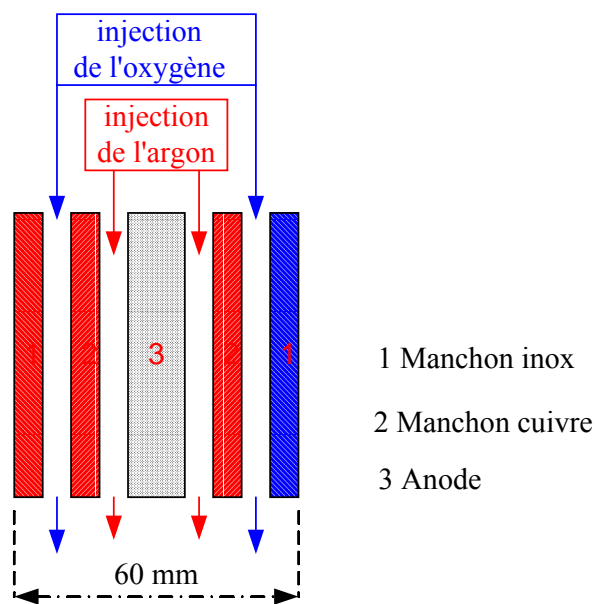


Figure III-11 : Détail de l'injection des gaz plasmagènes du côté anode

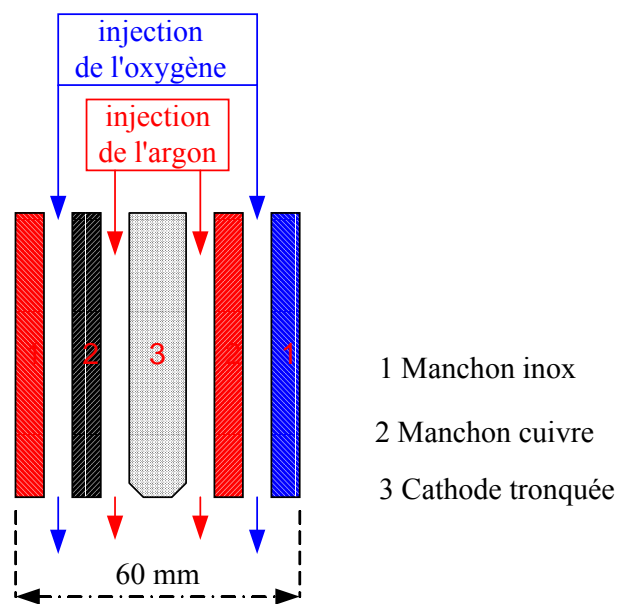


Figure III-12 : Détail de l'injection des gaz plasmagènes du côté cathode

gaz	Anode		Cathode	
	Ar	O ₂	Ar	O ₂
Débit volumique (Nm ³ .h ⁻¹)	2,4	4,8	2,4	4,8
Débit massique (kg.s ⁻¹)	1,067.10 ⁻³	1,743.10 ⁻³	1,067.10 ⁻³	1,743.10 ⁻³
Vitesse U (m.s ⁻¹)	0	0	0	0
Vitesse V (m.s ⁻¹)	0	0	0	0
Vitesse W (m.s ⁻¹)	-13,34	-3,45	-10,67	-3,45

Tableau III-1 : Vitesses et débits d'injection des gaz plasmagènes pour rapport Ar/O₂ (20/80 en volumique)

Les vitesses sont calculées à partir du débit volumique compte tenu de la section de passage du gaz. Elles sont ensuite programmées dans le code de calcul suivant les directions U, V, W correspondant au trièdre X, Y, Z : le plan des électrodes est tel que $y = 0$, la surface du verre est telle que $z = 0$.

L'argon est injecté dans la zone annulaire comprise entre les électrodes et les manchons en cuivre. Du côté cathode, la section de passage du gaz est de $6,25 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2$ alors que du côté anode elle ne vaut que $5,34 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2$. Par contre, la zone annulaire comprise entre

le manchon cuivre et le manchon inox est la même pour les deux torches ; la section de passage est de $3,86.10^{-4} \text{ m}^2$.

La sortie des gaz, est prise en compte sous forme d'un terme puits pariétal : on y évacue un débit gazeux égal au débit total entrant ($Q_m = 5,63.10^{-3} \text{ kg.s}^{-1}$).

✓ Enthalpie massique

Sur les frontières solides du domaine plasma autres que celles des électrodes, la valeur de l'enthalpie est déterminée en fonction de la température de la paroi et de la composition du mélange.

Actuellement, nous travaillons avec une condition à la limite de type dérivée normale nulle $\left(\frac{\partial h}{\partial n}=0\right)$ sur l'évacuation des gaz et sur la surface représentant le verre car le but recherché est d'obtenir un profil de température sur cette surface.

Sur les manchons inox et cuivre, c'est-à-dire sur le corps des torches, la voûte, et les parois on applique une enthalpie correspondant à une température froide du mélange gazeux dans lequel baignent les torches. On impose donc une enthalpie de $221\,088 \text{ J.kg}^{-1}$, ce qui correspond à une température de 300 K ($27 \text{ }^\circ\text{C}$) dans un mélange constitué à 80% d'oxygène et 20% d'argon (en pourcentage volumique).

En ce qui concerne les électrodes anode et cathode, on applique également une condition à la limite de type dérivée normale nulle $\left(\frac{\partial h}{\partial n}=0\right)$ dans le but d'autoriser un accroissement de la température aux électrodes afin d'assurer la conduction électrique n'ayant pas pris en compte les couches anodique et cathodique (la température physique rencontrées sur les électrodes n'est pas le but de ce travail).

Enfin les injections d'argon et d'oxygène sont caractérisées par l'enthalpie de ces gaz à 300 K .

✓ Potentiel

Nous utilisons des conditions de flux nul pour le potentiel $\left(\frac{\partial \Phi}{\partial n}=0\right)$ sur toutes les frontières du domaine de calcul à l'exception de la surface des électrodes qui est portée à des isopotentielles.

Le potentiel est constant sur la surface de l'anode et de la cathode, et par convention, on impose un potentiel $\Phi = 0V$ sur la cathode. Sur l'anode, le potentiel est un résultat du calcul : sa valeur est ajustée pendant toute la durée du calcul, de sorte que la tension de l'arc électrique soit un résultat, tout comme sur l'installation où nous pilotons l'intensité de l'arc mais où la tension est une résultante de la longueur de l'arc et de la composition du milieu gazeux environnant. C'est l'intensité du courant qui est fixée. Pour recalculer le potentiel à l'anode à chaque itération, on détermine l'intensité de l'arc par l'intégration de la densité de courant sur un plan déterminé et perpendiculaire au passage du courant. Dans le cas où il existe une différence entre l'intensité du courant souhaitée (soit pour nous 200 A) et celle calculée, un facteur correctif est appliqué au potentiel afin de recalculer l'intensité électrique à la bonne valeur.

✓ Fraction massique

Dans nos simulations, nous avons utilisé une condition aux limites de type dérivée normale nulle $\frac{\partial X_i}{\partial n} = 0$ sur toutes les frontières du domaine de calcul, hormis au niveau des injections de gaz sur lesquelles on place une valeur imposée ($X_{Ar} = 1$ aux injections d'argon et $X_{Ar} = 0$ pour les injections d'oxygène). Le mélange se fait au fur et à mesure que le calcul progresse par diffusion d'un gaz dans l'autre selon /WILKE C.R., 1950/.

III - 1 - 8 - Initialisation des calculs

Expérimentalement, il est nécessaire d'avoir recours à un système d'amorçage de l'arc électrique qui génère un milieu légèrement ionisé entre les deux électrodes permettant ainsi à l'arc de se développer.

Lors de la modélisation, nous avons également besoin de créer une zone de démarrage. Pour cela, on définit une colonne chaude, reliant les deux électrodes, dans laquelle la température est portée à environ 6 000 K (c'est-à-dire que l'on impose une enthalpie correspondant à cette température dans cette zone). A cette température, la conductivité électrique du milieu gazeux est suffisamment élevée pour accélérer le développement de l'arc avec une intensité fixée à 200 A. Cette zone s'estompe avec la progression des calculs.

Au lancement de la simulation, le domaine de calcul est initialisé avec de l'argon pur. L'injection de l'oxygène se fait au fur et à mesure de l'avancée du calcul.

III - 1 - 9 - Résultats de la simulation du domaine plasma

Les résultats présentés dans la suite, ont été obtenus après 12 000 itérations de calcul avec un pas de temps fixe de 10^{-7} secondes.

Les calculs sont envoyés sur un serveur Fujitsu VPP 5 000, constitué de plusieurs nœuds de mémoire de 8 ou 15 Gbytes de RAM. Un calcul de 3 000 itérations nécessite 27h36min de temps CPU mais comme le nœud de calcul est partagé avec d'autres utilisateurs, le temps total de calcul est d'environ 82 heures.

Les résultats de calculs sont présentés sur un plan 2D correspondant à une coupe de l'installation par le centre des électrodes. Ce plan sera nommée X_m (nous utilisons ce même pour la représentation des résultats de simulation du domaine verre).

III - 1 - 9 - 1 - Champ de température

Le champ de température obtenu se sépare en deux zones principales : l'arc électrique et le reste de l'enceinte du four.

Sur la Figure III–13, l'isotherme à 9 000°C permet de repérer l'arc électrique qui est bien établi entre les deux électrodes métalliques. Cette isotherme est également représentative de la zone de passage du courant.

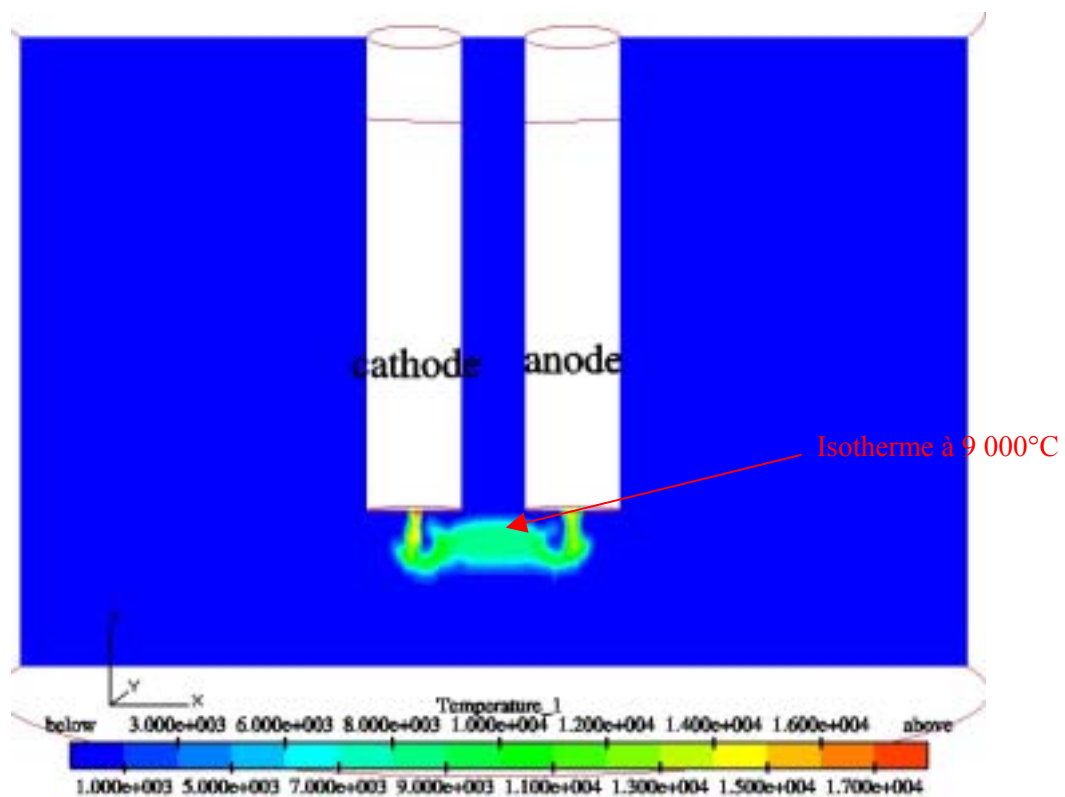


Figure III–13 : Champ de température pour le domaine plasma dans le plan (X_m)

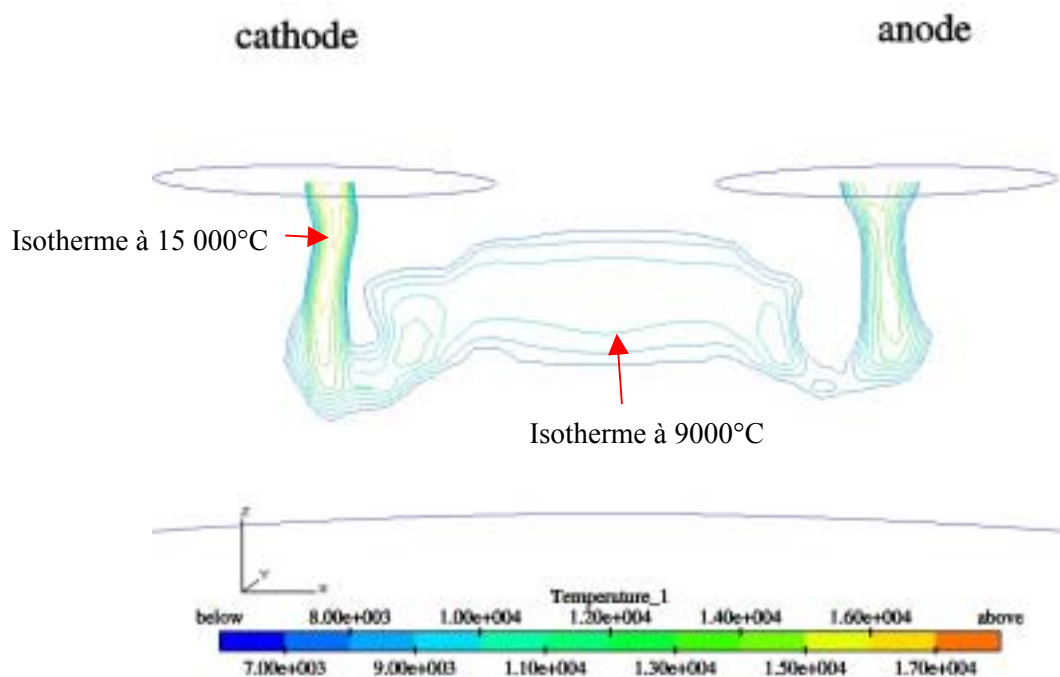


Figure III–14 : Représentation des isothermes rencontrées dans le plasma entre 6 000 °C et 18 000 °C dans le plan (X_m)

La Figure III–14 montre les isothermes du plasma comprises entre 6 000 et 18 000 °C. On note que la zone de couplage des deux jets est portée à une température voisine de 9 000 °C, le jet cathodique à des températures comprises entre 15 000 °C et 17 000 °C, et le jet anodique à des températures comprises entre 10 000 et 12 000 °C. La Figure III–15 représente la température mesurée de la zone de couplage, et des jets anodique et cathodique. La zone de couplage des deux jets se situe dans une gamme de température allant de 10 700 à 11 700 °C. Sur la Figure III–14, l'isotherme représentative du couplage des deux jets est voisine de 9 000 °C.

Expérimentalement, on constate que le jet cathodique est porté à une température comprise entre 13 700 °C et 15 200 °C. On note également que la température du jet cathodique décroît rapidement sur les 12 premiers millimètres : les résultats numériques font apparaître le même phénomène.

Concernant maintenant le jet anodique, les mesures par spectroscopie d'émission atomique donnent des températures comprises entre 10 700 et 11 700 °C, et les résultats de simulation fournissent des valeurs comprises entre 10 000 et 12 000 °C.

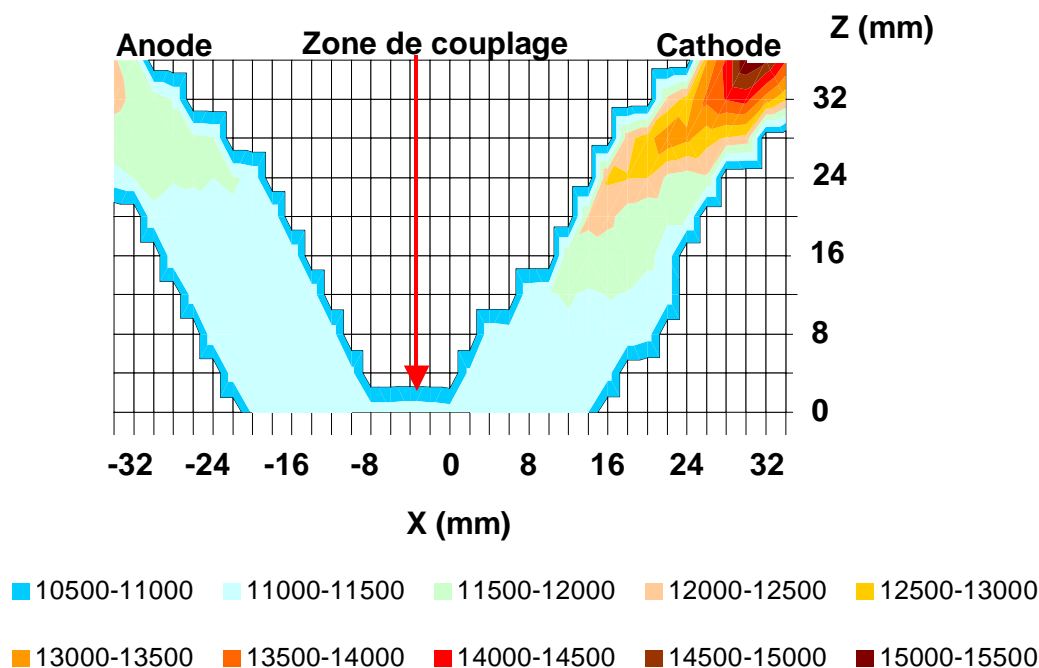


Figure III–15 : Distribution spatiale de la température du plasma ($T_0(x, z)$ en K) dans le plan (X_m)

En conclusion, on remarque que le modèle surestime quelque peu les températures des deux jets mais que l'ordre de grandeur est respecté. La simulation de l'arc électrique donne des résultats satisfaisants en les comparant avec les valeurs expérimentales (obtenues pour un arc d'intensité, de tension et de longueur équivalente).

La forme de la distribution spatiale de la température obtenue expérimentalement ne se superpose pas à celle modélisée. Cet écart est dû à une configuration différente du four dans lequel les mesures ont été réalisées par rapport à la géométrie modélisée – les deux torches sont verticales – dans le dispositif expérimental les torches sont placées avec un angle d'écartement de 110° .

L'effet Joule est le terme d'apport d'énergie de l'arc électrique. Essentiellement localisé dans la colonne d'arc, c'est à la pointe de la cathode et dans le jet anodique qu'il est maximal ($\sim 1,3 \cdot 10^{10} \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$). Cette donnée est à rapprocher des valeurs de températures obtenues. Théoriquement, et en se reportant aux valeurs de températures mesurées par spectroscopie d'émission atomique, c'est à la pointe de la cathode uniquement que l'apport d'énergie devrait être le plus important. Pour observer correctement la différence de

température, il aurait fallu que le maillage soit beaucoup plus raffiné à cet endroit ce qui aurait accru considérablement les temps de calculs déjà très longs.

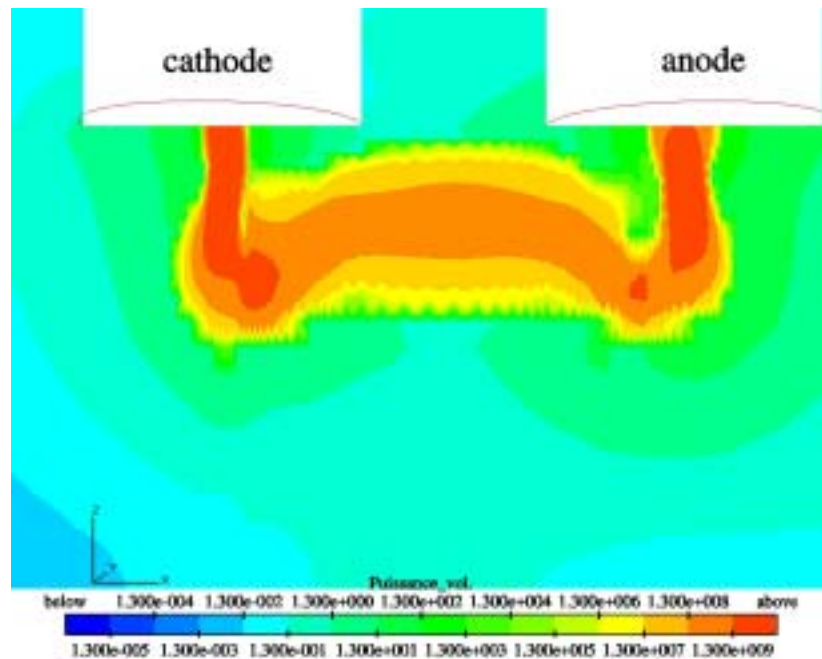


Figure III-16 : Densité de puissance ($W.m^{-3}$) due à l'effet Joule dans le plan (X_m)

III - 1 - 9 - 2 - Champ de vitesse

Le module de vitesse est beaucoup plus fort à proximité des torches plasma (vitesses voisines de $150 m.s^{-1}$) que dans le reste du domaine plasma ($< 1 m.s^{-1}$) comme on peut le remarquer sur la Figure III-17.

Du côté cathode, la vitesse du gaz plasmagène peut atteindre $150 m.s^{-1}$. On note également la présence de boucles de recirculation ayant des vitesses de l'ordre de 10 à $20 m.s^{-1}$.

Du côté anode, les vitesses sont plus faibles avec un maximum de $120 m.s^{-1}$. On remarque également la présence de deux boucles de recirculation de part et d'autre du jet anodique.

La Figure III-17 souligne la répulsion des deux jets plasma qui est bien mise en évidence par l'étude des forces de Laplace (cf. Figure III-22). En effet, on remarque que les vecteurs vitesses du côté cathodique s'orientent vers la gauche alors que du côté anodique, ils se dirigent vers la droite. Cette forme est engendrée par les forces électromagnétiques générées par l'arc électrique. On note également que des vecteurs vitesses de faible intensité semblent "rentrer dans les parois solides des électrodes anode et cathode". Ce phénomène est

dû à la présence des injections des gaz à proximité immédiate des parois, ce qui crée des effets de bords. En réalité "rien ne rentre" dans les électrodes.

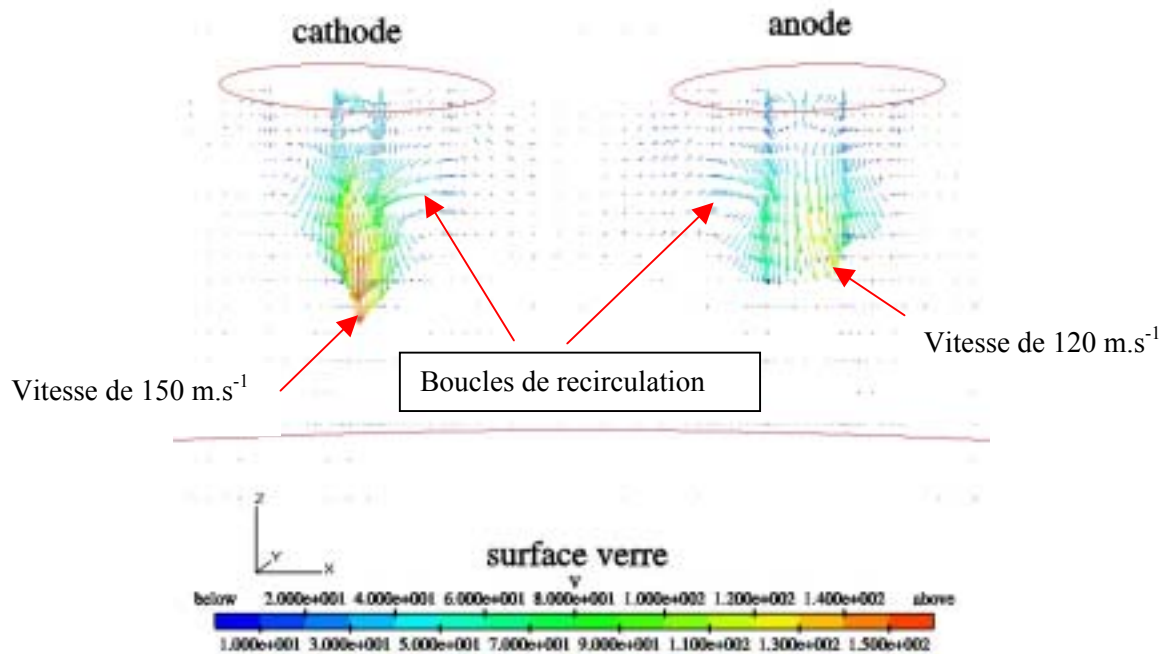


Figure III-17 : Champ de vitesse (m.s^{-1}) dans le plan (X_m)

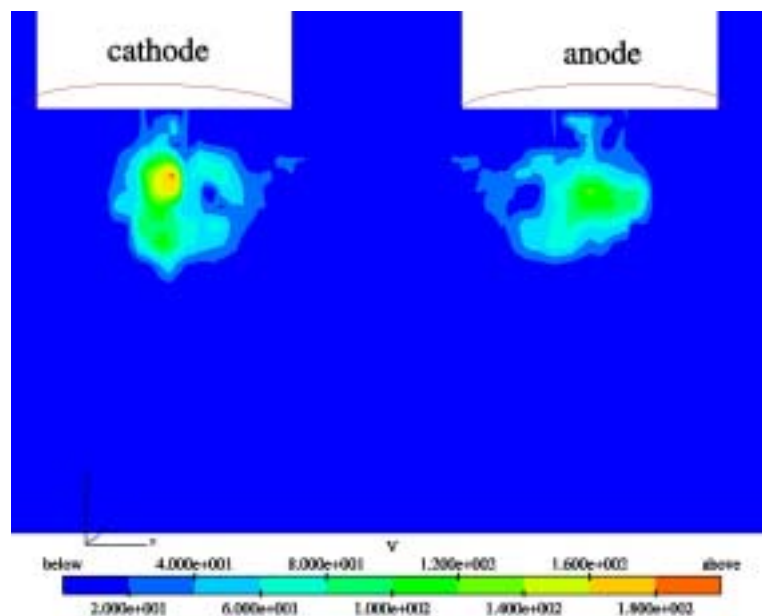


Figure III-18 : Norme de la vitesse à proximité de l'arc électrique (m.s^{-1}) dans le plan (X_m)

La vitesse maximale rencontrée dans l'arc électrique est de 150 m.s^{-1} , il est possible de recalculer le nombre de Mach : $\sim 0,05$. L'hypothèse d'un écoulement incompressible préalablement effectuée est donc justifiée.

Ces résultats de simulation du champ de vitesse dans l'arc et plus globalement dans le four ne peuvent pas être confrontés à des valeurs expérimentales, car à notre connaissance, aucun résultat de mesure de vitesse dans les arcs électriques n'est disponible.

Cependant on peut comparer ce résultat avec des valeurs de simulations obtenues par /GONZALEZ J.J., 1992/ dans le cadre de la simulation d'arc à 1 000 A. Ce dernier obtient des champs de vitesses dans la colonne d'arc compris entre 120 et 400 m.s^{-1} . De la même manière, /DELALONDRE C., 1990/ obtient des vitesses de l'ordre de 130 m.s^{-1} lors de la simulation d'un arc transféré vertical de type "Pfender" (1 cm) /HUANG P.C. et al, 1991/.

Actuellement, l'arc se trouvant en surface et relativement éloigné du bain de verre, il n'a aucune influence sur ce dernier. Le champ de vitesse est donc très faible sur cette surface.

III - 1 - 9 - 3 - Fraction massique en oxygène

La Figure III–19 donne la répartition de la fraction massique en oxygène aux abords des torches et par conséquent la composition du mélange gazeux argon-oxygène.

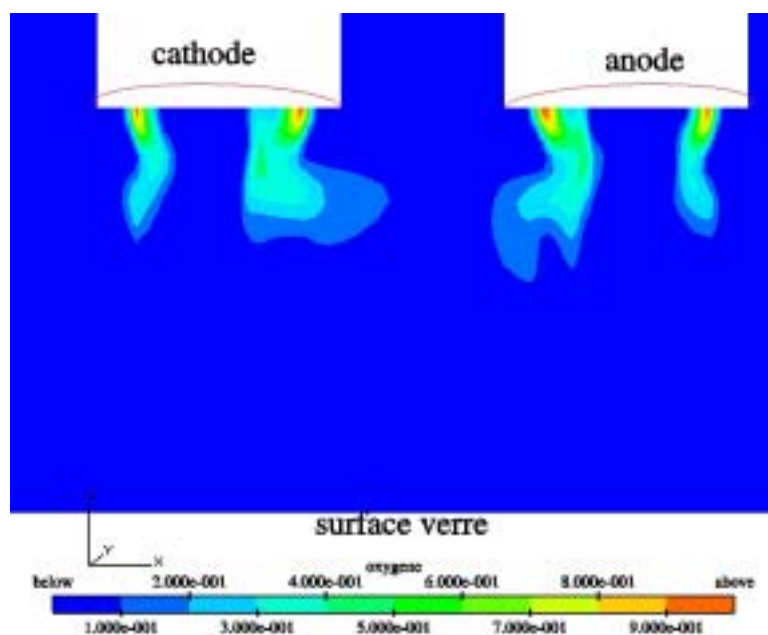


Figure III–19 : Fraction massique d'oxygène (kg.kg^{-1}) dans le plan (X_m)

A proximité des torches, le mélange plasmagène s'établit à environ 40 % (en masse) en oxygène. L'arc établi entre les deux électrodes commence à être gainé par l'oxygène mais ce gaz n'a pas encore suffisamment diffusé dans l'argon afin d'atteindre un mélange Ar/O_2 de 23/77 % (en masse). L'évolution de ce paramètre est synonyme que le calcul n'est pas encore suffisamment abouti pour observer le mélange des deux gaz dans la colonne d'arc.

III - 1 - 9 - 4 - Grandeurs électromagnétiques

Afin de conserver une intensité de l'arc électrique à 200 A, la différence de potentiel calculée est de l'ordre de 140 V. La Figure III–20 présente la répartition du potentiel électrique dans le four et plus particulièrement à proximité des électrodes et en surface du bain de verre. De plus, lors de nos simulations nous n'intégrons pas dans nos calculs, les chutes anodique et cathodique qui représentent environ 10 à 20 volts.

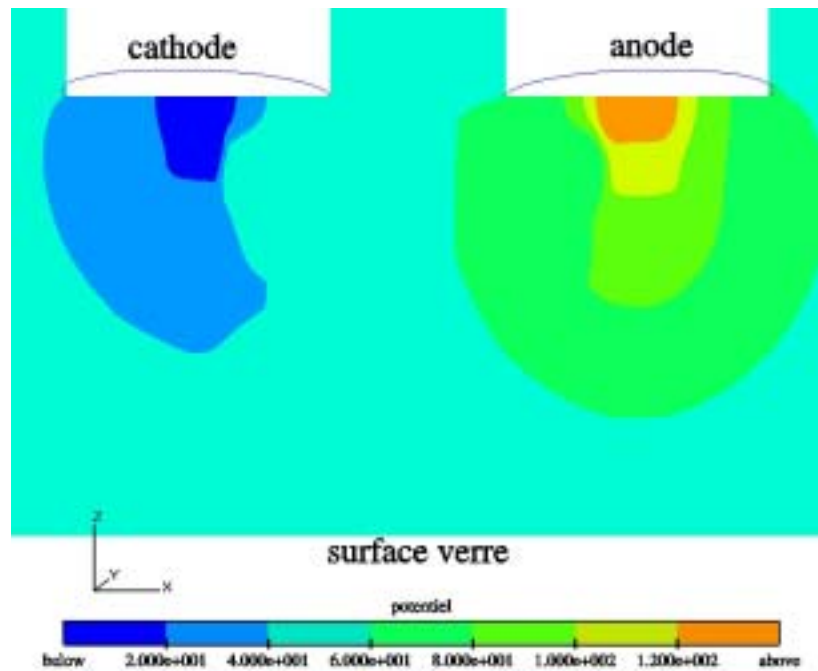


Figure III–20 : Evolution du potentiel électrique (Volts) dans le plan (X_m)

La forme des lignes isopotentielles dans l'arc électrique semble cohérente. La puissance dégagée par effet Joule dans la colonne d'arc est d'environ 36 kW. On peut également rappeler que la cathode est placée à un potentiel de 0 V sous forme d'isopotentielles alors que le potentiel porté à l'anode est le résultat du calcul.

Expérimentalement, la tension d'arc est de l'ordre de 80 à 100 V, quand l'arc est uniquement aérien, c'est-à-dire transféré entre les deux électrodes sans passage par le bain de verre en fusion.

Les Figure III–21 à Figure III–24 présentent les normes des vecteurs densité de courant \vec{J} et champ magnétique \vec{B} . Ces deux grandeurs électromagnétiques sont déterminées à partir du potentiel électrique ; elles permettent de calculer les forces de Laplace représentative de l'écoulement du plasma.

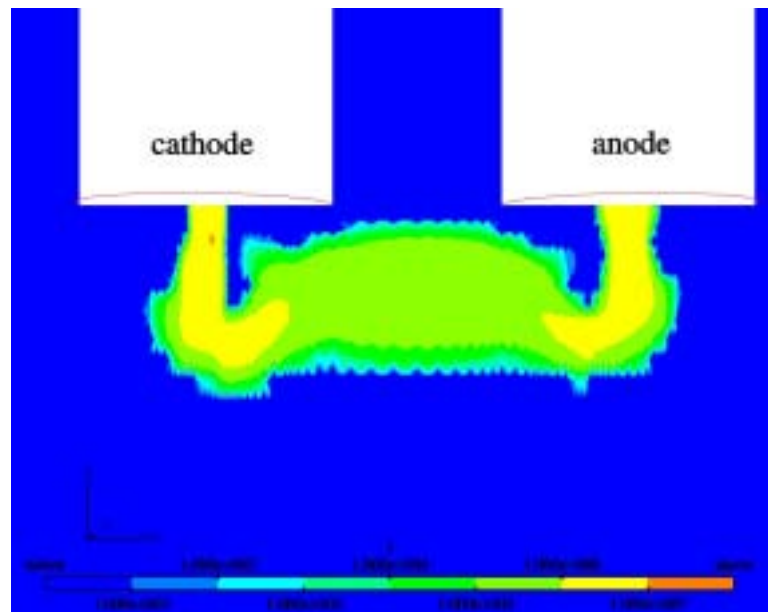


Figure III-21 : Norme de la densité de courant ($A.m^{-2}$) dans le plan (X_m)

On remarque que la densité de courant est comprise entre 10^4 et 10^5 $A.m^{-2}$ dans la zone de couplage des deux jets. Les panaches anodique et cathodique présentent quant à eux une densité de courant plus forte allant de 10^6 à 10^7 $A.m^{-2}$.

La Figure III-22 montre l'évolution des forces de Laplace dues à l'arc électrique. Ces dernières sont synonymes de l'écoulement plasma et on note la répulsion marquée des deux jets.

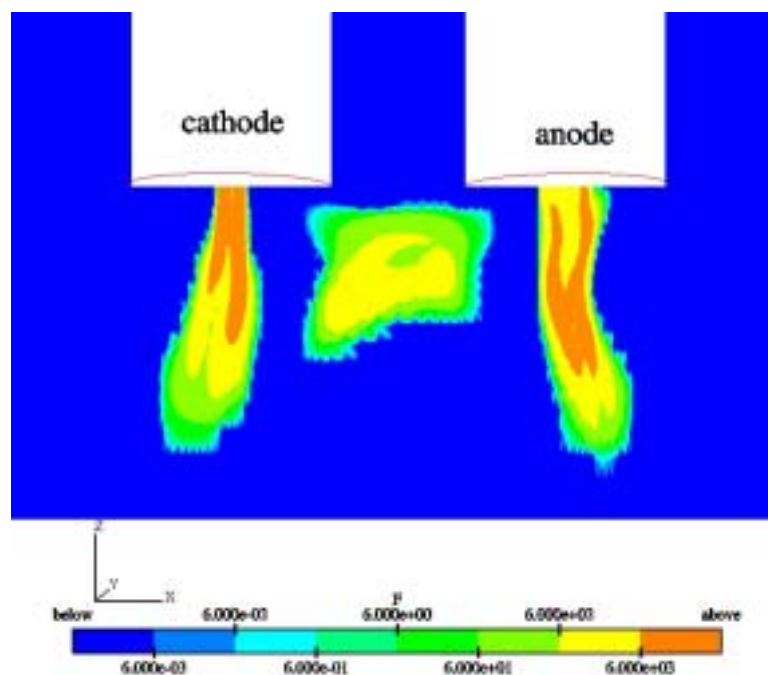


Figure III-22 : Norme des forces de Laplace ($W.m^{-3}$) dans le plan (X_m)

Si on compare la Figure III–22 à la Figure III–17, on remarque que dans les zones d'injection des gaz, les vitesses sont liées au mode d'introduction mais que rapidement en dessous des électrodes, l'écoulement est essentiellement piloté par les forces électromagnétiques.

La force du champ magnétique est importante à proximité de l'arc électrique, sa valeur est comprise $2 \cdot 10^{-3}$ et $2 \cdot 10^{-2}$ Tesla. En s'éloignant de l'arc, on observe une dissipation du champ magnétique et dans l'ensemble du domaine de calcul, il est négligeable.

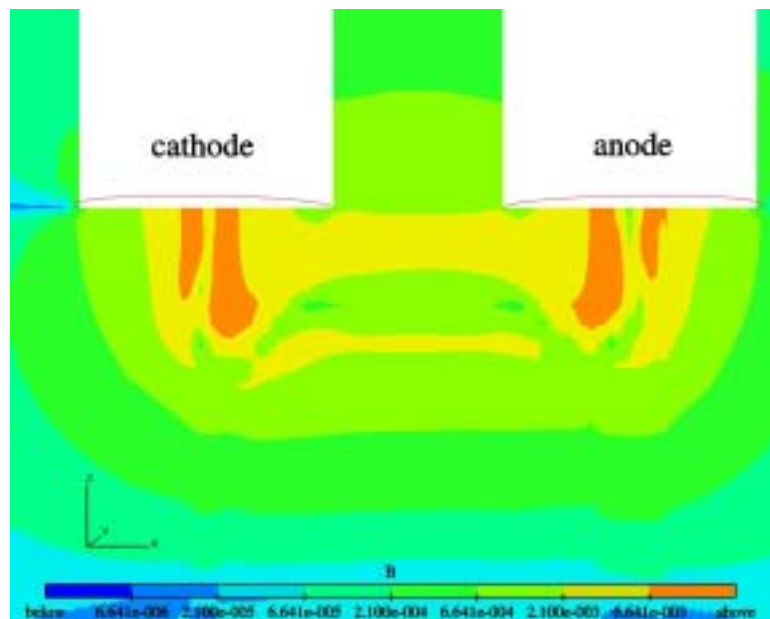


Figure III–23 : Norme du champ magnétique (Tesla) dans le plan (X_m)

La Figure III–24 met en évidence le caractère rotationnel du champ magnétique. A la cathode il est de sens inverse et à l'anode de sens direct. Ce champ magnétique gaine également l'arc électrique comme on pourra le voir sur la Figure III–26.

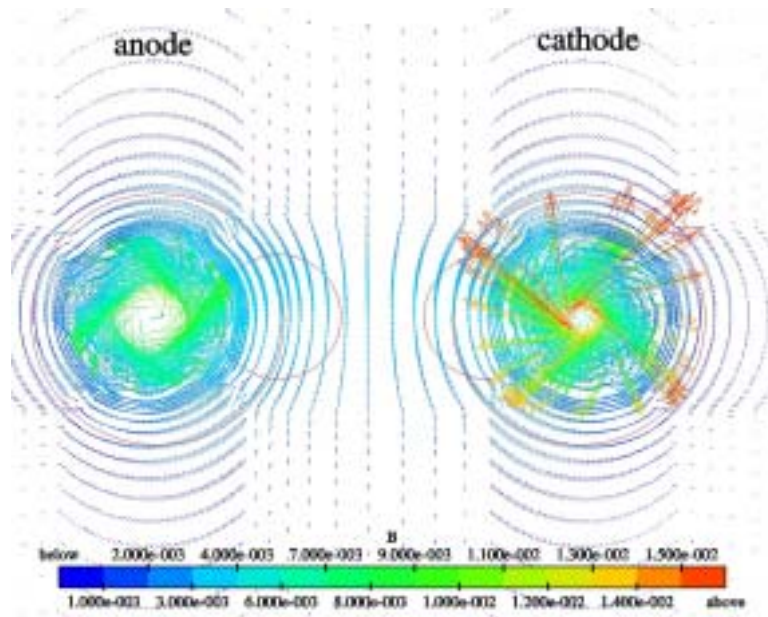


Figure III-24 : Représentation des vecteurs du champ magnétique (Tesla) dans le plan (X_m)

III - 1 - 9 - 5 - Géométrie de l'arc électrique

Jusqu'à présent, seuls des plans 2D ont été tracés afin de mieux interpréter les différents résultats de calcul. Cependant la géométrie 3D de l'arc électrique est une donnée importante car c'est elle qui permet de déterminer la longueur de l'arc électrique et de ce fait de calculer la tension d'arc. Pour obtenir une représentation 3D, nous avons tracé une courbe d'isovolume à une température de 9 000 °C (température de la zone de couplage des deux jets) qui est ensuite colorée par différents résultats de calcul. Il devient alors possible de connaître la composition chimique de l'arc électrique, son potentiel dans la zone de couplage et surtout sa forme. On peut également vérifier les phénomènes de répulsion électrostatique des deux jets.

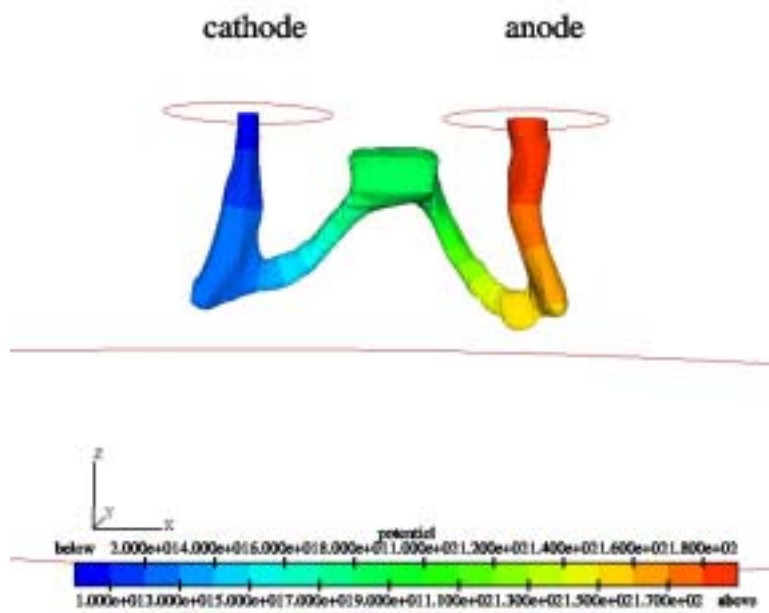


Figure III-25 : Iso-température 3D à 9 000 °C colorée par le potentiel électrique (Volt)

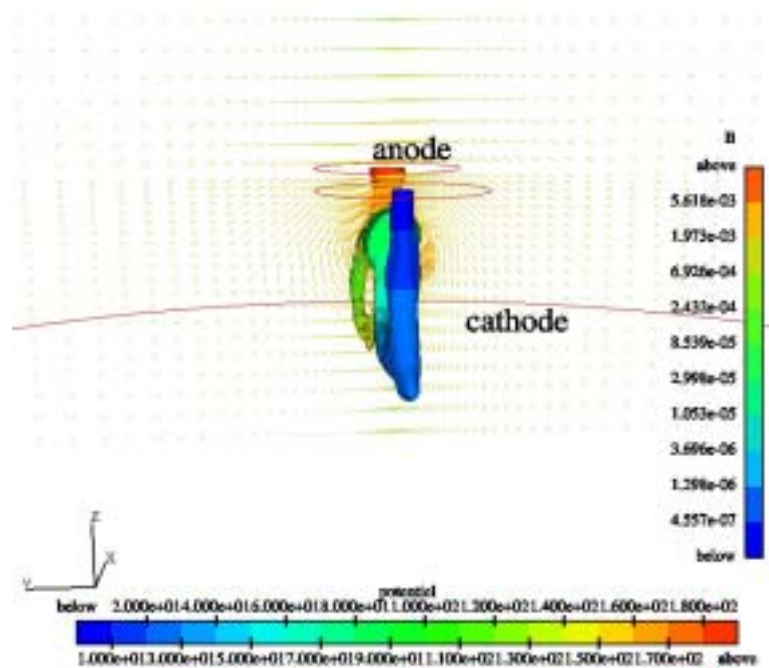


Figure III-26 : Iso-température 3D à 9 000 °C colorée par le potentiel électrique (Volt) et gainée par le champ magnétique (Tesla)

On remarque sur la Figure III-25 que la zone de couplage des deux jets présente un volume important ; ceci est dû à la zone d'initialisation qui n'a pas encore entièrement disparue. La répulsion électromagnétique entre les deux jets est bien marquée et on observe également grâce à la Figure III-26, le décalage axial des deux jets.

Cette forme particulière de l'arc ne semble pas aberrante si on la compare à des prises de vue obtenues par une caméra ultrarapide à 5 000 images.s⁻¹ (Figure III-27). Ces photographies font bien apparaître la zone de couplage et la répulsion des deux jets.

Cathode

Anode

Cathode

Anode

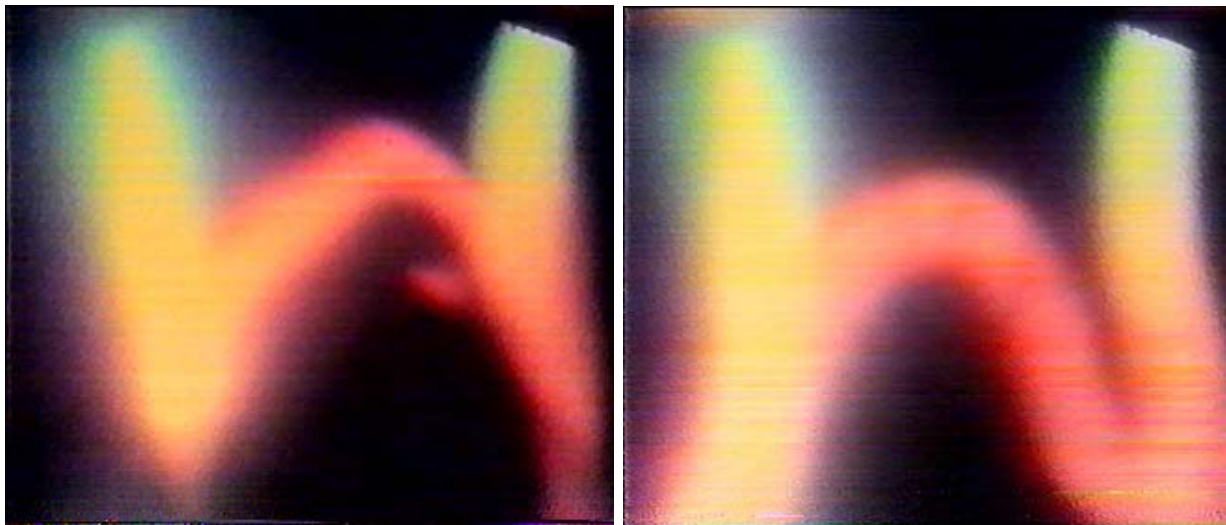


Figure III-27 : Photographies de l'arc à des instants différents

III - 1 - 10 - Conclusions

La simulation de l'arc électrique, au bout de 12 000 itérations de calculs, n'a pas atteint un état quasi-stationnaire sur toutes les variables. On note cependant que la distribution de la température obtenue par modélisation est cohérente avec les valeurs expérimentales obtenues par diagnostic spectroscopique d'émission. La tension de l'arc et sa forme instantanée sont également proches de données expérimentales. Ce modèle d'arc peut maintenant être utilisé pour le développement de nouvelles torches (modification de la

géométrie des corps de torches, injection des gaz, ...) ou encore pour vérifier de manière rapide l'influence de la modification d'un paramètre de fonctionnement (nature et débit des gaz, intensité de l'arc, ...) sur le comportement de l'arc électrique.

Cependant, comme on l'observe sur la Figure III-25, l'arc électrique n'est pas suffisamment développé pour être transféré sur le bain de verre. Les vitesses obtenues sur la surface dite "verre" sont faibles ainsi que le champ de température.

Ainsi, les calculs réalisés dans le domaine verre débutent sur l'hypothèse que l'arc électrique est transféré dans le matériau en fusion (hypothèse vérifiée expérimentalement).

III - 2 - Modélisation du domaine bain de verre

Nous allons dans un premier temps décrire à nouveau les équations résolues par le code ESTET 3.41 mais cette fois, comme la chaleur massique du verre est considérée constante, les équations relatives à l'écoulement (cf. (III-49)) sont résolues sur la température et non plus sur l'enthalpie.

$$\left. \frac{\partial H}{\partial T} \right|_{P=\text{cte}} = C_p \quad (\text{III-61})$$

Nous présenterons ensuite les équations de la dynamique et de la thermique et donnerons les conditions aux limites complétant la description de la modélisation.

De manière générale, les équations résolues pour ce domaine sont les mêmes que les équations traitant du domaine plasma en intégrant quelques simplifications : la chaleur massique étant considérée constante, on transforme l'équation de transport de l'enthalpie en une équation sur la température. De plus, les termes magnétiques étant négligeables, on ne résout plus les équations sur le potentiel vecteur.

Dans le cas qui nous intéresse ici, le verre étant caractérisé par une faible conductivité thermique, $\sigma_v \sim 0,3 \text{ S.m}^{-1}$ à $1\ 300 \text{ }^\circ\text{C}$, il est alors peu probable que des forces électromagnétiques viennent modifier l'écoulement /CHOUDHARY M.K., 1985/. De plus, les transferts de chaleur dans le verre ne sont pas uniquement caractérisés par la conduction et la convection mais aussi par le rayonnement interne, cependant comme nous travaillons avec un verre noir, ce qui rend le milieu optiquement épais, il est possible de négliger le rayonnement interne.

De plus, le domaine verre est considéré comme étant un milieu homogène même s'il est constitué d'une phase liquide et d'une phase solide : ESTET traite de manière continue la transition solide - liquide. Il n'y a donc pas d'équation de transport sur les fractions massiques des composés.

III - 2 - 1 - Les équations de l'électromagnétisme

Dans notre cas, l'échauffement du verre est dû, d'une part au rayonnement du plasma et à la convection thermique, d'autre part à l'effet Joule qui prend naissance dans le verre en fusion par transfert de l'arc électrique.

Les nombres de Reynolds magnétique et hydraulique rencontrés dans ce type de milieu sont tellement faibles ($< 10^{-6}$ et < 1 respectivement) que les mouvements de matière sont très petits. De plus, la conductivité électrique des verres fondus est également faible, de l'ordre de 1 à $100 \Omega^{-1} \cdot m^{-1}$. Les effets diélectriques peuvent être ignorés. Enfin, dans un verre fondu, des courants de conduction prennent place en partie à cause de la migration des ions alcalins mais la simplification par la loi d'Ohm reste valable. Ces hypothèses sont bien appropriées lors de la fusion de verre en four électrique selon /CHOUDHARY M.K., 1997/

Le seul mode d'échauffement est le mode effet Joule ; il est calculé selon la relation suivante :

$$P_{\text{Joule}} = \vec{J} \cdot \vec{E} \quad (\text{III-62})$$

Selon /CHOUDHARY M.K., 1985/, la modélisation de l'hydraulique et de la thermique dans un four de fusion électrique consiste à écrire les équations à partir du champ électrique E . En considérant des conditions quasi stationnaires (hypothèse justifiée compte tenu des valeurs relativement faibles de la fréquence et de la conductivité électrique), le champ électrique devient irrotationnel et on peut l'exprimer en terme de potentiel vecteur Φ :

$$E = - \nabla \Phi \quad (\text{III-63})$$

On peut également écrire la loi d'Ohm selon :

$$J = - \sigma \nabla \Phi \quad (\text{III-64})$$

L'équation de transport du potentiel vecteur est dérivée à partir de la conservation de courant électrique.

$$\vec{\nabla} \cdot (\sigma \vec{\nabla} \Phi) = 0 \quad (\text{III-65})$$

Ainsi, après avoir résolu l'équation (III-37) avec les conditions aux limites appropriées, nous pouvons utiliser les relations (III-36) et (III-43) afin de calculer la densité de courant J et le terme d'effet Joule.

III - 2 - 2 - Les équations de la dynamique et de la thermique dans le domaine verre

Compte tenu de la forte viscosité des verres fondus, l'écoulement dans les fours de fusion est donc considéré comme laminaire. En outre, le nombre de Reynolds est généralement voisin de 1. Il est important de rappeler que lors de nos simulations, nous traitons dans le même domaine les zones solides et les zones liquides.

L'état stationnaire de l'écoulement dans le système est décrit par les équations de continuité semblables à celles résolues dans le cas de l'arc électrique (cf. (III-44) et (III-45)).

- ✓ La conservation de l'énergie

Le verre en fusion étant un liquide semi-transparent dans une certaine gamme de longueur d'onde, incompressible et chimiquement inerte, la conservation de l'énergie dans le bain s'écrit en toute rigueur, si on admet que la dissipation visqueuse de l'énergie est négligeable :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p (\vec{u} \cdot \vec{\nabla}) T = -\text{div}(-\lambda \vec{\nabla} T) + \vec{J} \cdot \vec{E} \quad (\text{III-66})$$

- ✓ Modélisation de l'autocreuset

La simulation de la fusion de verre en creuset froid intègre la notion d'autocreuset dont on souhaite appréhender l'épaisseur par résolution numérique. Il faut donc souligner que toutes ces équations sont résolues dans l'ensemble du domaine verre, c'est-à-dire tant dans la zone solide que dans la zone liquide. La transition entre ces deux phases se fait à une température spécifique que l'on appellera T_f (température de fusion) et qui est en fait calculée à partir de la température de transition de phase (T_g). Il est courant de déterminer la température de fusion du verre en appliquant $T_f = 3/2 T_g$ /SCHOLZE H., 1980/. Dans le cas du verre R7/T7, nous avons calculé $T_f = 700^\circ\text{C}$.

III - 2 - 3 - Propriétés thermophysiques du verre

Les propriétés physiques du verre étudié sont la masse volumique, la conductivité thermique, la conductivité électrique et la viscosité dynamique. La capacité calorifique est constante et prise égale à 1097 J.kg^{-1} /AURE A. et al, 1989/. Toutes les propriétés sont données sous forme de loi d'évolution en fonction de la température.

III - 2 - 3 - 1 - La masse volumique

La faible valeur du coefficient de dilatation thermique du verre permet de considérer la masse volumique comme indépendante des variations de température /AURE A. et al, 1989/.

$$\rho = \rho_0 \quad (\text{III-67})$$

avec $\rho_0 = 2600 \text{ kg.m}^{-3}$.

III - 2 - 3 - 2 - La conductivité thermique

Saint Gobain a mesuré des valeurs de la conductivité thermique du verre pour des températures comprises entre 25 à 570 °C. Pour les hautes températures, les valeurs sont extrapolées à partir de la loi d'évolution suivante :

$$\lambda_v = 3,66.10^{-3} T - 0,269 \quad \text{pour } T > 500 \text{ °C} \quad (\text{III-68})$$

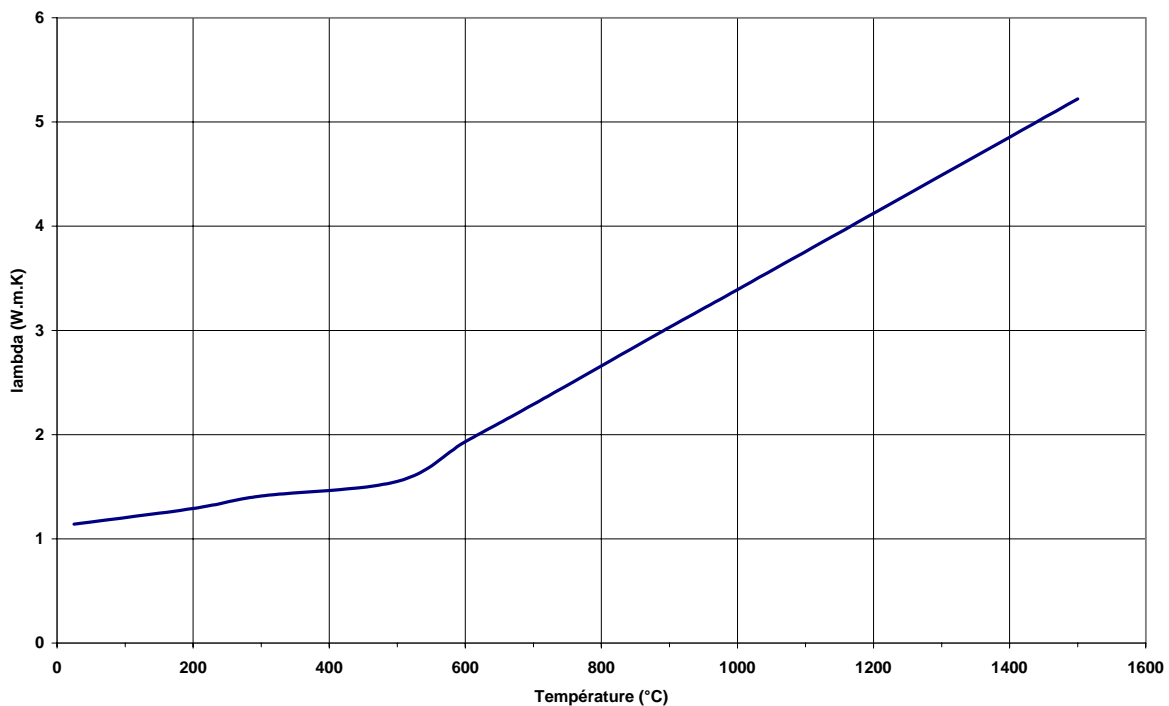


Figure III-28 : Evolution de la conductivité thermique du verre R7/T7 en fonction de la température

On remarque que la conductivité thermique de ce verre est relativement faible comparée à celle rencontrée dans la littérature pour des verres différents /CHOUDHARY

M.K., 1997/ ce qui engendre également un mauvais brassage par convection (vitesses faibles).

III - 2 - 3 - 3 - La conductivité électrique

Dans les verres, la conductivité électrique est liée au déplacement des ions alcalins. Plus un verre est chargé en sodium, meilleure sera sa conductivité électrique. Dans notre cas, la résistivité du verre étudié a été mesurée par Saint Gobain Recherche et les résultats obtenus permettent de déterminer une loi d'évolution de ce paramètre en fonction de la température. La conductivité électrique est l'inverse de la résistivité. Nous avons donc utilisé la loi suivante :

$$\sigma_v = \frac{100}{10^{\left(-0,477 + \left(\frac{778,8}{T(K) - 832,2}\right)\right)}} \quad (\text{III-69})$$

Cette loi n'est valable que pour les températures supérieures à 832,2 K soit 560 °C. A cette température, le verre est figé donc il ne conduit plus le courant. Sa conductivité électrique est négligeable, nous la considérons égale à $10^{-3} \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$.

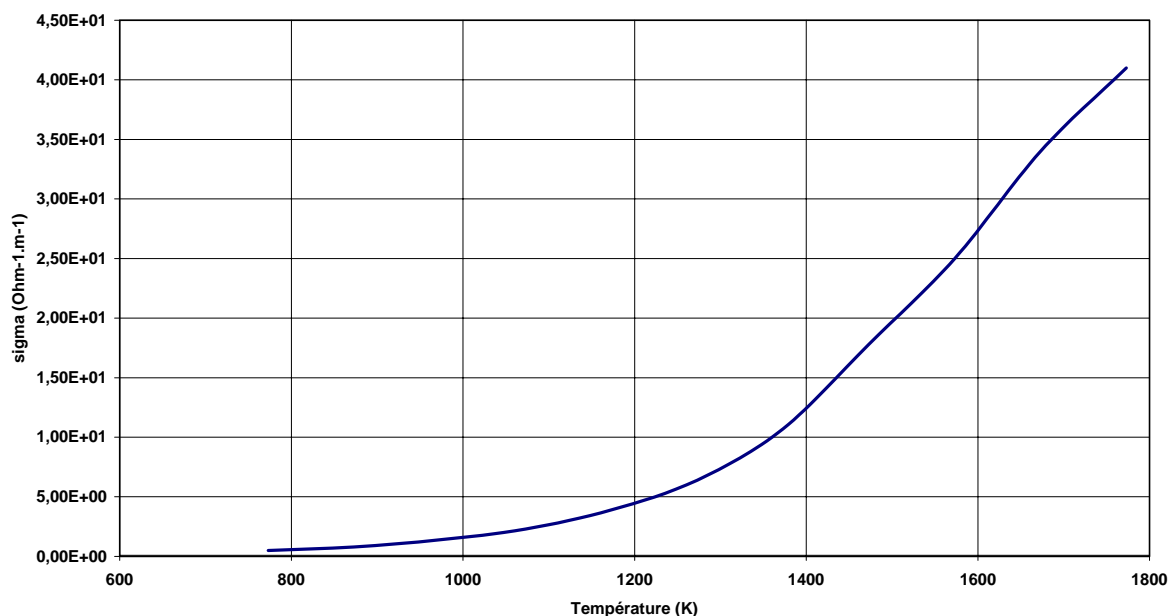


Figure III-29 : Evolution de la conductivité électrique en fonction de la température

III - 2 - 3 - 4 - La viscosité dynamique

De la même manière, nous ne disposons que d'une loi empirique de l'évolution de la viscosité du verre en fonction de la température (communication de Saint Gobain) :

$$\mu = 2367 \times \exp(-0,0045 \times T(\text{K})) \text{ pour } T > 273 \text{ K} \quad (\text{III-70})$$

La viscosité dynamique μ est donnée en Pa.s. Cette dernière est volontairement limitée à $0,1 \text{ Pa.s}^{-1}$ pour les températures supérieures à $1\,400 \text{ K}$.

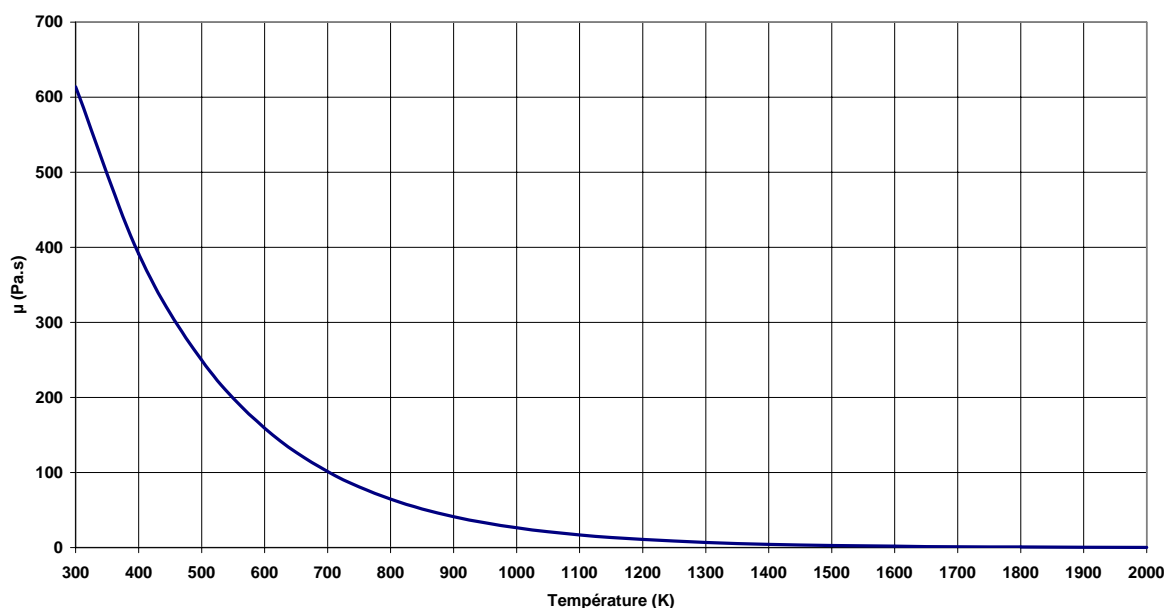


Figure III-30 : Evolution de la viscosité dynamique du verre en fonction de la température

III - 2 - 3 - 5 - Propriétés physiques de la fritte de verre

La fritte de verre se présente sous forme de paillettes solides de granulométrie variable allant de quelques microns à quelques millimètres. Les caractéristiques physiques de la fritte de verre sont une viscosité infinie (prise égale à 500 Pa.s), car assimilée à un solide dans son utilisation, une conductivité électrique nulle (prise égale à $9 \cdot 10^{-4} \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$), et une conductivité thermique constante dans la gamme de température de 25 à 700 °C (température de transition de la phase solide vers la phase liquide). La conductivité thermique de la fritte de verre est une donnée absente de la littérature. Nous l'avons mesurée (cf. Chapitre II-4), elle est de $0,72 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$. Des simulations réalisées avec une loi d'évolution de cette conductivité thermique en fonction de la température ont montré que la variation de la température n'avait que très peu d'effet sur le résultat final.

Nous avons choisi de mener nos simulations avec une masse volumique constante égale à 2500 kg.m^{-3} pour éviter de générer des gradients de pression trop importants lors du passage de l'état solide à l'état liquide.

III - 2 - 4 - Géométrie et maillage du domaine verre

Rappelons que la géométrie du creuset de SHIVA est cylindre d'un diamètre de 600 mm et de 200 mm de hauteur. Le maillage 3D réalisé avec Simail est de type curviligne et structuré. Il intègre deux zones représentant les pieds d'arc anodique et cathodique (cf. Figure III–31). Un plan passant par l'axe des pieds d'arc est présenté sur la Figure III–32. Le nombre de plans dans les directions I, J, K est respectivement de $79 \times 79 \times 40$ pour 249 640 nœuds de calcul. Le plan X_m a les mêmes propriétés que dans le cas du domaine plasma ; le plan Y_m est lui un plan horizontal pris 10 cm en dessous de la surface.

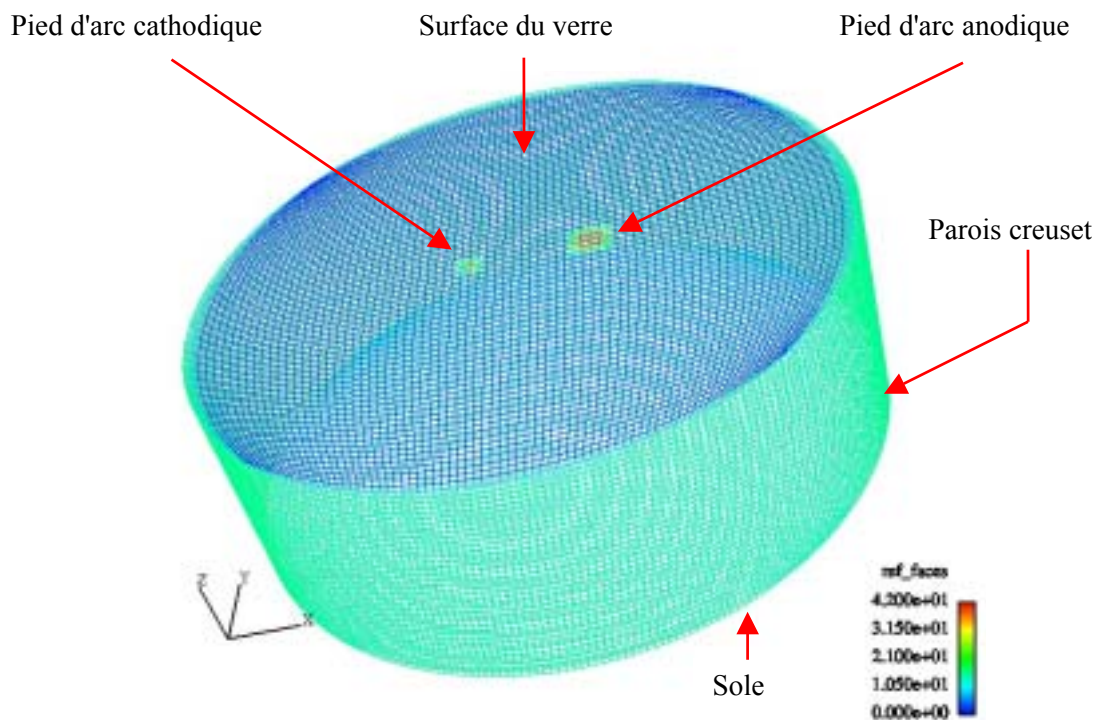


Figure III–31 : Maillage 3D du domaine verre (creuset de 600 mm de diamètre)

III - 2 - 5 - Conditions aux limites pour le domaine verre

Les frontières du domaine verre sont les suivantes :

- ✓ La tache anodique,
- ✓ la tache cathodique,
- ✓ les parois du creuset,
- ✓ la sole,
- ✓ la surface du verre.

Pour chacune de ces frontières nous avons défini des conditions aux limites particulières représentatives de la physique du four. Ces conditions aux limites ne s'appliquent qu'aux variables transportées, c'est-à-dire la température et le potentiel électrique.

- ✓ Vitesses

L'écoulement est supposé laminaire : le verre est un fluide visqueux donc, aux frontières solides (parois creuset, sole), on choisit une condition aux parois de type adhérence ($u_n = 0$ et $u_t = 0$). Par contre, la surface supérieure représentant le verre est considérée comme une paroi et les taches anodique et cathodique sont portées à hautes températures donc à une viscosité faible. La condition à la limite sur ces parois est alors du type glissement, c'est-à-

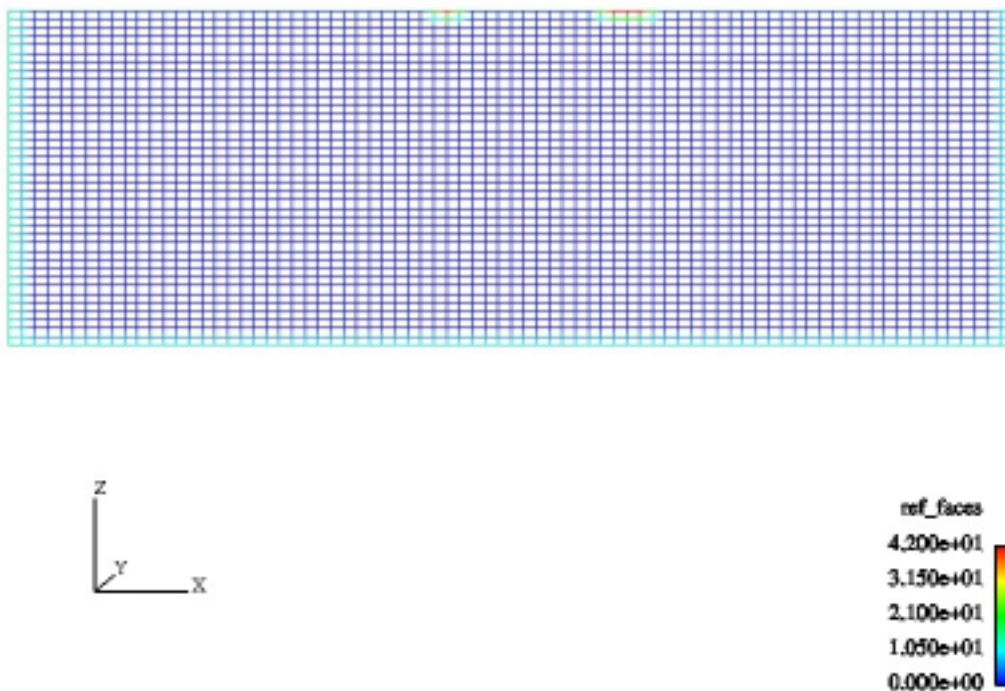


Figure III-32 : Vue d'une coupe verticale passant par le plan (X_m)

dire vitesse à la normale nulle et dérivée de la vitesse tangentielle par rapport à la normale nulle également ($u_n = 0$ et $\frac{\partial u_t}{\partial n} = 0$).

✓ **Température**

Sur les parois du creuset ainsi que sur la sole, nous appliquons des conditions aux limites de type échange thermique avec l'extérieur. La valeur du coefficient d'échange calculé comme $(\lambda_{\text{acier}}/e_{\text{acier}})$ est de $13\,300 \text{ W.m}^{-2}\text{.C}^{-1}$, il est couplé à la température moyenne de l'eau de refroidissement : 25 °C .

Maîtrisant mal l'apport d'énergie par le plasma sur la surface du verre, nous avons appliqué plusieurs conditions aux limites de type flux thermiques exprimés en W.m^{-2} .

Sur les parois dites "taches anodique et cathodique", un flux de 10^6 et 10^7 W.m^{-2} est imposé. /ALEXIS J., 2000/ a estimé un flux anodique lors de la fusion de métaux par un arc transféré de très forte intensité ($36\,000 \text{ A}$) à une valeur d'environ 4.10^7 W.m^{-2} . L'arc modélisé dans notre étude est généré sous une intensité de 200 A , donc globalement, la température de l'arc électrique sera plus faible. De plus, comme il est transféré entre deux électrodes, et que le jet cathodique est à une température plus élevée que le jet anodique, nous avons imposé sur la tache cathodique un flux thermique plus élevé (10^7 W.m^{-2}) que sur le pied anodique (10^6 W.m^{-2}) /CERQUEIRA N. et al, 2001/.

✓ **Potentiel**

Sur toutes les frontières du domaine de calcul, nous imposons une condition de flux nul pour le potentiel $\left(\frac{\partial \Phi}{\partial n} = 0\right)$ sauf sur les taches anodique et cathodique sur lesquelles on impose des isopotentiels. Sur la tache cathodique on impose par convention un potentiel $\Phi = 0 \text{ V}$, par contre sur la tache anodique, on impose $\Phi = 80 \text{ V}$. Cette tension est déduite d'observations expérimentales. En effet, on remarque sur le pilote que dès que l'arc électrique est transféré par le bain de verre, la tension passe de 80V à $150 - 160 \text{ V}$; on suppose alors que l'augmentation de la différence de potentiel est due à ce transfert.

III - 2 - 6 - Initialisation des calculs

On note que les calculs de fusion de verre ont été effectués en parallèle avec les calculs d'arc électrique. Par manque de temps, les résultats de calculs dans le domaine plasma

ne sont pas suffisamment aboutis pour déterminer un profil de température sur la surface verre commun aux deux domaines de calcul.

Afin de déterminer l'épaisseur de l'autocreuset, les simulations sont initialisées à une température de 500 °C et une petite colonne chaude définie entre les deux pieds d'arc est portée à une température de 1 200 °C dans le but d'accélérer l'atteinte d'un écoulement quasi-stationnaire et d'initialiser le chauffage par effet Joule.

La répartition des flux thermiques en surface du bain de verre est mal connue et on ne peut comparer les résultats de simulation (champ de température, quantité de verre fondu) qu'à des résultats expérimentaux obtenus à la fin d'un essai. En effet, compte tenu de la forte luminosité du plasma, il est impossible d'effectuer des mesures pyrométriques en surface du bain afin de connaître sur cette zone la température du verre. De même, l'utilisation d'une caméra infrarouge ne nous a pas fourni de résultats cohérents.

Nous avons décidé de mener plusieurs simulations jusqu'à convergence des paramètres afin de tenter d'estimer les flux thermiques en surface du verre. Nous avons donc mené des tests de sensibilité du calcul en fonction de différentes conditions aux limites imposées sur la paroi "surface verre". Chaque simulation est effectuée en ne modifiant qu'un seul paramètre. Les résultats obtenus sont présentés dans les paragraphes suivants et comparés à un essai de fusion de verre sur l'installation SHIVA.

III - 2 - 7 - Résultats de modélisation dans le domaine verre

Dans le Tableau III-2, on présente les conditions aux limites que nous avons imposées lors des différents tests de sensibilité. Une ellipse a été tracée incluant les deux taches anodique et cathodique et c'est sur cette dernière que l'on fait varier le flux thermique (cf. Figure III-33). Dans le reste du domaine, les flux sont imposés en fonction de différents rayons. Lors de ces quatre simulations, on ne fait varier que le flux thermique appliqué sur l'ellipse.

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4
Ellipse : R = 0,09m et r = 0,045m	5.10^5 W.m^{-2}	1.10^6 W.m^{-2}	5.10^6 W.m^{-2}	1.10^7 W.m^{-2}
$0,09 < R \text{ (m)} < 0,15$	5.10^4 W.m^{-2}	5.10^4 W.m^{-2}	5.10^4 W.m^{-2}	5.10^4 W.m^{-2}
$0,15 < R \text{ (m)} < 0,28$	-1.10^5 W.m^{-2}	-1.10^5 W.m^{-2}	-1.10^5 W.m^{-2}	-1.10^5 W.m^{-2}
$R \text{ (m)} > 0,28$	-1.10^6 W.m^{-2}	-1.10^6 W.m^{-2}	-1.10^6 W.m^{-2}	-1.10^6 W.m^{-2}
Anode (A)	1.10^6 W.m^{-2}	1.10^6 W.m^{-2}	1.10^6 W.m^{-2}	1.10^6 W.m^{-2}
Cathode (K)	1.10^7 W.m^{-2}	1.10^7 W.m^{-2}	1.10^7 W.m^{-2}	1.10^7 W.m^{-2}
Puissance totale injectée sur la surface du verre	+ 9,75 kW	+ 16,10 kW	+ 66,90 kW	+ 130,40 kW

Tableau III-2 : Flux thermiques imposés comme condition à la limite sur la surface "verre"

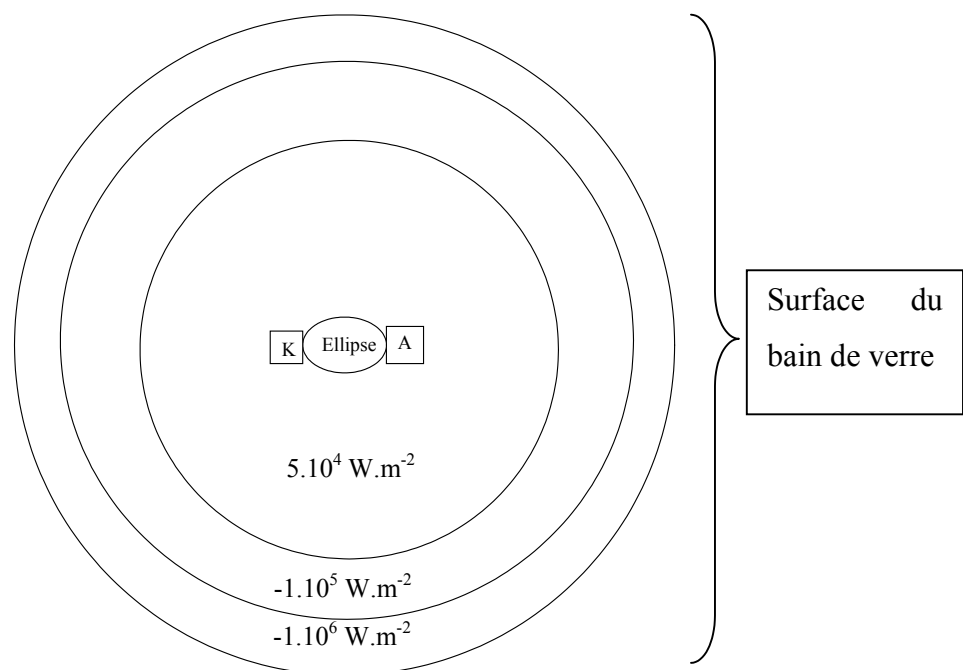


Figure III-33 : Répartition des flux thermiques à la surface du bain de verre

Pour chacun des tests réalisés, nous présentons le champ de vitesse, le champ de température, l'apport d'énergie par effet Joule, la forme 3D du bloc de verre fondu.

Nous commençons par la présentation du champ de vitesse à l'intérieur du creuset car nous sommes dans le cas d'un écoulement de type convection naturelle ; c'est donc l'écoulement qui influence de manière déterminante le champ de température dans le bain.

*III - 2 - 7 - 1 - Test 1**III - 2 - 7 - 1 - 1 - Champ de vitesse*

Le champ de vitesse se décompose en plusieurs zones distinctes comme le montre la Figure III-34. On observe deux grandes boucles de recirculation (en fait une seule boucle de recirculation torique et de sens inverse comme on le remarque sur la Figure III-35) qui ont tendance à générer un fort écoulement central et qui permettent la migration des éléments froids vers les zones chaudes. En surface du bain de verre, les vitesses calculées sont de l'ordre de 1 à 4 mm.s⁻¹. La vitesse maximale est de 6,5 mm.s⁻¹ dans la colonne chaude centrale.

Les deux boucles de recirculation, conséquence sur un plan vertical de la présence d'une boucle torique, ont la forme d'ellipse placée de manière symétrique par rapport à l'axe du creuset (cf. Figure III-36). Elles évoluent toutes les deux à des vitesses de l'ordre de 0,5 mm.s⁻¹.

On constate que partout ailleurs dans le creuset, les vitesses sont négligeables ce qui pourrait se traduire par le fait que le verre n'est pas entièrement fondu et qu'il reste encore une grande part de fritte de verre.

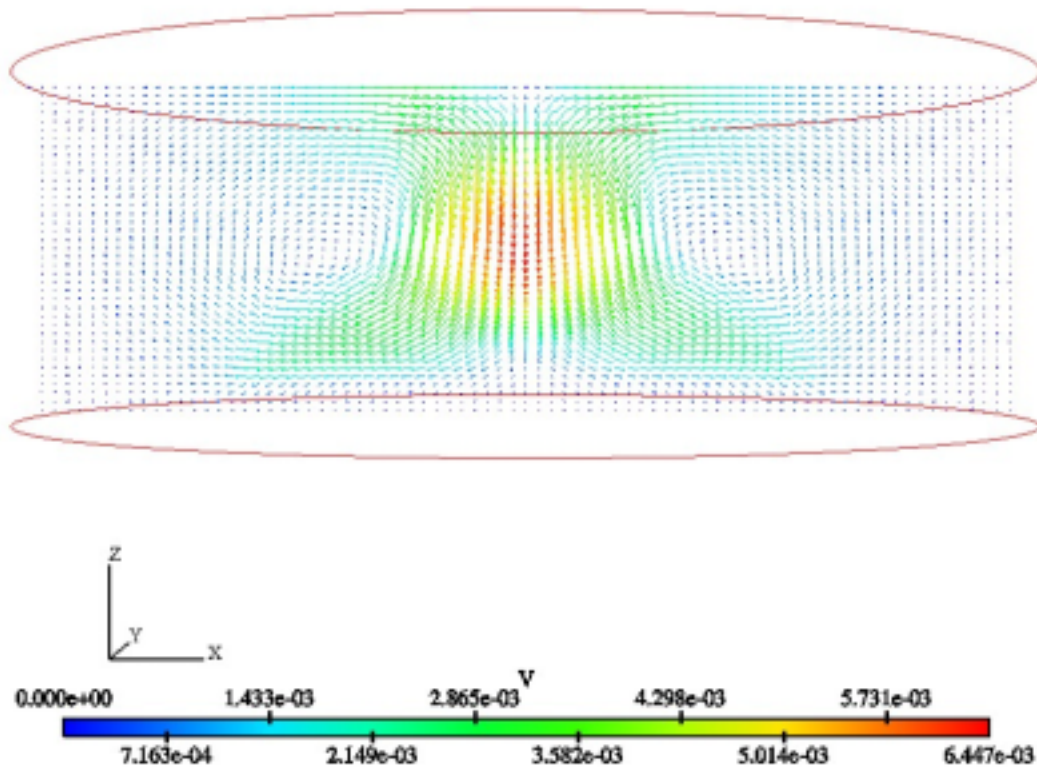


Figure III-34 : Champ de vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) dans le plan (X_m) pour le test 1

Cependant, ce champ de vitesse ne peut pas être confronté à des valeurs expérimentales car, à notre connaissance, il n'existe pas, dans la littérature de données sur la vitesse de l'écoulement dans les verres. Cependant ces résultats semblent cohérents avec l'observation expérimentale du déplacement d'un solide réfractaire déposé sur la surface du verre en fusion.

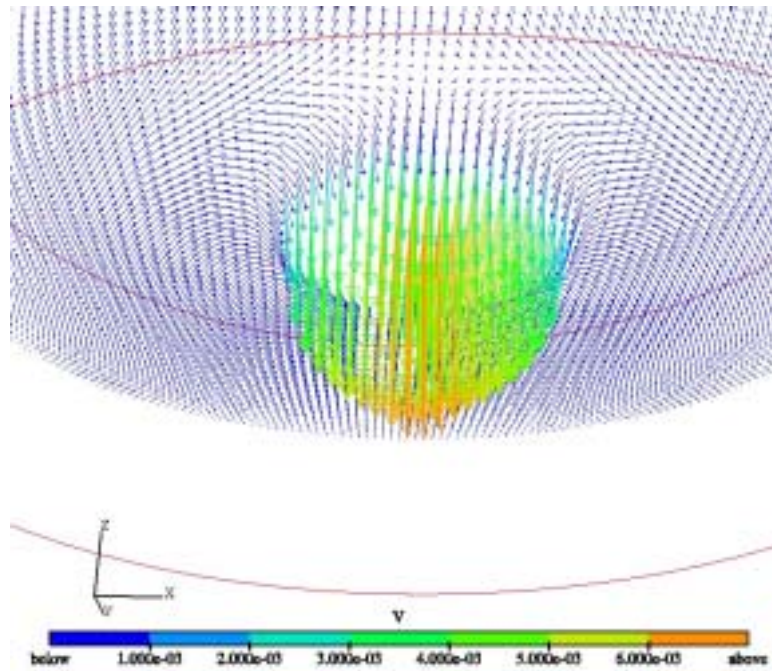


Figure III-35 : Champ de vitesses (m.s^{-1}) dans le plan (Y_m) pour le test 1

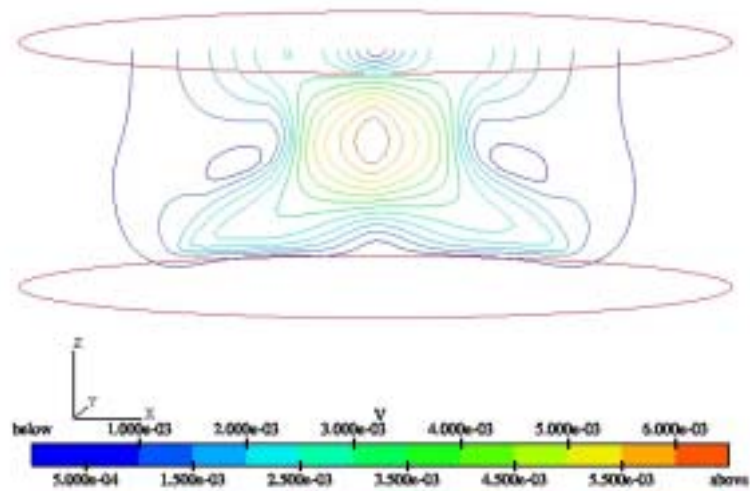


Figure III-36 : Lignes d'isovitesse dans le plan (X_m) pour le test 1

III - 2 - 7 - 1 - 2 - Champ de température

La Figure III-37 présente la répartition de la température dans le creuset métallique. On note que le champ de température est en accord avec l'écoulement précédemment décrit. On constate une surchauffe locale (température voisine de $2\,000\text{ °C}$) correspondant au pied d'arc cathodique et qui s'estompe sur une très faible hauteur. L'écoulement génère la formation d'une colonne chaude ($1\,200\text{ °C}$) centrée sur l'axe du creuset.

La Figure III–38 fait apparaître les températures obtenues à la surface du bain de verre en fonction des conditions aux limites imposées. On retrouve la forme elliptique définie entre les pieds d'arc anodique et cathodique sur laquelle le flux est de 5.10^5 W.m^{-2} .

On remarque également que la température des parois du creuset ainsi que la température de la sole sont inférieures à 300 °C . De plus, à environ 7 cm du bord des parois pour une hauteur comprise entre 2 et 15 cm , on observe la présence d'une zone dans laquelle la température est assez homogène de l'ordre de 600 à 700 °C , cela signifie que dans ce cas, l'épaisseur de l'autocreuset est voisine de 7 cm , puisque la température de fusion du verre est estimée à environ 700 °C (cf. III - 2 - 3 -). Par contre, au centre du creuset et en surplomb de la sole, cet autocreuset ne présente plus qu'une épaisseur de quelques millimètres.

Expérimentalement, on retrouve ces valeurs d'autocreuset après un essai de fusion d'une durée équivalente à celle de cette simulation.

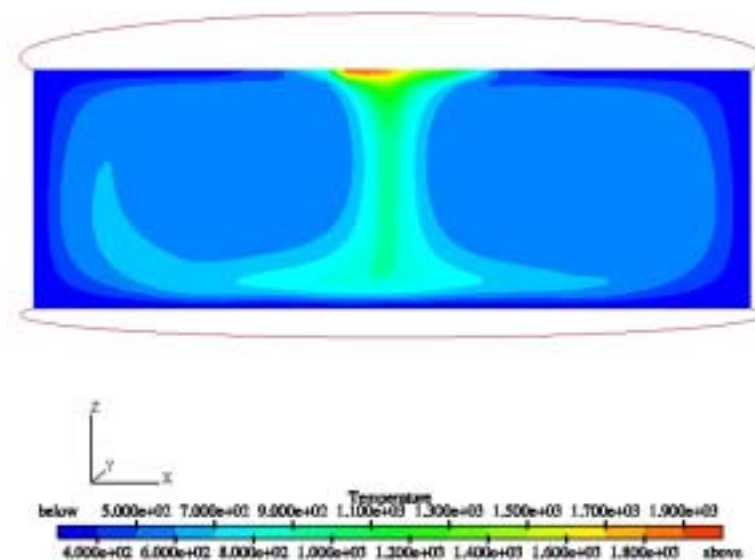


Figure III–37 : Champ de température ($^{\circ}\text{C}$) dans le plan (X_m) pour le test 1

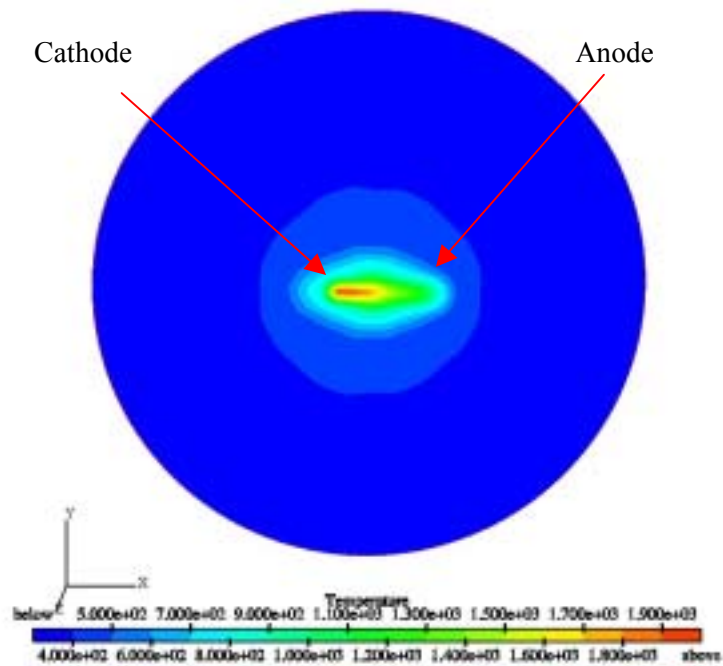


Figure III-38 : Champ de température ($^{\circ}\text{C}$) en surface du bain de verre pour le test 1

III - 2 - 7 - 1 - 3 - Apport énergétique par effet Joule

La Figure III-39 présente la puissance volumique ($\text{W}\cdot\text{m}^{-3}$) dans le creuset. Cette puissance est représentative de l'effet du transfert de courant dans le verre donc du chauffage par effet Joule. Ce dernier est important sur les tâches anodique et cathodique, sa valeur est supérieure à $5\cdot 10^6 \text{ W}\cdot\text{m}^{-3}$. On note une activité assez forte (comprise entre $5\cdot 10^2$ et $5\cdot 10^5 \text{ W}\cdot\text{m}^{-3}$) dans les premiers centimètres sous la surface du bain et dans la zone où l'écoulement est le plus fort. Cependant on observe une forte adéquation entre ce paramètre et la température, puisqu'on trouve une puissance volumique de l'ordre de $50 \text{ W}\cdot\text{m}^{-3}$ en certains points au fond du creuset, ces mêmes points sont à des températures de l'ordre de $900 \text{ }^{\circ}\text{C}$. Dans l'ensemble du domaine, l'apport énergétique par effet Joule est de $0,2 \text{ kW}$ sous une tension de 80 V soit un courant traversant le verre de $2,5 \text{ A}$.

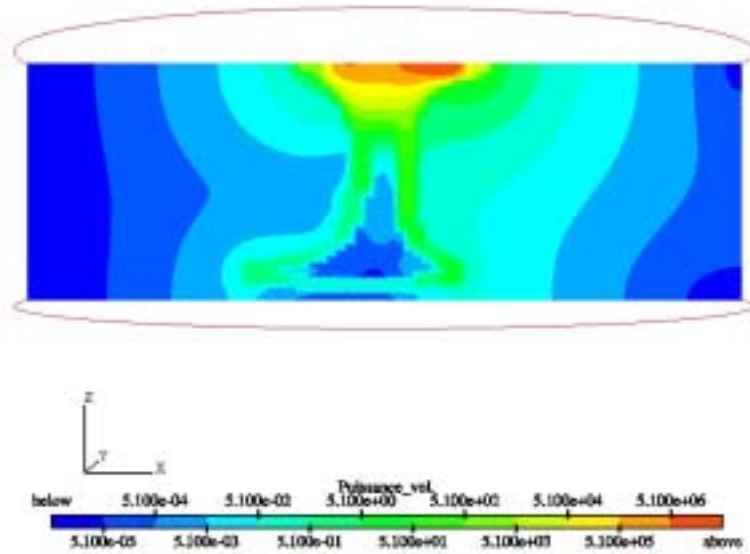


Figure III-39 : Evolution de la puissance volumique (W.m^{-3}) dans le plan (X_m) pour le test 1

III - 2 - 7 - 1 - 4 - Géométrie 3D du lingot de verre obtenu

La Figure III-40 présente la forme du lingot de verre obtenu après son refroidissement. Le bloc de verre obtenu à la fin du calcul prend une forme cylindrique si l'on excepte la zone d'initialisation qui reste encore très marquée. Le verre semble fondu dans le tiers du creuset.

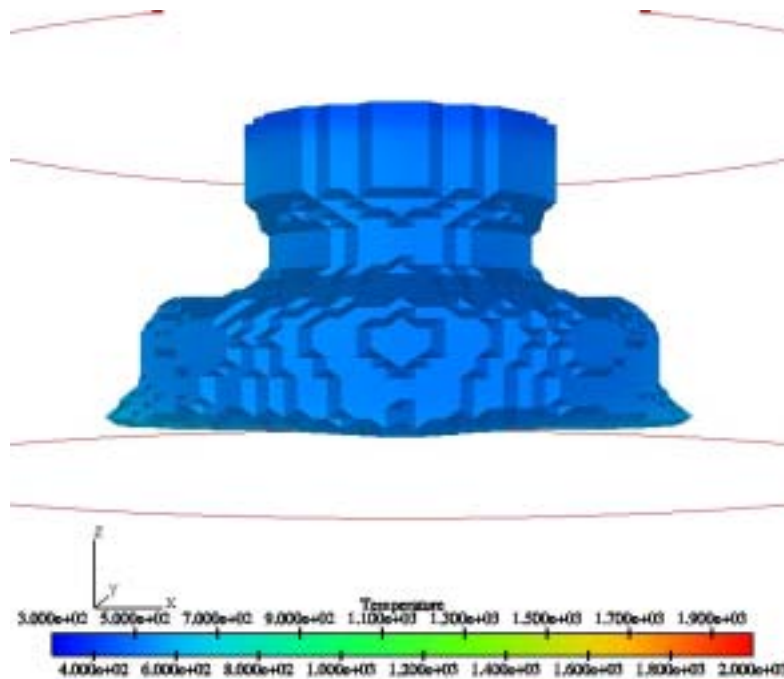


Figure III-40 : Iso-masse volumique à $2\,600\text{ kg.m}^{-3}$ colorée par la température pour le test 1

La température de l'enveloppe du verre (cf. Figure III–40) est froide, ce qui signifie que le bloc de verre fondu est entouré de fritte de verre non fondue correspondant à l'épaisseur de l'autocreuset.

III - 2 - 7 - 2 - Test 2

Les calculs ont été menés jusqu'à convergence. Pour ce calcul, seul le flux thermique apporté sur l'ellipse est modifié : l'apport énergétique est maintenant de 1.10^6 W.m^{-2} .

III - 2 - 7 - 2 - 1 - Champ de vitesse

L'allure générale de l'écoulement n'est pas modifiée mais les vitesses calculées sont plus importantes. Ainsi dans la colonne centrale, elles sont supérieures à 9 mm.s^{-1} alors que dans le cas précédent, leur valeur maximale était de $6,5 \text{ mm.s}^{-1}$. On doit donc s'attendre à une plus grande zone fondue en surface du bain de verre.

On retrouve sur la Figure III–41 et la Figure III–42 la boucle de recirculation torique générée uniquement par l'établissement de l'écoulement.

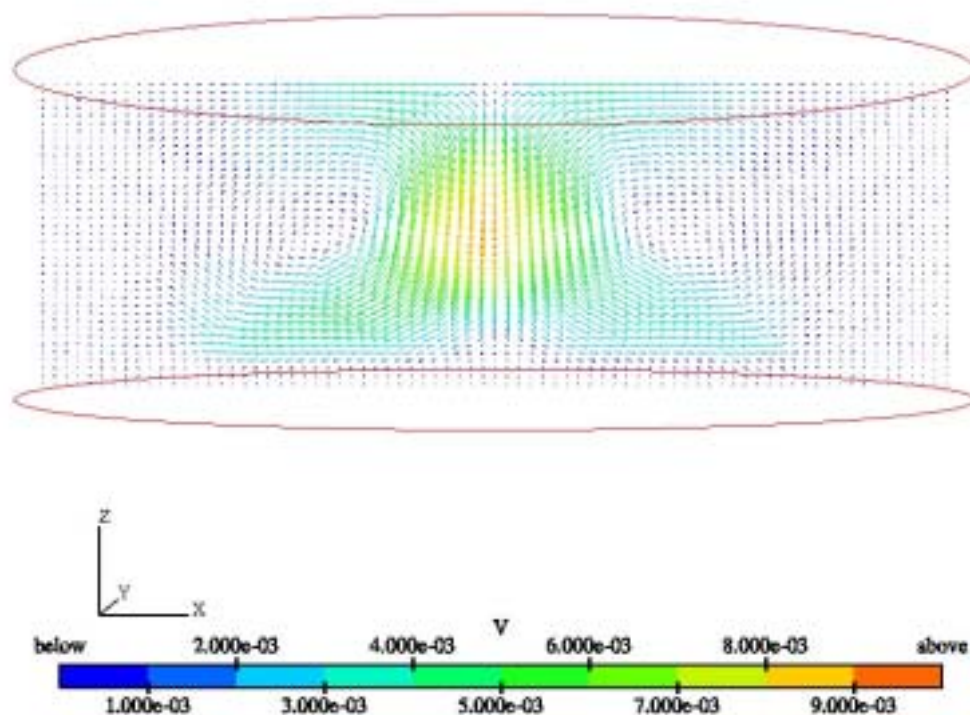


Figure III–41 : Champ de vitesse (m.s^{-1}) dans le plan (X_m) pour le test 2

Dans le reste du domaine de calcul, les vitesses sont faibles voire négligeables ce qui se traduit par la conservation d'une partie non fondue (autocreuset)

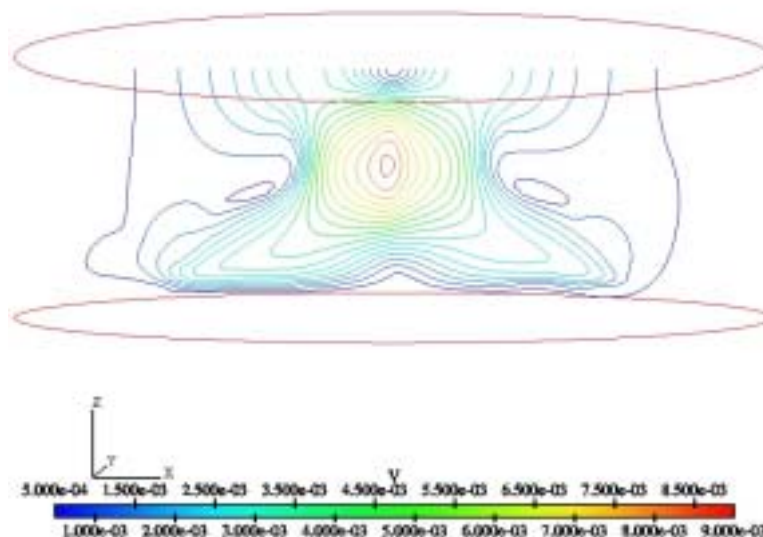


Figure III-42 : Lignes d'isovitesse (m.s^{-1}) dans le plan (X_m) pour le test 2

III - 2 - 7 - 2 - 2 - Champ de température

La Figure III-43 présente la distribution de la température dans le creuset. Conformément aux conclusions de l'étude de l'écoulement, on note la présence d'une surchauffe sous les pieds d'arc plus importante que dans le cas précédent. La colonne chaude centrée sur l'axe du creuset est plus large et sa température est proche de $1\ 300\ ^\circ\text{C}$.

De plus, on ne retrouve plus la zone dans laquelle la température est relativement homogène. On remarque une asymétrie, due à un flux thermique plus important sous le pied cathodique, dans le champ de température (cf. Figure III-44), et de ce fait une zone chaude définie par l'isotherme à 700°C qui se rapproche des parois du creuset.

Cependant, les températures des parois et de la sole restent inférieures à $300\ ^\circ\text{C}$: à cette température le verre est solide donc l'autocreuset est préservé. Il est d'une épaisseur plus faible du côté du pied d'arc cathodique. Au dessus de la sole, l'épaisseur de l'autocreuset est comprise entre 0,5 et 1 cm.

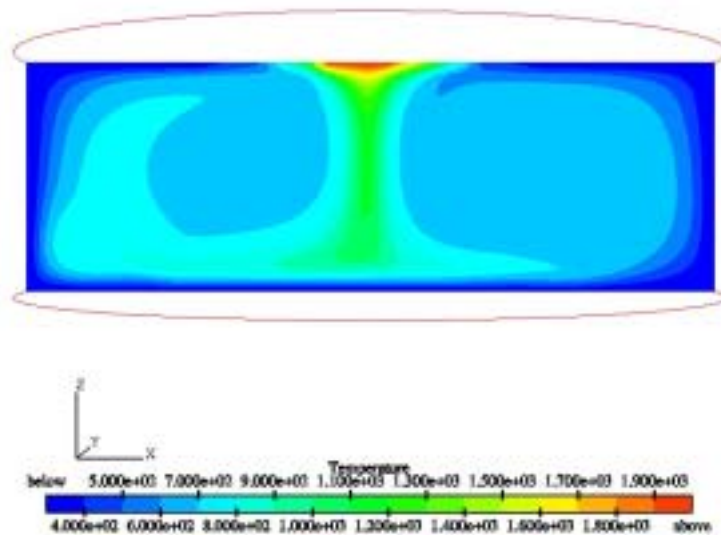


Figure III-43 : Champ de température ($^{\circ}\text{C}$) dans le plan (X_m) pour le test 2

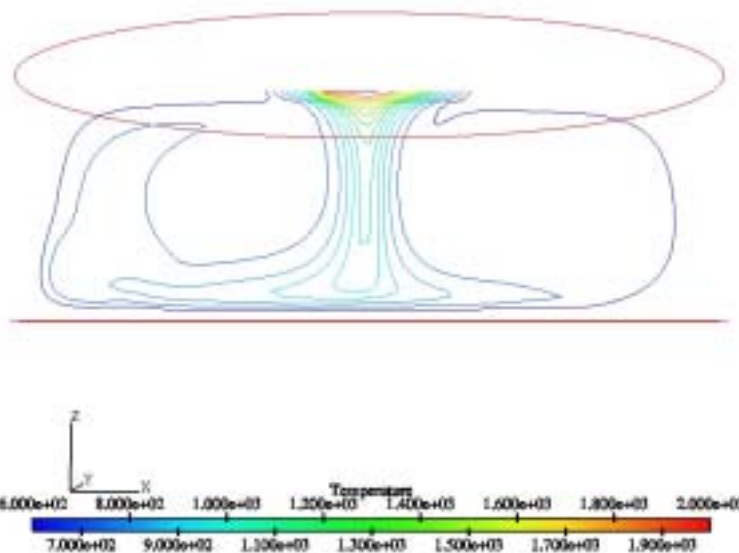


Figure III-44 : Isothermes ($^{\circ}\text{C}$) dans le plan (X_m) pour le test 2

III - 2 - 7 - 2 - 3 - Apport énergétique par effet Joule

Le résultat de ce calcul fait apparaître que l'apport d'énergie par effet Joule dans le verre est plus important que pour le test 1. C'est au niveau des pieds d'arc que l'effet Joule est le plus important et sa propagation dans le verre est plus importante (environ 2 cm sous la surface) puisque la température y est plus élevée.

Dans le reste du domaine verre, l'apport énergétique par effet Joule est pratiquement négligeable.

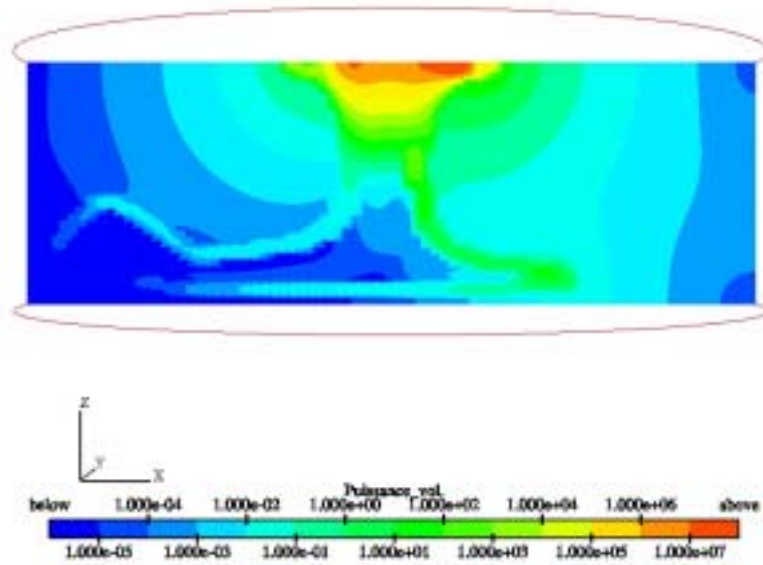


Figure III-45 : Evolution de la puissance volumique (W.m^{-3}) dans le plan (X_m) pour le test 2

Dans l'ensemble, l'effet Joule est de 0,46 kW pour une tension de 80 V soit un courant traversant le verre d'environ 6 A.

III - 2 - 7 - 2 - 4 - Géométrie 3D du lingot de verre

La Figure III-46 présente la forme du verre obtenu après refroidissement. Cette géométrie particulière est à rapprocher de la distribution de la température dans le creuset, et on remarque que le verre a tendance à se rapprocher de la paroi du creuset du côté du pied d'arc cathodique. Ce phénomène provient de l'asymétrie imposée entre les deux pieds d'arc et comme on le voit sur la Figure III-44, la température est plus forte du côté cathodique.

On note qu'environ le tiers du volume initial est fondu.

En faisant un parallèle avec des essais de fusion de verre stoppés à différents temps pour observer la forme du verre, il n'a jamais été remarqué que le lingot de verre prenne cette forme.

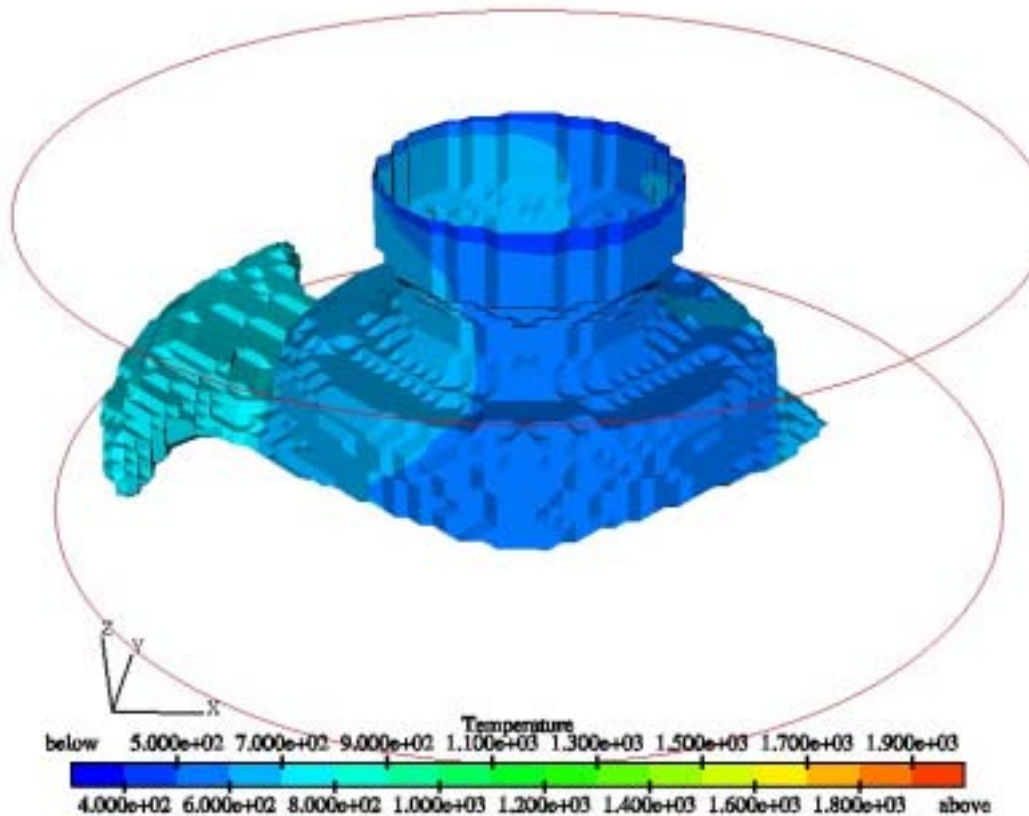


Figure III-46 : Iso-masse volumique à 2600 kg.m^{-3} colorée par la température ($^{\circ}\text{C}$) pour le test 2

III - 2 - 7 - 3 - Test 3

Les calculs ont été menés jusqu'à convergence avec un flux thermique apporté sur l'ellipse de 5.10^6 W.m^{-2} .

III - 2 - 7 - 3 - 1 - Champ de vitesse

La Figure III-47 présente l'évolution de l'écoulement dans un plan X_m . Comme lors des deux calculs précédents, on remarque deux boucles de recirculation (en fait une boucle de forme torique si on prend un plan horizontal) et le maximum de vitesse ($\sim 7,5 \text{ mm.s}^{-1}$) est atteint dans l'axe du creuset.

La Figure III-48 permet de visualiser ces boucles de recirculation qui évoluent à environ $0,4 \text{ mm.s}^{-1}$.

De manière générale, l'écoulement est similaire à celui rencontré dans les deux cas précédents, cependant bien que le flux thermique imposé soit plus fort que lors du test 2, la vitesse maximale de déplacement est plus faible.

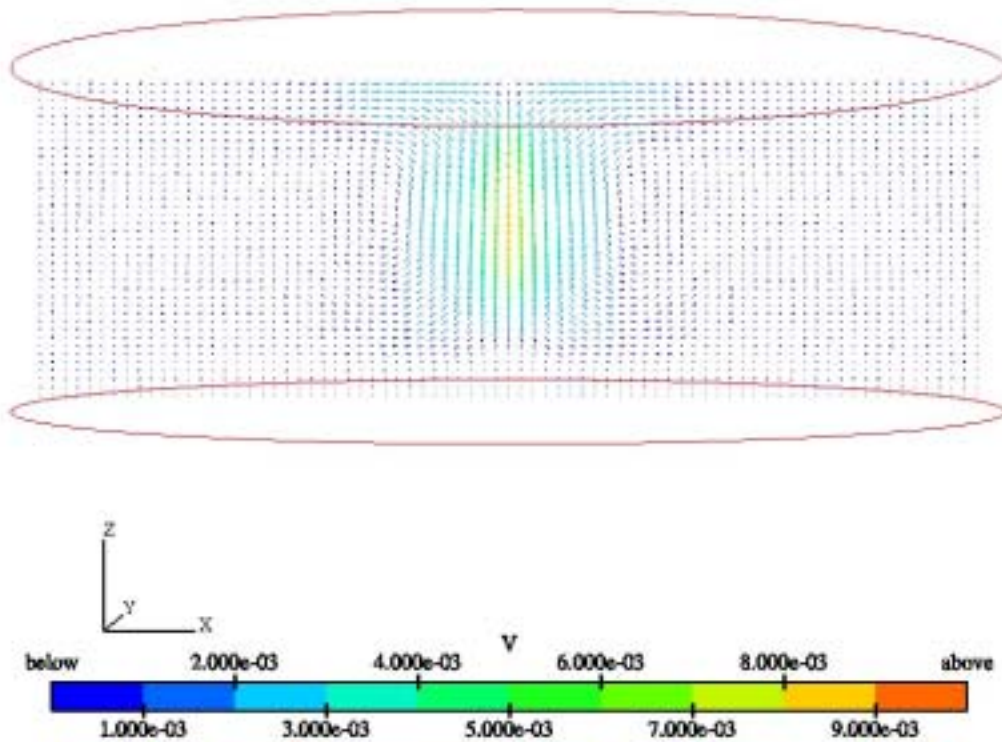


Figure III-47 : Champ de vitesse (m.s^{-1}) dans le plan (X_m) pour le test 3

Par comparaison avec le cas précédent, la boucle de recirculation torique se situe à une altitude plus élevée dans le creuset. De plus, les vitesses rencontrées sont plus faibles ce qui est probablement dû à une meilleure homogénéisation de la température dans le domaine de calcul.

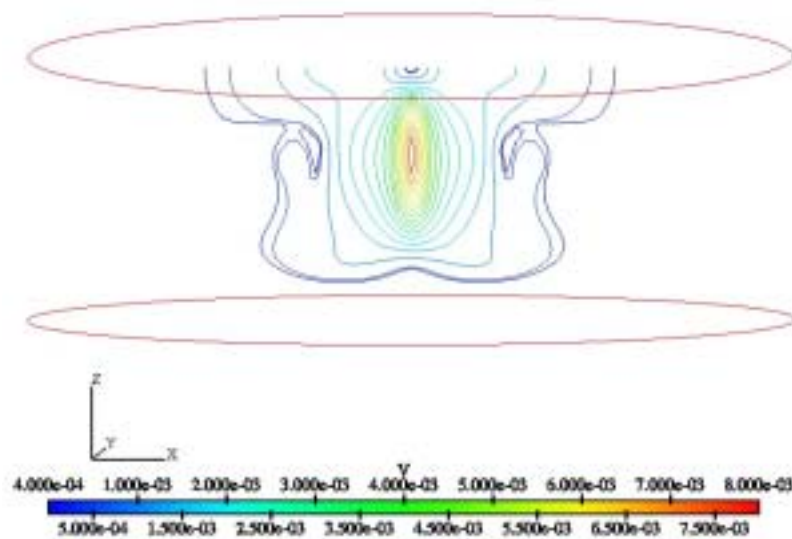


Figure III-48 : Lignes d'isovitesse (m.s^{-1}) dans le plan (X_m) pour le test 3

III - 2 - 7 - 3 - 2 - Champ de température

On observe sur la Figure III-49 une zone de surchauffe importante entre les pieds d'arc. La température y est supérieure à 2 000 °C. On retrouve la colonne chaude centrée sur l'axe du réacteur, elle est portée à une température d'environ 1 600 °C.

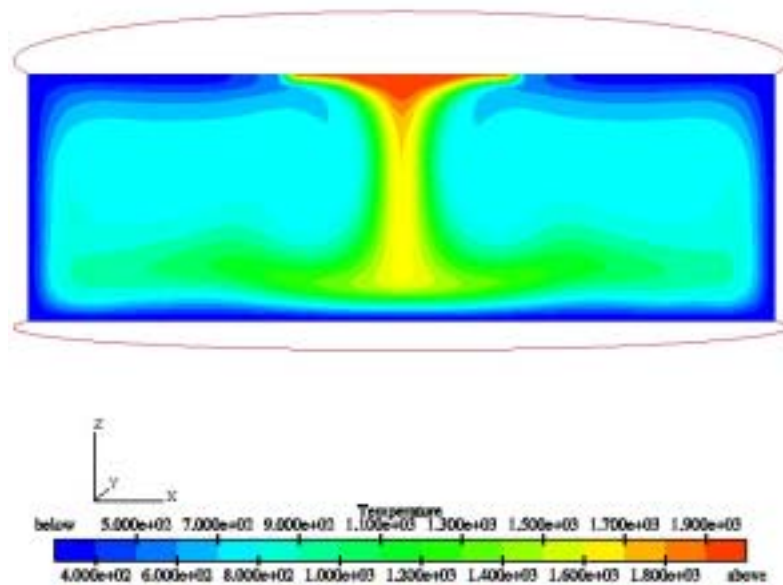


Figure III-49 : Champ de température (°C) dans le plan (X_m) pour le test 3

La dissipation de l'énergie dans tout le domaine de calcul est meilleure : pratiquement toute la fritte de verre initialement présente est passée sous forme de verre liquide ou visqueux.

On remarque également que les températures des parois restent faibles (< 300 °C) mais que l'épaisseur de l'autocreuset diminue : quelques centimètres en paroi du creuset et seulement quelques millimètres en surface de la sole.

L'observation des isothermes fait apparaître une zone de température homogène délimitée par l'isotherme à 700 °C.

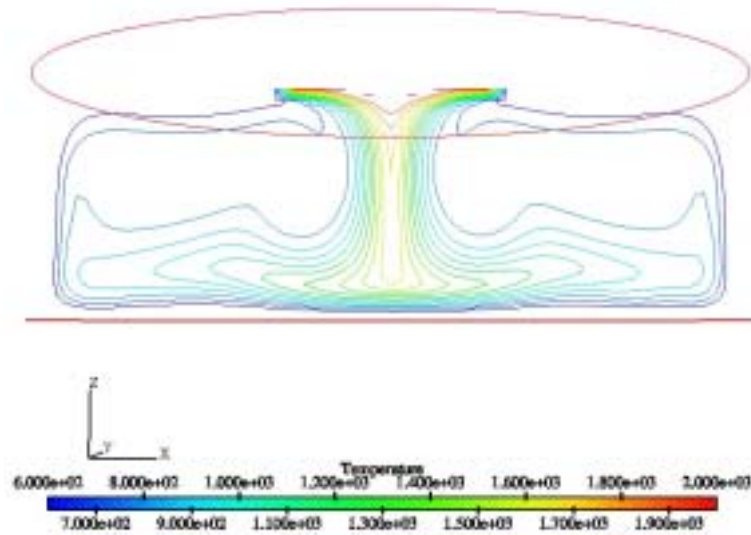


Figure III-50 : Isothermes (°C) dans le plan (X_m) pour le test 3

III - 2 - 7 - 3 - 3 - Apport énergétique par effet Joule

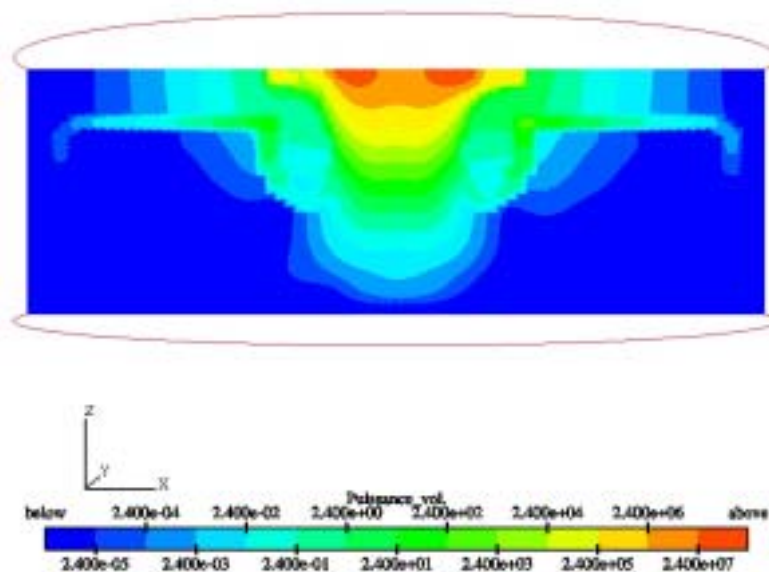


Figure III-51 : Evolution de la puissance volumique ($W \cdot m^{-3}$) dans le plan (X_m) pour le test 3

La Figure III-51 présente l'évolution de la puissance volumique dans le verre et on note que cette puissance est importante (de l'ordre de $3 \cdot 10^7$ $W \cdot m^{-3}$) au niveau des pieds d'arc. De plus, compte tenu que la température est plus élevée dans le milieu, l'effet Joule devient plus important et pénètre plus dans le verre. Ainsi, la puissance volumique est encore voisine de $2 \cdot 10^2$ $W \cdot m^{-3}$ à mi-hauteur du creuset.

Dans le reste du domaine, cette puissance est négligeable.

L'apport d'énergie global par effet Joule est estimé à 3,19 kW sous une tension de 80 V soit un courant traversant le verre d'environ 40 A. On remarque que plus le verre est chaud, plus le courant circule facilement dans le verre.

III - 2 - 7 - 3 - 4 - Géométrie 3D du lingot de verre fondu

La Figure III–52 présente la forme du bloc de verre obtenu par cette simulation. Les conditions aux limites choisies pour ce cas permettent de fondre pratiquement toute la fritte de verre contenue dans le creuset en conservant une épaisseur d'autocreuset de quelques centimètres. Cependant la forme du bloc de verre ne correspond pas réellement à la forme du bloc de verre obtenu sur l'installation. Les conditions aux limites choisies ne sont pas encore réellement représentatives des flux thermiques échangés entre le plasma et le verre dans notre configuration de fonctionnement.

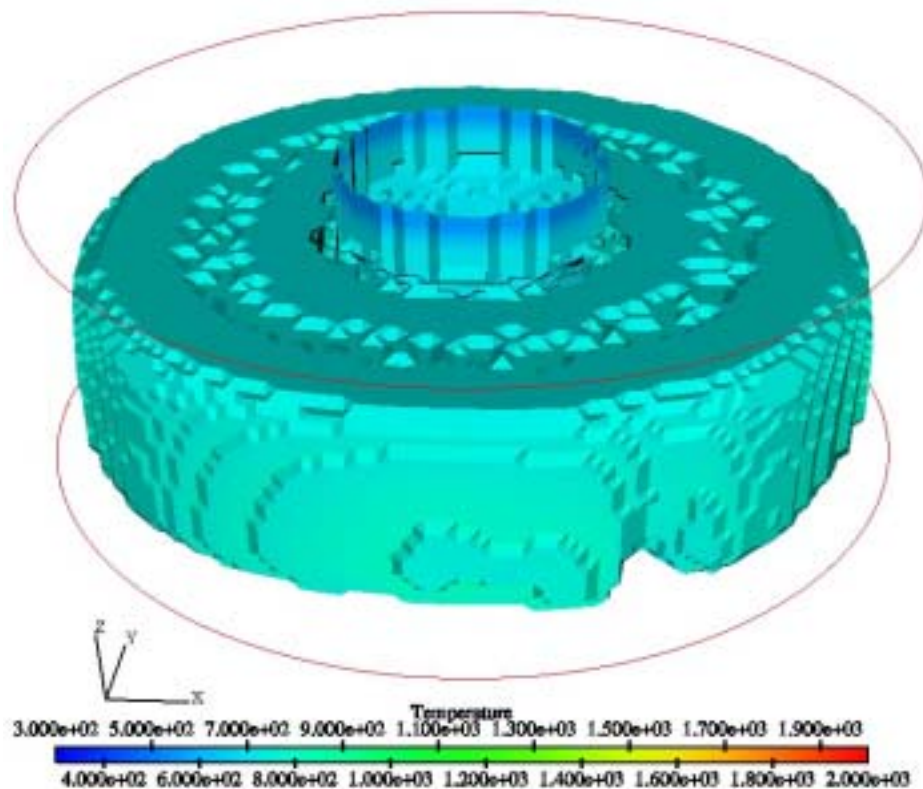


Figure III–52 : Iso-masse volumique à $2\,600\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ colorée par la température ($^{\circ}\text{C}$) pour le test 3

III - 2 - 7 - 4 - Test 4

Les calculs ont été menés jusqu'à convergence de tous les paramètres. Pour ce calcul, seul le flux thermique apporté sur l'ellipse est modifié : l'apport énergétique est maintenant de $1.10^7\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$.

Les résultats obtenus sont très proches du cas précédent. L'ensemble de la fritte de verre est fondue, et le champ de température similaire à celui du test 3 (cf. Figure III-53).

La seule différence notable entre ces deux tests est que l'on surchauffe plus encore la zone délimitée par les pieds d'arc anodique et cathodique. De plus, la colonne centrée sur l'axe du creuset est également portée à une température plus élevée (voisine de 1 700 °C).

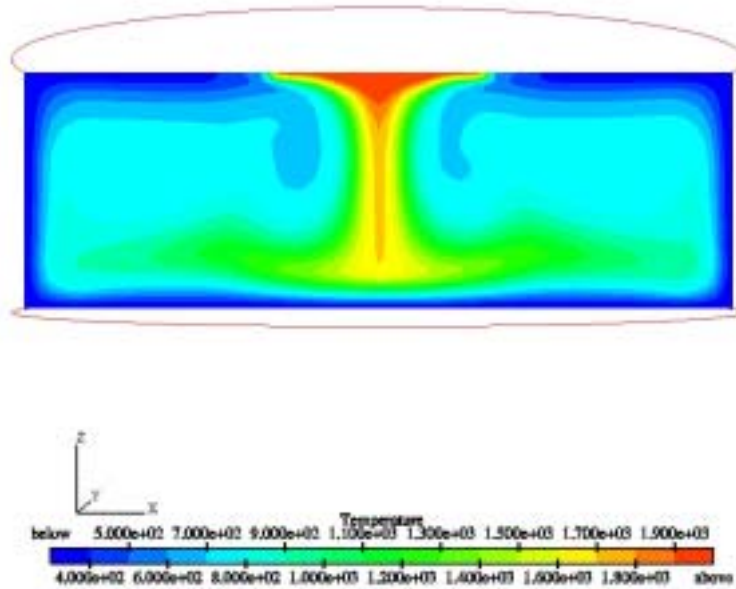


Figure III-53 : Champ de température (°C) dans le plan (X_m) pour le test 4

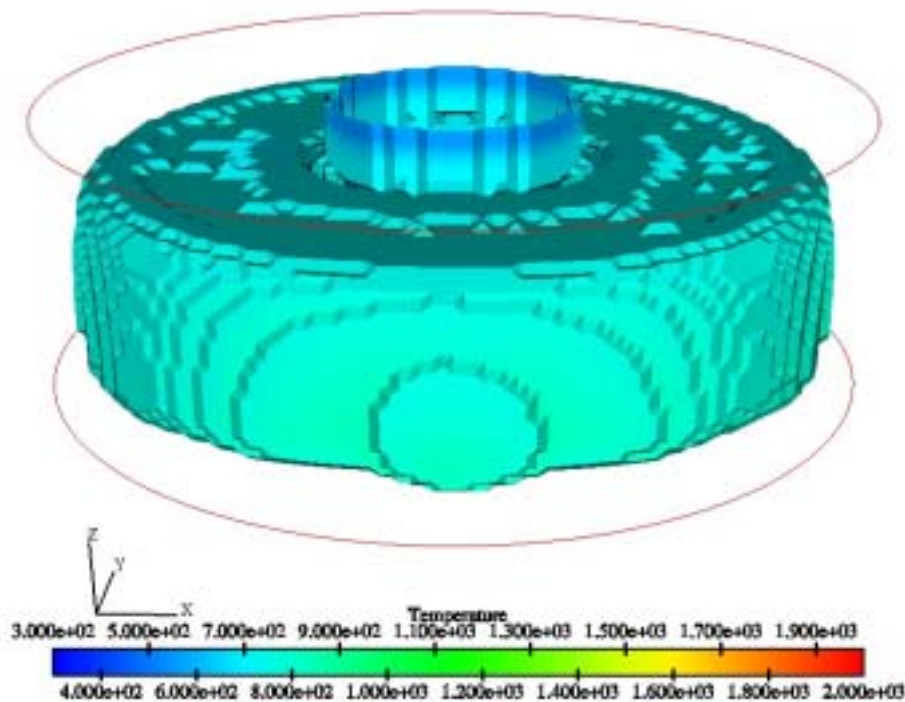


Figure III-54 : Iso-masse volumique à 2 600 kg.m⁻³ colorée par la température (°C) pour le test 4

A l'issue de la simulation, les flux aux parois solides du domaine de calcul sont déterminés par le logiciel. On obtient un flux de chaleur arrivant sur le verre (cumul des flux thermiques sur les pieds d'arc et sur la surface verre) d'environ 64 kW. Les flux de perte thermique sur le creuset sont évalués à environ 45 et 18 kW sur les parois du creuset et la sole respectivement. L'apport par effet est de 3,19 kW pour une tension imposée de 80 V soit une intensité de courant traversant le verre d'environ 40 A.

III - 2 - 8 - Conclusions

Les différents tests de sensibilité montrent une forte réactivité du code de calcul en fonction des différentes conditions aux limites que nous avons imposées. Ces calculs ont tous été menés jusqu'à convergence. Seul le flux thermique imposé sur l'ellipse varie d'un cas à un autre.

Concernant les champs de vitesse, tous les tests présentent le même type d'écoulement. Les valeurs sont toujours du même ordre de grandeur et on remarque les deux boucles de recirculation (en fait une seule boucle de forme torique et de sens inverse) quelque soit les conditions aux limites imposées sur la surface verre.

La distribution de la température dépend fortement de l'écoulement dans le domaine verre. Les résultats de simulation font apparaître une zone surchauffée en surface et au centre du creuset située à l'endroit où la vitesse est la plus forte.

On note également que plus le flux thermique en surface du bain de verre est important, plus le terme d'effet Joule est fort. Dans les deux derniers tests, l'apport d'énergie par chauffage ohmique représente environ 3 kW.

En conclusion, les conditions aux limites testées sur les cas 3 et 4 entraînent la fusion de toute la fritte de verre contenue dans le creuset, hormis sur l'épaisseur de l'autocreuset qui reste intègre (de l'ordre de quelques centimètres). La puissance totale injectée sur la surface du verre pour ces deux cas ne correspond pas à la puissance plasma disponible sur l'installation SHIVA. Pour fondre une telle quantité de verre, il faudrait installer un système plasma de plus de 200 kW.

La quantité de verre fondu (environ 1/3 du creuset) dans les cas 1 et 2 est cohérente avec des essais de fusion de verre obtenus à l'aide du plasma d'arc transféré – dont la puissance disponible sur l'installation est de l'ordre de 10 à 20 kW - donc, les résultats obtenus avec les données imposées pour ces cas semblent plus réalistes.

Partant de ce constat, pour fondre entièrement le bain de verre sans utiliser des torches à plasma de plusieurs centaines de kilowatts, l'installation d'un module d'aide à la fusion par induction sur SHIVA semble justifiée.

CONCLUSION GENERALE

Ce travail avait pour but la simulation des écoulements et des transferts thermiques dans le four d'incinération/vitrification de déchets radioactifs simulés SHIVA : un plasma d'arc électrique transféré entre deux électrodes jumelées bipolaires assure la combustion et la fusion de la matrice verrière alors qu'un chauffage par induction directe à travers une sole non sectorisée permet l'homogénéisation et la maîtrise de la température dans le bain de verre.

La crédibilité des résultats d'un tel modèle doit s'appuyer sur des résultats expérimentaux. Nous avons donc conduit des essais d'incinération/vitrification de déchets constitués de résines échangeuses d'ions additionnées de composés simulant des radioéléments. Ces essais nous ont permis de dresser les bilans matières et donc de déterminer avec précision les taux de partage des radioéléments simulés - Co, Cs, Ni, B, Li, Fe - mais aussi du soufre entre le verre et la phase vapeur entraînée dans le traitement des gaz. Nous avons ainsi pu prouver qu'il était possible d'obtenir un verre dépourvu d'inclusions macroscopiques alors que l'on incinère, dans la même enceinte et à la surface du verre, un déchet fortement chargé en carbone et en soufre. Nous avons aussi établi les bilans énergie et mesuré les transferts thermiques dans les différents composants du four : parois et sole du creuset, électrodes, voûte,... Nous avons aussi constaté qu'en l'absence de chauffage par induction, une fraction significative du verre n'était pas fondue même après une dizaine d'heures de fonctionnement. La mesure de température dans les jets de plasma anodique et cathodique nous a permis de délimiter une zone de l'arc où la température est de l'ordre de 8 à 10 000 K avec une zone au voisinage de la cathode où la température atteint 12 à 14 000 K. Un film enregistré avec une caméra ultra-rapide - 5000 images.s⁻¹ - nous a montré le comportement de l'arc lorsqu'il n'est pas couplé avec le bain de verre : les deux jets ne sont nullement des cylindres à symétrie axiale tels que l'on voudrait les voir. Enfin nous avons mis au point une méthode de mesure de la conductivité thermique de la fritte de verre utilisée : ainsi nous pourrions lors de la modélisation d'une part traiter le verre liquide différemment de la couche de verre non fondu constituant la paroi de l'auto-creuset, d'autre part simuler l'avancée du front de fusion.

Nous avons abordé la modélisation de l'ensemble des processus en adaptant le code de calcul ESTET ; nous avons découplé le domaine verre où les vitesses sont de l'ordre de quelques mm/s du domaine de l'arc où elles sont de plusieurs centaines de m.s⁻¹.

Concernant le domaine de l'arc les résultats de la modélisation sont conformes à ce que l'on observe, comme par exemple la forme complexe des deux jets de plasma, et à ce que l'on mesure, comme par exemple les valeurs des températures ; ils mettent aussi en évidence la diffusion de l'oxygène, introduit en périphérie, avec l'argon, injecté au niveau des électrodes et l'on dispose désormais des champs de vitesse dans cette zone du four.

Concernant le domaine du bain de verre, à l'heure actuelle, certains résultats, tels que les champs de température, ne semblent pas cohérents - la forme de certaines isothermes par exemple -. D'autres rendent effectivement compte des observations : la formation de l'autocreuset, ou encore les vitesses - elles sont de l'ordre de grandeur de celles mesurées par ailleurs-.

Que faudrait-il faire pour aller plus loin ?

Il faut coupler les domaines plasma et verre par les conditions aux limites obtenues sur les surfaces verre des deux domaines de calculs. En effet, dès que tous les paramètres calculés dans le domaine plasma ont atteint un état quasi-stationnaire, nous serons à même de déterminer un profil de température sur la surface "verre " de ce domaine. Ce profil de température sera alors utilisé en tant que condition à la limite sur la surface verre du domaine verre. Le couplage des deux domaines de calcul sera alors effectif et permettra de vérifier les interactions d'un domaine sur l'autre. Il faut également inclure la modélisation du chauffage du verre par induction directe haute fréquence, ensuite entreprendre la description lagrangienne de l'écoulement puisque l'objectif est in fine de prévoir l'histoire thermique d'une particule de déchet en fonction de son point d'introduction dans le four.

On peut estimer qu'alors les résultats d'une modélisation permettront d'orienter les essais et donc d'en diminuer le nombre.

D'ores et déjà, le modèle d'arc se révèle un outil efficace pour les développements technologiques futurs qu'il s'agisse de l'évolution des torches (géométrie, injection des gaz) ou qu'il s'agisse de leurs modes d'utilisation dans les procédés à venir. Couplé à un modèle de chimie, cet outil permettra la simulation de la réactivité chimique d'un déchet (vitesse d'oxydation, vitesse de digestion dans le verre fondu, ...).

Références bibliographiques

Certaines des références bibliographiques font appel à des rapports internes au CEA, quelquefois difficiles à obtenir. Toutefois, il est possible de prendre contact avec l'auteur pour obtenir un complément d'information.

ADACHI K., FURUKAWA S., AMAKAWA T., (2001), "Melting and solidification of surrogate TRU wastes by arc plasma", 15th International Symposium on Plasma Chemistry, Orléans, France, pp. 2021-2027.

ALEXIS J., RAMIREZ M., TRAPAGA G., JÖNSSON P., (2000), "Modeling of a DC electric arc furnace – Heat transfer from the arc", The Iron and Steel Institute of Japan, vol. 40, n° 11, pp. 1089-1097.

AMAKAWA T., ADACHI K., YASUI S., FURUKAWA S., (2001), "Research and development of radioactive solid waste treatment technology by thermal plasma heating in Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI)", International Workshop on Plasma Processing for Nuclear Application, Hanyang University, Séoul (Corée).

AURE A., MONCOUYOUX J.P., JOUAN A., (1989), "Etude théorique de la fracturation des blocs de verre", Note Technique CEA NT/SDHA/89.11.

BARCZA N.A., HUTTON C.J., FREEMAN M.J., SHAW F., (1993), "The treatment of metallurgical wastes using the enviroplas process", Processing for the treatment and minimization of wastes, Ed. Metals and Materials Society.

BARONNET J.M., ERSHOV-PAVLOV E.A., MEGY S., (1999), "Plasma parameters of an argon DC arc with graphite electrodes", J.Phys.D :Appl Phys, vol. 32 , pp. 2552-2559.

BARTHELEMY B., CERQUEIRA N., GIROLD C., VANDENSTEENDAM C., BARONNET J.M., (2001), "Modeling of oxygen plasma postcombustion of pyrolysis gases", Progress in Plasma Processing of Materials, Ed. FAUCHAIS P.

BAUDRY C, DELALONDRE C., MARIAUX G., MEILLOT E., VARDELLE A., (2003), "Modélisation de la génération du plasma dans une torche à plasma d'arc à courant continu", Journées de fluctuations des arc, Clermont Ferrand.

BONNIAUD R., ALEXANDRE D., (1986), "Le Traitement et le Conditionnement des Déchets de Haute Activité", dans "Les déchets nucléaires", Ed. Jean LEFEVRE, collection CEA, Eyrolles.

BOUSRIH S., (1995), Thèse de doctorat, "Diagnostic spectroscopique de plasmas à symétrie plane", Université de Limoges.

BRUCE K.R., LEE J., FREED D., HEREDY L., (1998), "Evaluation of plasma – based thermal treatment system for destruction of difficult to remediate waste", International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, Salt Lake City, USA, pp. 559-564.

CAPITELLI M., FICOCELLI V., MOLINARY E., (1970), "Equilibrium compositions and thermodynamic properties of mixed plasmas", vol. 2, Adriatica Editrice, Bari.

CERQUEIRA N., (2002), Thèse de doctorat, "Fusion de résidus minéraux par arc électrique : comportement des métaux lourds", Université de Limoges.

CERQUEIRA N., VANDENSTEENDAN C., BARONNET J.M., GIROLD C., (2002), "Heavy metals volatility during thermal plasma vitrification of mineral waste", International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, New Orleans, USA.

CHATEAUVIEUX H., GUIBERTEAU P., LONGUET T., LANNAUD J., LORICH M., (1998), "The VALDUC waste incineration facility starts active operations (IRIS process)", International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, Salt Lake City, USA.

CHOUDHARY M.K., (1985), "Three-dimensional mathematical model for flow and heat transfer in electric glass furnaces", Journal of Heat Transfert, vol. 6, n°4 , pp 55-65.

CHOUDHARY M.K., (1997), "Mathematical modelling of flow and heat transfer phenomena in electric glass in electric glass melting furnaces", Symposium on Materials Processing, Julian Szekely Memorial, pp 341-364.

CIRCEO L.J., CAMACHO S.L., JACOBS G.K., TIXIER J.S., (1994), "PRISM – Plasma Remediation of In Situ Materials and its potential for the remediation of Chernobyl consequences", 33th Hanford Symposium on Health and The Environmental Symposium on in-situ remediation, Richland, USA, pp. 1124-1128.

CURIEN H. (1997), "Les déchets nucléaires : un dossier scientifique", Société Française de Physique, Ed TURLAY R., les éditions de physique.

DEGIOVANNI A., (2000), "Conductivité et diffusivité thermique des solides", vol. R2 850, Techniques de l'Ingénieur.

DEGIOVANNI A., (2000), "Transmission de l'énergie thermique", vol. BE 8 200, Techniques de l'Ingénieur.

DELALONDRE C., (1990), Thèse de doctorat, "Modélisation aérothermodynamique d'arcs électriques à forte intensité avec prise en compte du déséquilibre thermodynamique local et du transfert thermique à la cathode", Université de Rouen.

DELALONDRE C., MECHITOUA N., TRENTY L., GLEIZES A., (1997), "Modélisation des transferts radiatifs dans les arcs", Rapport EDF HE-44/97.006

DELALONDRE C., SIMONIN O., (1992), "Numerical modelling of high intensity arcs including a flow turbulence model", rapport EDF HE-44/92.18.

DELALONDRE C., ZAHRAI S., SIMONIN O., (1994), "Turbulence modelling in electric arc", rapport EDF HE-44/94/020A.

DELORME L., (1998), Thèse de doctorat, "Mécanismes de volatilités des verres et des fontes borosilicatés d'intérêt nucléaire. Influence de la structure", Université d'Orléans.

DEME I., (2002), Thèse de doctorat, "Contribution à la modélisation de l'écoulement dans un réacteur plasma pour la fabrication de noirs de carbone. Influence du rayonnement des particules de carbone", Ecole des Mines.

DEVOTO R.S., (1973), "Transport coefficient of ionized argon", Physics of fluids, vol. 16.

DOUCE A., (1999), Thèse de doctorat, "Modélisation 3D du chauffage d'un bain métallique par plasma d'arc transféré. Application à un réacteur axisymétrique", Ecole Centrale de Paris.

DMITRIEV S.A., LIFANOV F.A., STEFANOVSKY S.V., SAVKIN A.E., KNYAZEV I.A., POLKANOV M.A., LASHTCHENOVA T.N., GOLOBOKOV S.M., (1997), "High temperature treatment of solid low-level waste using shaft furnace-based plant with plasma-fuel burners", Waste Management 97, TUCSON, USA.

DRAWIN H.W., (1970), High pressures high temperatures, vol. 2.

DUSSOUBS B., (1998), Thèse de doctorat, "Modélisation tridimensionnelle du procédé de projection plasma : influence des conditions d'injection de la poudre et des paramètres de projection sur le traitement et la répartition des particules dans l'écoulement", Université de Limoges.

ERSHOV-PAVLOV E.A., STEPANOV K.L., (2001), "Temperature measurements using line intensity in emission spectra of fluctuating plasmas", 15th International Symposium on Plasma Chemistry, Orléans, France, pp. 1057-1062.

FARNAN I., GRANDINETTI P.J., BALTISBERGER J.H., STEBBINS J.F., WERNER U., EASTAMAN M.A., PINES A., (1992), "Quantification of the disorder in network modified silicate glasses", Nature, vol. 358, pp 31-35.

FAUCHAIS P., BOULOS M.I., PFENDER E., (1994), "Thermal Plasmas, Fundamentals and Applications", Thermal Plasmas, vol. 1, Ed. Plenum publishing corporation.

FRETON P., (2002), Thèse de doctorat, "Etude d'un arc de découpe par plasma d'oxygène. Modélisation - expérience", Université Paul Sabatier, Toulouse.

FRUGIER P., GIROLD C., MEGY S., VANDENSTEENDAM C., and BARONNET J.M., (1996), "Use of optical spectroscopy as tool to improve fly-ashes plasma vitrification", 4th Symposium on Thermal Plasma and Plasma Processes, Athènes, Italie.

FULCHERI L., FLAMANT G., VARIOT B., RAVARY B., BADIE J.M., (1995) "Characterisation of a 3 Phase AC plasma reactor for carbon black synthesis from natural gas", 12th International Symposium on Plasma Chemistry, Minnesota, USA, pp. 1159-1164.

GATT J.M., BUFFE L., COGNET G., BOUVIER A., KASSABJI F., (1993), "Modelling of plasma transferred arc rotary furnace for highly refractory oxide melting", 13th International Symposium on Plasma Chemistry, Beijing, Chine, pp. 302-307.

GIROLD C., (1997), Thèse de doctorat, "Incineration/Vitrification de déchets radioactifs et combustion de gaz de pyrolyse en plasma d'arc", Université de Limoges.

GONZALEZ J.J., (1992), Thèse de doctorat, "Modélisation d'un arc transféré de forte puissance (1MW)", Université Paul Sabatier, Toulouse.

GONZALES M., (1999), Thèse de doctorat, "Simulation tridimensionnelle de l'interaction entre un arc électrique et un écoulement environnant", Université Paul Sabatier, Toulouse.

GUIHARD B., (2002), "Industrial and environmental applications of non transferred plasma", International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, New Orleans, USA.

HIRABAYASHI T., KANAZAWA K., FUJIKI K., YAMATE K., IKENOYA H., (1998), "Application of Plasma – Induction – Hybrid melter to the research on volume reduction and stabilization of low level radioactive solid waste", International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, Salt Lake City, USA, pp. 261-264.

HUANG P.C., PFENDER E., (1991), "Study of a transferred – arc plasma reactor with a converging wall and flow through a Hollow cathode", Plasma Chemistry and Plasma Processing, vol. 11, n° 1, pp.129-150.

HUBERT P., (1993), "Exposition de la population française aux radiations naturelles", IV^{ème} Conférence Internationale de l'Acomen, Editions Acomen, France.

JACQUET - FRANCILLON N., (1997), "Les verres dans les stockages", rapport CEA.

JOUAN A., (2001), "La vitrification des déchets, une contribution au respect de notre Terre", Verre, vol. 7.

JOUAN A., CARTIER R., LANNAUD J., GUIBERTEAU P., DUREC J.P., FLAMENT T., (1995), "Alpha waste management at the VALDUC research center", International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel cycle Systems, Versailles, France.

KADDANI A., (1995), Thèse de Doctorat, "Modélisation 2D et 3D des arcs électriques dans l'argon à la pression atmosphérique avec la prise en compte du couplage thermique et électrique arc - électrodes et de l'influence des vapeurs métalliques", Université d'Orsay.

KADDANI A., ZAHRAI S., DELALONDRE C., SIMONIN O., (1995), "3D Modelling of Unsteady High Pressure Arcs in Argon", J.Phys.D :Appl Phys, vol. 28 , pp 1-12.

KIM T.W., PARK J.K., PARK S.C., MAENG S.J., SHIN S.W., (2001), "Non – combustible radioactive waste vitrification with plasma torch melter in Korea", International Workshop on Plasma Processing for Nuclear Applications, Hanyang University, Séoul, Corée.

LANGOWSKI M.H., (1996), "The incorporation of P, S, Cr, F, Cl, I, Mn, Ti, U and Bi into simulated nuclear waste glasses", Litterature Study/PNNL 10980/UC-512, Project. Technical Information.

MAECKER H., (1955), "Plasma streams produced by self magnetic compression and its importance for mechanism of high current arcs", Applied Sciences Research, section B, vol. 5.

MARQUE Y., (1992), "l'ANDRA et la gestion de déchets radioactifs", rapport ANDRA.

MASON E.A., SAXENA S.C., (1958), "Approximate Formula for the Thermal Conductivity of Gas Mixtures", The physics of Fluids, vol. 1, pp 361-369.

MATTEI J.D., SIMONIN O., (1996), "Logiciel ESTET- Manuel théorique-Tome I: Modélisations physiques", rapport EDF HE-44/96/025/A.

MEGY S., (1994), Thèse de doctorat, "Diagnostic spectroscopique de plasmas d'arc transférés", Université de Limoges.

MEUNIER J., LAFLAMME C.B., DUCHESNE A., (1996), "DROSCAR, pilot plant recovery of aluminium dross", 13th Congress on Electricity Applications, pp. 11-19.

MITCHNER M., KRUGER C.H., (1973), "Partially ionized gases", Willey interscience publication.

MONCOUYOUX J.P., JOUAN A., BOEN R., CARTIER R., VINCENT J.J., LONGUET T., (1995), " Incineration processes for radioactive waste with high alpha contamination : new developments", International Incineration Conference, Bellevue USA.

PINET O., (2000), "Synthèse sur les phénomènes d'oxydo-réduction dans les verres", Note Technique CEA NT/SCD/99.26.

RAVARY B., (1999), Thèse de doctorat, "Modélisation thermique et hydrodynamique d'un réacteur plasma triphasé. Contribution à la mise au point d'un procédé industriel pour la fabrication de noir de carbone.", Ecole des Mines de Paris.

SANON A., BARONNET J.M., (1991), "Modélisation des propriétés thermodynamiques et des coefficients de transport des plasmas thermiques - code de calcul ALEX-", Les plasmas dans l'industrie, collection ELECTRA, DOPEE.

SCHOLZE H., (1980), "Le verre : Nature, structure et propriétés", Institut du verre Paris, Deuxième édition.

SCHREIBER H.D., KOZAK S.J., LEONHARD P.G., Mc MANUS K.K., (1987), "Sulfur chemistry in a borosilicate melt", Glasstech. Ber., vol. 60.

SILVE J.M., (1996), Thèse de doctorat, "Etude de la fusion et de la vitrification de déchets nucléaires par microondes", Université Henry Poincaré, Nancy 1.

SPRINGER M.D., BARKLEY T., CASTELLON O., FORSBERG B., STUTTS G., (1995), "A thermal destruction and recovery process for medical waste powered by a thermal plasma arc torch", International Symposium on Environmental Technologies, Atlanta, USA, pp. 671-682.

TAUPIAC J.P., (1993), Thèse de doctorat, "Incinération de déchets nucléaires en plasma d'arc", Université de Limoges.

TZENG C.C., HUNG T.M., (2001), "The status and prospects of development of thermal plasma processes for the treatment of hazardous wastes in INER", International Workshop on Plasma Processing for Nuclear Application, Hanyang University, Séoul, Corée, pp. 44-57.

VACQUIE S. (2000), "L'arc électrique", Sciences et Techniques de l'Ingénieur, éditions CNRS et Eyrolles.

VINCENT J.J., PINET O., et GRANDJEAN A., (2000), "Synthèse bibliographique sur les matrices vitreuses pour le conditionnement de déchets radioactifs contenant des sulfates", Note Technique CEA NT/SCD/2000.19.

WENGER J.P., VANBRABANT R., DECKERS J., CROUCH J., SHUEY M., WEISS J., (2002), "Radwaste treatment system using thermal plasma", International Conference on Incineration and Thermal Treatment Technologies, New Orleans, USA.

WILKE C.R., (1950), "A viscosity equation for gas Mixtures", Journal of Chemical Physics, vol.18, pp 517-519.

YAMAZAKI K., KARIGOME S., AKAGAWA Y., DOUGAKI Y., NAKAYAMA Y., OBARA K., TSUCHIYA A., TSUJI Y., (1997), "Plasma arc melting treatment process of low level dry active waste", Waste Management 97, Tucson, USA.

ZAHRA A.M. et MATHIEU J.C., (1989), "Thermodynamique des processus irréversibles", vol. AF4, Technique de l'ingénieur.

ZAHRAI S., DELALONDRE C., SIMONIN O., ANDERSSON D., (1992), "Three dimensional simulations of transient high intensity electric arcs", rapport EDF HE44/93.17.