

# **Modélisation de la vitrification de déchets de haute activité en creuset froid en alimentation liquide**

**Directeur de thèse** : Sophie SCHULLER (CEA DES DE2D)

**Encadrant** : Emilien SAUVAGE (CEA DES LDPV)

**Mots clés** : Vitrification, Modélisation, Thermique, Alimentation liquide

**Mode de financement** : CTCI – Orano-EDF

**Collaboration** :

1. R. Pokorny, University of Chemistry and Technology, Prague, Czechia
2. R. Podor, Institut de Chimie séparative de Marcoule

## **Sujet**

La vitrification des déchets nucléaires issus du retraitement des combustibles usés est réalisée, en partie, dans un four dit creuset froid inductif à 1200°C. Les déchets initialement sous forme liquide sont introduits dans le four après une étape de séchage et calcination. Des réactions chimiques multiples ont lieu dans les fours de vitrification lors de la transformation de la matière alimentée (fritte et calcinat) en verre.

Les travaux de cette thèse s'inscrivent dans des études visant à alimenter les déchets dans le four directement sous forme liquide. Les avantages de la suppression de l'étape de calcination sont (i) un gain de place dans la cellule, (ii) une simplification du pilotage du procédé et (iii) l'optimisation du taux d'incorporation du déchet.

L'objectif de la thèse est de développer un modèle simulant le mélange entre le verre en fusion et le déchet liquide en surface du point de vue de la mécanique des fluides, thermique et génie des procédés.

Dans un premier temps, il s'agira de développer une modélisation de la transformation de la matière alimentée sous forme liquide en verre en adaptant une approche déjà développée par des équipes de recherches américaines [1-2] pour des fours céramiques. Elle consiste à réaliser des mesures d'analyse thermique différentielle et gravimétrique (ATG-ATD) d'un mélange de fritte et de calcinat et de les identifier comme étant l'image d'un degré de conversion d'une ou plusieurs réactions chimiques. Ces réactions sont régies par une loi cinétique puissance thermiquement activée. Les paramètres de la loi puissance sont identifiés grâce aux données expérimentales acquises pour plusieurs vitesses de rampes de montée en température et différentes compositions. Cette équation de cinétique réactionnelle peut être généralisée en ajoutant les phénomènes d'advection, de diffusion et de couplage avec la thermique (endothermicité ou exothermicité).

Dans un second temps, cette modélisation sera intégrée aux simulations magnéto-thermo-hydrauliques des procédés déjà développées au laboratoire [3]. Ces simulations sont réalisées avec des outils CFD (Ansys Fluent ou OpenFoam) et un logiciel spécialisé en induction (Flux). Les modèles développés dans le travail de thèse seront implémentés et résolus dans les outils de CFD. Des simulations seront menées pour étudier le comportement de la couche réactionnelle en cours d'élaboration du verre et son impact sur la thermique du four. Ce sera un outil précieux pour

comprendre comment et où s'opère la transformation des précurseurs en verre élaboré. La capacité des fours pourra aussi être obtenue par simulation ce qui représente un fort intérêt industriel.

Des comparaisons entre simulations et expériences sur prototype à l'échelle 1:1 en inactif seront réalisées. Des essais de détermination de temps de séjour et courbe de percée ont déjà été obtenus sur les prototypes par l'injection d'un traceur élémentaire et isotopique. D'autres essais pourront être prévus pour explorer d'autres gammes de fonctionnement des procédés.

L'identification des différentes réactions mises en évidence par les mesures ATD-ATG sera réalisée à l'aide des travaux du laboratoire de caractérisation des verres (LDMC).

[1]- Chun, J.; Pierce, D. A.; Pokorny, R. & Hirma, P.; Cold-cap reactions in vitrification of nuclear waste glass: Experiments and modeling; *Thermochimica Acta* , 2013, 559, 32 - 39

[2]- Pokorny, R.; Pierce, D. A. & Hirma, P.; Melting of glass batch: Model for multiple overlapping gas-evolving reactions ;*Thermochimica Acta* , 2012, 541, 8 - 14

[3]- Barba Rossa, Thèse de doctorat, Modélisation multiphysique de l'élaboration de verre en creuset froid, 2018

### **Environnement de travail**

La thèse s'effectuera au sein du Laboratoire de Développement des Procédés de Vitrification (ISEC/DES/DED/SEVT/LDPV) localisée sur le site de Marcoule. Ce laboratoire regroupe des compétences sur les aspects du génie des procédés industriels. Les orientations du travail de thèse seront réalisées conjointement avec le laboratoire d'étude et Développement des Matrices de Conditionnement (ISEC/DES/DED/SEVT/LDMC) qui possède les compétences sur les aspects formulation et caractérisation des verres.

Une collaboration scientifique avec les équipes américaines du Pacific Northwest National Laboratory travaillant sur le sujet est déjà en cours. L'ensemble des expériences sera conduit dans une installation industrielle ICPE sur des matières simulées non radioactives.

Le début effectif de la thèse au CEA est prévu au mois septembre 2021. Le profil requis est celui d'un Mastère 2 ou d'une dernière année d'école d'ingénieur issu d'un cursus de génie des procédés / simulation.

**Titre anglais :** Modelisation of a liquid fed cold crucible inductive melter during HLLW vitrification

### **Résumé en anglais :**

The vitrification of high level liquid waste (HLLW) resulting from the reprocessing of spent fuel is carried out, in part, in a furnace known as an inductive cold crucible melter at 1200 ° C. The waste initially in liquid form is introduced into the oven after a drying and calcination step.

The work of this thesis is part of studies aiming to feed the waste in the furnace directly in liquid form. The objective is to be able to simulate the mixture between molten glass and liquid waste at the surface from the point of view of fluid mechanics, thermal and chemical engineering.

Initially, it will be a question of developing a modeling of the transformation of the material fed in liquid form into glass by adapting an approach already developed by American research teams [1-2] for ceramic furnaces.

This modeling will be integrated into the magneto-thermo-hydraulic simulations of the processes already developed in the laboratory [3]. Comparisons between simulations and prototype experiments at a 1: 1 scale inactive, as well as discussions with American research teams are planned.

1- Chun, J .; Pierce, D. A .; Pokorny, R. & Hrma, P .; Cold-cap reactions in vitrification of nuclear waste glass: Experiments and modeling; *Thermochimica Acta*, 2013, 559, 32 - 39

2- Pokorny, R .; Pierce, D. A. & Hrma, P .; Melting of glass batch: Model for multiple overlapping gas-evolving reactions; *Thermochimica Acta*, 2012, 541, 8 - 14

3- Barba Rossa, PhD thesis, Multiphysics modeling of cold crucible glass production, 2018