

## Boucle en convection forcée pour l'étude du nettoyage en ligne de caloporteurs de type sel fondu

Véronique Ghetta<sup>a</sup>, Daniel Heuer<sup>a</sup>, Elsa Merle Lucotte<sup>a</sup>, Xavier Doligez<sup>a</sup>

<sup>a</sup> LPSC/CNRS, 53 rue des Martyrs 38026 Grenoble Cedex,  
[ghetta@lpsc.in2p3.fr](mailto:ghetta@lpsc.in2p3.fr), [heuer@lpsc.in2p3.fr](mailto:heuer@lpsc.in2p3.fr), [merle@lpsc.in2p3.fr](mailto:merle@lpsc.in2p3.fr)

---

### RESUME :

La construction d'une boucle de sels fluorés circulant en convection forcée est entreprise au LPSC. La création de cette installation se situe dans le cadre des études portant sur les réacteurs nucléaires à sels fondus (Génération IV), mais les aspects scientifiques et techniques abordés correspondent à un cadre plus général lié au nettoyage par bullage de liquides circulant en conduites forcées et à température élevée. L'exposé présente le contexte particulier du fonctionnement en milieu fluorure, le cahier des charges établi pour la construction de la boucle, les principales difficultés rencontrées tant du point de vue « matériau » que de celui des dispositifs associés aux différentes mesures. L'ensemble du projet est articulé sur la nécessité de mettre au point un outil à la fois de mesure expérimentale et de validation pour les développements ultérieurs de simulation hydrodynamique en milieu polyphasé (sels liquides, bulles et particules) et les études de corrosion.

**MOTS-CLES** : fluorure, bullage, boucle, extraction

---

### I- Introduction

Les sels fondus sont des milieux liquides très intéressants scientifiquement parlant. Leurs propriétés extrêmement variées permettent une grande diversité d'application. Malgré leur fort potentiel d'innovation [1], ils ont souffert d'un désintérêt quasi généralisé lié essentiellement à leur difficulté de mise en œuvre par rapport à d'autres milieux. Pourtant leur manipulation n'est pas si éloignée que celle des métaux liquides et le regain d'intérêt pour les caloporteurs utilisables à haute température peut remettre leur étude d'actualité. La construction d'une boucle à sel fondu fonctionnant en convection forcée est à l'heure actuelle un véritable challenge du fait de l'absence d'un milieu technique et industriel fort soutenant cette activité. Nous expliquons la raison de cette démarche et les choix qui ont déterminé les principales caractéristiques de la boucle. Ils sont à la fois liés à l'objectif scientifique visé (étude du nettoyage du sel en circulation) et complètement guidés par des considérations de compatibilité de matériaux ou de disponibilité de composant.

Le présent document n'a pas pour but de détailler des points précis, mais de donner une vision d'ensemble de la démarche et de sa logique. Certains des dispositifs formant la boucle sont à la fois des éléments de construction et des objets d'étude. Ils feront l'objet de publications ultérieures. Pour appuyer notre discours, nous illustrons en dernière partie quelques « problèmes matériaux » à résoudre ou à contourner.

### II- Contexte

Le concept de réacteur nucléaire à sel fondu (RSF) a été imaginé au début des années 1950 à l'Oak Ridge National Laboratory (ORNL) avec un tout premier réacteur qui était issu d'un programme militaire sur la propulsion des avions, l'Aircraft Reactor Experiment (ARE) [2]. Les études américaines se sont poursuivies jusqu'au début des années 1970 avec un réacteur expérimental, le MSRE [3] de 8 MWth. Dans ce réacteur, le sel de base était un mélange de fluorures de lithium, de béryllium et de zirconium dans lequel pouvaient être ajoutés des fluorures d'éléments fissiles, uranium ou plutonium. Le MSRE a ainsi pu fonctionner avec de l'uranium enrichi à 30% de 1965 à 1968, puis avec de l'uranium 233 de 1968 à 1969 et, enfin, avec du plutonium en 1969. Ces études se sont définitivement arrêtées en 1976, après la conception « papier » d'un réacteur surgénérateur de puissance fonctionnant avec du thorium : le Molten Salt Breeder Reactor (MSBR) [4,5]. Le fonctionnement du réacteur était associé à une unité de retraitement complexe destinée à effectuer un retraitement continu des produits de fission formés dans le sel, qui handicapait fortement le concept et a contribué à motiver l'arrêt des études sur ce système.

Malgré tout, la caractéristique fondamentale des RSF qui réside dans l'utilisation d'un combustible, non plus sous forme solide comme dans tous les autres concepts de réacteurs nucléaires, mais liquide, est restée très séduisante. En effet, les possibilités de manipulation et de régénération de combustibles liquides sont bien plus souples. Notamment, ils ne demandent pas de mise en forme particulière et peuvent être ponctionnés et injectés sans arrêt du réacteur. De plus, le combustible liquide regroupe à lui seul deux fonctions qui sont séparées dans le cas de réacteurs à combustibles solides : la fonction support des éléments de « combustible » (par exemple les pastilles d'oxyde d'uranium) et la fonction de « caloporteur » qui permet de transporter l'énergie produite. Dans le cas des REP, par exemple, cette fonction de transfert de l'énergie émise se fait par une chaîne de matériaux (au sens large) : gaz de confinement des pastilles, paroi des gaines de Zircaloy puis caloporteur primaire eau. Cette séparation des fonctions introduit la possibilité de perdre la phase assurant l'évacuation de la chaleur tout en conservant la même quantité de combustible et par contre coup un risque de fusion du cœur non maîtrisable. Les risques liés à cet effet dit de « vidange » autour desquels s'organise l'ensemble de la sécurité et du pilotage des réacteurs plus traditionnels disparaissent dans le cas d'un concept à sel fondu, qui présente dès le niveau de base du concept, un mode de sécurité intrinsèque intéressant. C'est pourquoi depuis 1997 le CNRS a entrepris de reprendre les études de ce type de réacteur pour tirer le meilleur profit possible des qualités intrinsèques des combustibles fluorés liquides : les possibilités d'ajustement en continu de la composition du sel combustible, les capacités d'obtention de très hautes températures et de très fortes densités de puissance sans pression interne importante.

C'est dans ce cadre que le groupe de physique des réacteurs du LPSC a mené des études pour réévaluer l'ancien concept du MSBR [6,7,8,9]. Ces travaux ont permis de faire émerger un concept de réacteur à sel fondu assez différent, renommé maintenant MSFR (Molten Salt Fast Reactor) et sélectionné par le Forum International Generation IV [10,11]. C'est un concept de réacteur surrégénérateur à spectre neutronique rapide, qui présente une très bonne stabilité intrinsèque de fonctionnement et un mode de retraitement simplifié acceptable d'un point de vue économique. Il se place dans le contexte d'une filière d'utilisation du thorium qui est un élément fertile abondant dans la nature, en association avec des éléments fissiles naturels ( $^{235}\text{U}$ ) ou non ( $^{233}\text{U}$ ) ou encore qui proviennent de la chaîne de gestion des éléments radioactifs à vie longue des réacteurs actuels (Np, Pu, Am, ...).

Pris sous l'aspect du développement industriel, la très grande originalité de ce réacteur, représente plutôt un handicap lié à la fois à la nature peu familière du milieu liquide fluoré mis en oeuvre et à son mode de fonctionnement éloigné des systèmes reconnus actuellement. Les recherches effectuées en France à ce sujet reposent sur des équipes du milieu de la recherche académique, qui s'attachent à détecter et à lever les différents verrous du concept.

La construction d'une boucle de sel fondu fonctionnant en convection forcée (projet FFFER – Forced Fluoride Flow for Experimental Research) correspond à la nécessité de disposer d'un outil expérimental modulable. Celui-ci répond à deux besoins particuliers. Il permet, d'une part, de se familiariser avec les difficultés liées à la mise en oeuvre des sels fondus en conditions dynamiques, et a été dimensionné, d'autre part comme moyen d'étude du nettoyage des sels en circulation par injection de gaz neutres.

### III – Description du problème du nettoyage

Dans le MSFR [12-20], le sel combustible est composé de fluorure de lithium enrichi en  $^7\text{Li}$  (99.995%) et de noyaux lourds, initialement du thorium et un élément fissile ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  ou Pu). La proportion de noyaux lourds dans le sel primaire est un des paramètres principaux modifiant le comportement du réacteur. Une composition molaire représentative typique est, par exemple :  $\text{LiF}(77,5\%) - \text{XF}_4(22,5\%)$  où X représente des noyaux lourds (Th, U, ...).

La température d'utilisation est supérieure à  $650^\circ\text{C}$ . La température de fusion réelle est plus basse, mais une marge suffisante doit être conservée pour maintenir, dans tous les cas, une bonne solubilité de tous les éléments constituant le mélange dont la proportion va varier au fil du temps ou du mode de fonctionnement. (20). Les températures maximales envisageables ne dépendent pas du sel mais uniquement des performances des matériaux constituant la structure et des techniques/design utilisées.

La partie centrale, où ont lieu les réactions de fission, est un simple canal cylindrique avec un rapport hauteur/diamètre qui peut être compris entre 1 et 2, et où le sel circule de bas en haut. Environ la moitié du sel combustible est localisée sous flux dans la partie centrale, et le complément circule hors flux de neutrons dans un circuit le plus court possible constitué de tuyauteries, de pompes et d'échangeurs de chaleur.

L'allure que pourrait avoir ce cœur « liquide » et la circulation du combustible sont représentées très schématiquement en figure 1. Le liquide de la partie centrale recircule selon des boucles courtes comportant chacune une pompe et un échangeur thermiques servant à évacuer la chaleur vers un circuit primaire. Les structures externes du canal central et les échangeurs de chaleur sont protégés des radiations par les réflecteurs non représentés en figure 1, conçus pour absorber plus de 80% des fuites de neutrons.

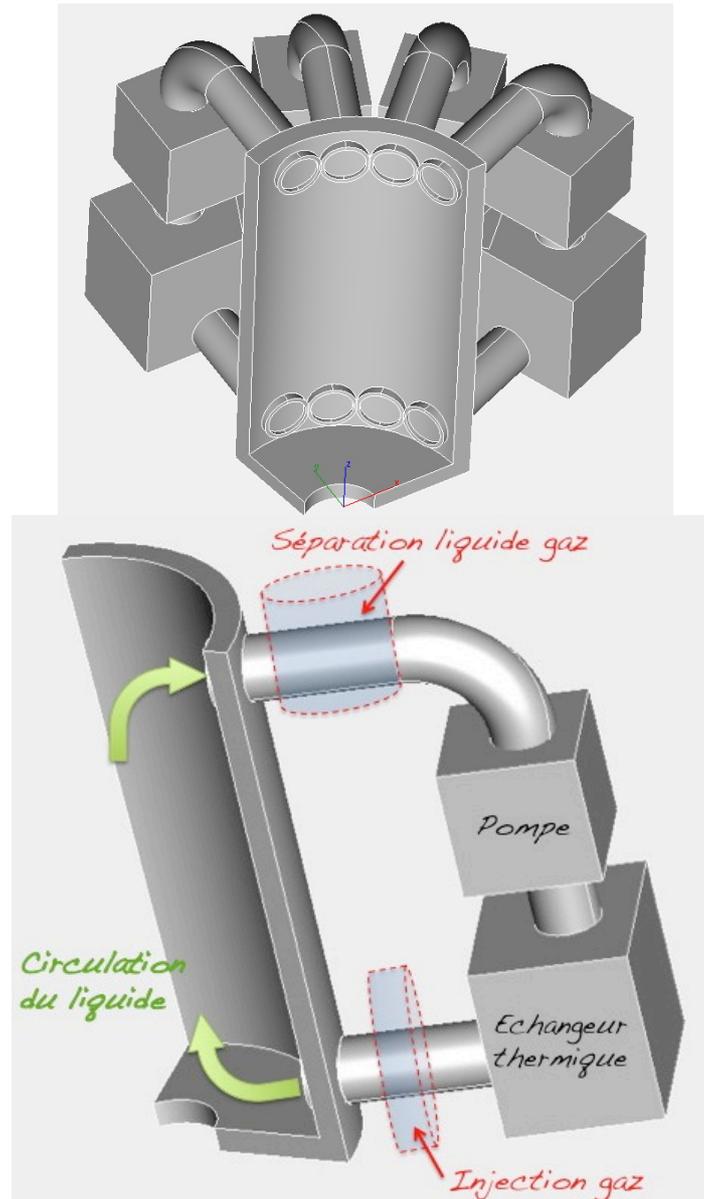


Figure 1 : Schéma de principe de la partie centrale du cœur d'un MSFR et circulation du combustible.

Les réactions de désintégration qui se produisent dans le sel combustible, entraînent l'apparition à l'échelle atomique de produits de fission qui sont soit des éléments stables, soit des éléments radioactifs qui possèdent des durées de vie diverses.

Au fil du temps, les produits formés vont s'accumuler, rester en partie dissous dans le fluorure mais aussi former des gaz ou des particules condensées (solides ou liquides), se coller aux parois, etc. De même, la circulation du sel à haute température va créer des phénomènes de corrosion/abrasion des matériaux de structure conduisant aussi à l'apparition de particules. Pour maîtriser sur du long terme le fonctionnement et la sécurité du réacteur, un système de nettoyage du sel est nécessaire. Il est bâti sur l'introduction de deux procédures, que l'on peut présenter brièvement de la manière suivante :

- une procédure de retraitement "pyrochimique", en mode discontinu effectuée sur une faible quantité de sel à chaque fois, permettant un retraitement global du sel du réacteur (environ 18 m<sup>3</sup> réparti sur 5 années). Ce retraitement a pour but d'extraire certains produits de fission solubles dans les fluorures pour maintenir la surrégénération et vise un fonctionnement à très long terme (60-80 ans).

- une procédure de traitement en mode continu du sel combustible pour extraire les particules solides et les gaz visant essentiellement à préserver les circuits et des échangeurs thermiques mais qui contribue aussi à simplifier le traitement pyrochimique du sel. L'apparition à long terme de certains éléments qui s'avèrent gênants pour la partie retraitement chimique du sel (Rb, Sr, Cs, Ba...) est réduite par la suppression de leurs précurseurs dans les premières étapes des chaînes de désintégration.

C'est à l'étude du procédé de traitement en mode continu du sel combustible que se rattache le projet FFFER. Dans la conception d'un cœur de réacteur à sel fondu, le volume de liquide est un paramètre qui est intrinsèquement lié au comportement neutronique du système, on ne peut pas le faire évoluer pour introduire des techniques de nettoyage qui demanderaient l'utilisation d'un volume supplémentaire (ou un ralentissement de la circulation). Cette contrainte élimine d'office tous les traitements en cuve annexe. Le seul procédé répondant aux critères est le bullage en ligne. Cette technique consiste à injecter dans le sel, circulant en conduite, des bulles qui vont, durant leur séjour dans le liquide, absorber une partie des gaz de fission dissous et capturer en grande partie les particules rencontrées. L'efficacité de ce mode de nettoyage est directement liée à la répartition des pièges constitués par les bulles. A volume de sel égal elle sera d'autant meilleure que la distribution sera fine. L'utilisation de bulles de petite taille augmente le rapport surface/volume et donc favorise les échanges aux interfaces et permet aussi une meilleure homogénéisation. Une fois les gaz de fission ou les particules solides capturés, il faut procéder à leur transport puis à leur extraction de la circulation. Le problème est complexe. En particulier, bien que des calculs neutroniques permettent d'évaluer le taux d'apparition de chaque élément, on en est réduit aux suppositions en ce qui concerne l'évolution globale de la population des particules insolubles formées. On sait que celles-ci seront essentiellement à caractère métallique (Mo, Pd, ...) mais leur composition chimique globale, moyennée en fonction du temps et des agrégations successives avec d'autres particules, va dépendre de leur durée de vie dans le liquide. L'évolution des caractéristiques des particules en suspension peut être très rapide dans les sels fondus, les surfaces métalliques y restent très "propres", le frittage de particules en contact et le regroupement sont favorisés. L'introduction systématique de bulles dans le circuit du sel combustible, ne supprimera pas ces phénomènes mais a pour objectif de ne pas les laisser se développer librement en fixant, par exemple, un intervalle de taille bien déterminé pour les objets en circulation. Statistiquement, la nature et la morphologie des particules qui persisteront correspondront aux domaines d'efficacité moindre du procédé et sera donc fixée.

Contrairement aux autres réacteurs, la présence de bulles de petite taille en cœur de RSF n'est pas un phénomène rédhibitoire, grâce au regroupement des fonctions combustible et caloporteur en un seul liquide. Le balayage par un taux continu de 0,05% à 0,1% en volume de gaz est envisagé, avec une injection en amont du cœur et une séparation liquide/gaz en aval. Les bulles traversent donc de part en part le canal central. Le gaz choisi est l'hélium, à la fois pour des raisons de neutralité chimique et aussi parce qu'il se forme naturellement dans le réacteur durant son fonctionnement.

Les travaux expérimentaux entrepris actuellement au laboratoire portent sur l'aspect procédé depuis l'injection des bulles jusqu'à la séparation liquide/gaz, et sur l'évaluation de l'efficacité de l'extraction par ce procédé des gaz rares dissous dans un fluorure. L'étude de l'extraction de particules qui en découle automatiquement est laissée pour l'instant en marge, étant donnée sa difficulté et l'impossibilité actuelle de produire des conditions expérimentales pertinentes vis-à-vis de la problématique « réacteur » (production d'une dispersion d'éléments métalliques à l'échelle atomique dans un fluorure en circulation). Les bulles d'hélium, qui sera le gaz "nettoyeur", seront injectées directement dans la conduite de sel en un point du circuit et devront capturer les autres gaz rares (représentés par l'argon ou le Xénon) qui auront été préalablement injectés jusqu'à saturation. Les bulles vont transporter ces espèces gazeuses durant le trajet jusqu'au dispositif de séparation liquide/gaz situé à courte distance de l'injection. L'efficacité d'ensemble du procédé dépend que chacune des étapes : capture, transport et séparation de phases. Pour pouvoir simuler le fonctionnement du réacteur, il est nécessaire d'obtenir des informations sur ces efficacités et ce, dans un mode d'écoulement pas trop différent. Les résultats concernant les transferts de masse dans des configurations statiques, des écoulements uniformes ou des cuves agitées ne sont pas directement transposables à un écoulement en conduite forcée, et encore moins à une géométrie du type de celle présentée en figure 1.

#### IV – Définition de l'outil expérimental - choix des techniques

Pour mener à bien l'étude concernant le nettoyage par bullage de liquides fluorés circulant en convection forcée, un certain nombre de points sont incontournables :

- l'utilisation d'un sel fluoré au moins pour l'étape de mesure même si des maquettes froides peuvent être utilisées dans l'étape de conception du système,
- l'utilisation d'une conduite de diamètre suffisant pour que l'écoulement biphasique soit représentatif, les effets de parois ne devant pas perturber les résultats,
- l'obtention d'une vitesse de circulation supérieure à 0,5 m/s dans les conduites, les vitesses souhaitables sont situées entre 1 et 2 m/s pour aborder des régimes pertinents par rapport à l'application réacteur visée (MSFR).

Ces points ont constitué la base de réflexion pour la conception et le dimensionnement global de la boucle.

Le choix du sel est capital. Pour des raisons évidentes de protection radiologique l'utilisation d'un sel du même type que celui du réacteur, ou bien sa version de base moins radioactive (LiF-ThF<sub>4</sub>) est exclue en laboratoire dans des installations de grande taille. Pour rester dans des domaines comparables de température de fusion (cf diagrammes de phases de la figure 2) le sel choisi est le ternaire LiF-NaF-KF (T<sub>f</sub> = 454°C). Un fonctionnement dans une gamme de température allant de 500° à 700°C (750°C en pointe seulement) est suffisant pour l'étude du bullage. La densité et la viscosité du Flinak sont comprises respectivement entre (2165 et 2019 kg/m<sup>3</sup> et 8,8.10<sup>-3</sup> et 2,9.10<sup>-3</sup> Pa.s) pour ce domaine de température [21]. Ces sels doivent être utilisés dans un circuit étanche, à la fois pour leur conservation (oxydation et production de fluorure d'hydrogène) mais aussi pour la préservation des matériaux adjacents qui subissent une corrosion très active en présence de traces d'eau.

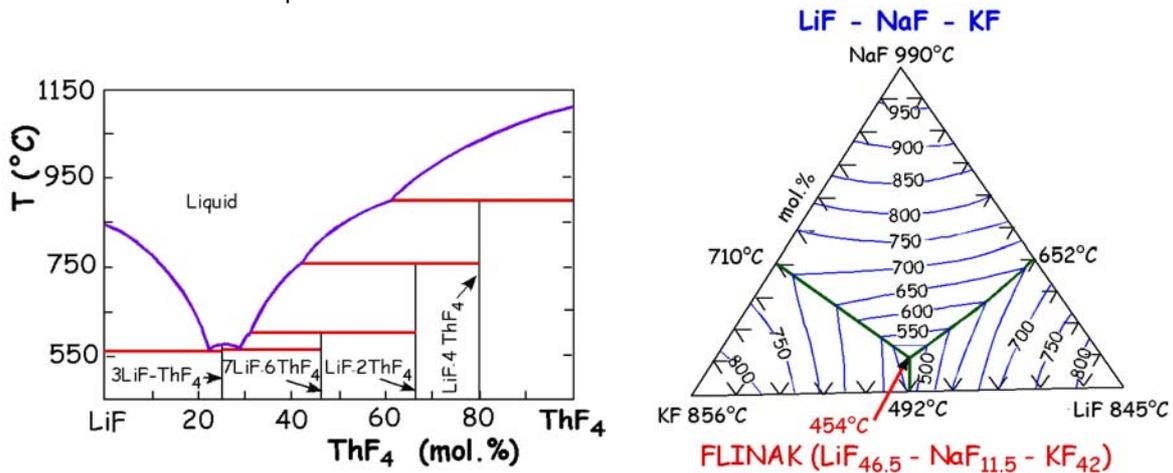


Figure 2 : Diagrammes de phases du binaire LiF-ThF<sub>4</sub> et du ternaire LiF-NaF-KF

Nous n'envisageons pas de monter davantage en température dans la boucle expérimentale dont le but est la mise à disposition d'un outil utilisable pour traiter certains verrous actuels des réacteurs à sels fondus autres que la tenue mécanique et la résistance à la corrosion à haute température. Pour pouvoir réaliser cet objectif, il faudrait disposer, aujourd'hui d'un alliage validé à haute température, disponible facilement sous formes diverses (tube, tôle...) et à prix non prohibitif. Les alliages Hastelloy N [22,23,24], mis au point durant la période faste des travaux américains sur le MSBR, répondent en partie seulement à ces critères. Les études sur des alliages plus récents (de type Ni-Cr-W) bien que prometteurs n'en sont qu'à leurs balbutiements.

La construction d'une boucle à sel fondu dans la gamme 500°-700° introduit déjà suffisamment de difficultés à résoudre avant de s'attaquer à une gamme de température plus élevée. Nous avons donc choisi de rester dans un cadre tout à fait standard pour le choix du métal formant la structure. La gamme de température de fonctionnement (500°-700°) autorise l'utilisation d'un alliage métallique courant du marché (304L), permettant à la fois des modifications ou des réparations du circuit, sans que l'approvisionnement et le coût introduisent des difficultés supplémentaires. L'utilisation du 304 L est un compromis acceptable, qui nous place dans un cadre connu, tant du point de vue de la mise en œuvre et de celui, certes subi, de la corrosion (cf exemples en partie V).

Le souci majeur concernant les matériaux de structure est plutôt dans l'existence d'un défaut local (de l'alliage, d'une soudure ou d'un joint) qui pourrait conduire soit à la rupture d'une canalisation ou d'une cuve avec la fuite rapide du sel vers l'extérieur, soit à la corrosion accélérée de l'intérieur du dispositif. Il apparaît donc que le point clef de notre projet, est reporté sur la fiabilité des systèmes d'étanchéité du circuit, des systèmes de contrôle de la boucle et des protocoles de vidanges/remplissages.

Une fois défini, le sel, la température de fonctionnement, et l'alliage de construction, on peut attaquer la définition des différents éléments du circuit.

La question centrale est celle de la mise en mouvement rapide du sel (la convection naturelle ne permet pas des mouvements plus rapides que quelques cm/s). Aucun constructeur ne propose de système de pompage pouvant fonctionner dans la gamme de température choisie avec des fluorures fondus. La partie conception d'une nouvelle pompe par un constructeur constitue en soit un projet dont le budget dépasserait celui de la construction de l'ensemble de la boucle, avec la difficulté supplémentaire de trouver une société intéressée par un sujet dont les retombées ne sont pas vraiment à court terme. Nous avons donc choisi une démarche indirecte d'adaptation d'un matériel commercial utilisé dans un autre domaine, en prenant comme critères la nature du matériau, la densité du liquide brassé et la température d'utilisation. Notre choix s'est porté sur un circulateur à aluminium liquide (densité voisine de celle du sel et température de fonctionnement supérieure

à 750°C) constitué essentiellement de graphite, matériau inerte vis à vis des fluorures. Les inconvénients de ce matériel résident dans le mot « essentiellement », qui ne veut pas dire « totalement » (certains collages graphite/Sic sont effectués avec des ciments de type oxyde !) et dans le fait que ce dispositif travaille en bain sous air. L'adaptation de ce système au sel fondu consiste essentiellement à le transformer de manière à fonctionner en cuve étanche.

Comme l'adaptation de ce type de matériel à notre cas de figure ne permettra sans doute pas d'obtenir des performances très élevées en matière de pression hydraulique dans le circuit, nous avons limité les objectifs de la boucle d'un point de vue perte de charge et hauteur. Le diamètre des canalisations a été augmenté à 50 mm environ, la longueur de circuit minimisée, et le dessin d'ensemble effectué de manière à obtenir un fonctionnement quasi-horizontale. Compte tenu des vitesses d'écoulement recherchées (1m/s minimum), le débit devient assez important (supérieur à 2 litre/s). Cette augmentation est pénalisante pour le volume total de sel qui augmente forcément. Le mélange salin n'est pas acheté mais fabriqué à partir des sels purs le constituant. La pesée, le mélangeage et la fusion en blocs se fait en boîtes à gants, la fabrication du « liquide » de la boucle représente une tâche considérable dès lors que les quantités dépassent quelques dizaines de litres.

La boucle est constituée uniquement des éléments indispensables soit à son fonctionnement (circulateur, mesure du débit), soit à l'étude du bullage (injecteur, séparateur de bulles, dispositif de prélèvement du gaz extrait pour aller vers le système d'analyse). La figure 3 montre de manière schématique la répartition des composants. Le sel n'est présent dans la partie boucle proprement dite que lorsque celle-ci est en service. Il est conservé sinon dans un réservoir qui reste, en fonctionnement normal, isolé du circuit. La gestion des niveaux du liquide et des vidanges/remplissage se fait par pressurisation avec un gaz neutre.

Le contrôle thermique de l'ensemble de la boucle est permanent, ainsi que le contrôle des pressions et des entrées sorties de gaz dans les cuves présentant une surface libre. Même en cas de vidange, et même froid, l'ensemble du circuit doit être maintenu sous gaz neutre. En cas de démontage pour un changement de configuration de la boucle, ou de réparation d'un composant, l'ensemble doit d'abord subir un reconditionnement sous gaz à chaud pour éliminer toute trace de vapeur d'eau. La partie gestion des gaz est très importante pour un bon fonctionnement de l'ensemble, elle demande heureusement une technologie classique, bien établie. En cas de panne électrique du réseau, le sel doit être vidangé vers le four et ne pas figer dans le circuit. Le circulateur et les systèmes de chauffage vont s'arrêter, mais du fait de la capacité calorifique du sel, on dispose d'un certain temps pour réagir, probablement de l'ordre de 15 à 20 min, dépendant de la qualité de l'isolation et de la température de fonctionnement au moment de la coupure.

Le système de bullage est comme le reste du circuit entièrement construit en 304L. Sa géométrie ne sera pas détaillée davantage dans le présent document. Les dispositifs d'injection et de séparation des bulles sont testés par ailleurs à l'aide d'une maquette froide en eau. Ces travaux portent sur les effets hydrauliques et ne peuvent évidemment pas prendre en compte les spécificités physicochimiques du sel (solubilité des gaz, diffusivité, tension superficielle, viscosité).

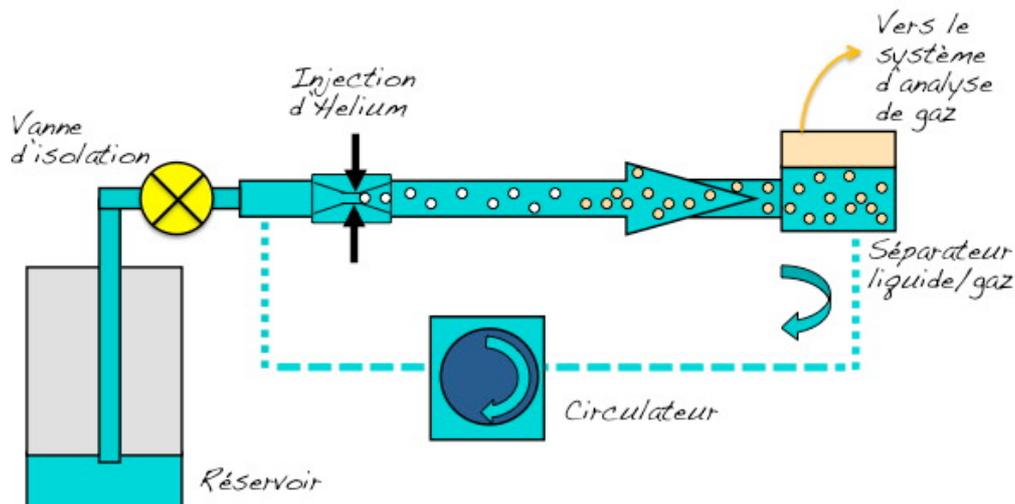


Figure 3 : Schéma de principe de l'installation FFER

Le circuit constitué par la vanne d'isolation, le système de bullage, le circulateur, et les canalisations, devra rester le plus isotherme possible, à la fois pour minimiser les pertes thermiques et pour limiter les effets de transport/corrosion.

Le fait que le liquide circule à haute température ( $T > 450^{\circ}\text{C}$ ) élimine la plupart des techniques classiques de mesure de débit. Les dispositifs de mesure basés sur une différence de pression entre l'amont et l'aval du dispositif ne sont pas envisageables pour des raisons de difficulté de mesure de pression directement dans le sel. De manière générale, on évite aussi l'insertion de dispositif mobile dans les conduites et de ce fait les mesures basées sur des systèmes tournants sont de même exclues. Les systèmes utilisant des effets thermiques produits sur d'un filament immergé seraient utilisables bien que fragiles. L'outil de mesure serait de toute façon à mettre au point (choix d'un filament inaltérable dans le Flinak, design associé aux propriétés thermique du sel et de l'interface sel/métal, amélioration des données disponibles). Les mesures électromagnétiques sont rendues difficiles du fait de la température d'une part (qui rend inutilisable les dispositifs industriels classiques axés sur les liquides « basse température ») et aussi de la conductivité du sel ionique (conductivité : entre 100 et 200  $\text{S.m}^{-1}$ ) complètement hors de la gamme de celle des métaux liquides (dans les  $10^6 \text{ S.m}^{-1}$ ). Le choix de la méthode de mesure du débit s'est porté sur une mesure ultrason de type « écho » (par opposition aux méthodes courantes de débit par temps de transit). La technique n'est pas applicable directement, et va aussi demander un développement spécifique, dont la charge est acceptable compte tenu des avantages particuliers de cette technique.

La mesure du débit du liquide découle d'une analyse de l'écho réémis par des particules ou des petites bulles présentes dans le liquide. La mesure locale de la vitesse du liquide est en fait une mesure de la vitesse de déplacement d'objets en suspension dans ce liquide. Cette technique est très prometteuse car elle permet, en théorie, à la fois de mesurer les profils de vitesse et d'apporter des informations sur les "objets" dispersés dans le liquide, ce qui a une énorme importance dans une circulation à cahud sans possibilité de visualisation (les fluorures dissolvent les oxydes : pas de hublots, pas de fibres optiques, etc). Ce mode de fonctionnement qui a été utilisé dans quelques expériences à chaud [25-28] est basée sur le traitement du signal d'ondes ultrasonores pulsées re-émises par les particules présentes dans la circulation liquide. La vitesse (en fait seulement sa composante dans l'axe du faisceau d'ultrason) est déterminée à partir de la différence de temps de parcours retour entre deux trains d'onde successifs injectés. L'évolution dans le temps des informations concernant la position et la vitesse axiale des particules permet de remonter à la description de l'écoulement. Il existe une limitation de la vitesse mesurable qui dépend de différents paramètres liés à l'émission du signal mais aussi de la fréquence des ultrasons utilisés (dans la gamme des MHz) et de la vitesse du son dans le liquide. Les dispositifs piézoélectriques émetteur/récepteur des ultrasons ne sont pas utilisables à des températures élevées et nécessitent l'utilisation d'un guide d'onde pour permettre le transfert du signal au liquide. Compte tenu des effets néfastes produits par la transmission à travers une paroi, il apparaît obligatoire de travailler directement avec un guide d'onde inséré dans le milieu salin. Ceci impose le choix d'un matériau dont l'état de surface ne s'altère pas trop rapidement dans le sel et qui permette une transmission correcte des signaux. La qualité des résultats des techniques par ultrason va dépendre directement du matériau du guide d'onde, de son état de surface et de la qualité du collage côté émetteur. Par ailleurs, la vitesse du son dans le Flinak n'est pas une donnée connue avec précision.

Depuis le schéma de principe de la figure 3, le travail a consisté à établir des plans réalistes prenant en compte les contraintes de dilation du circuit entre la température ambiante et la température de fonctionnement, l'obligation de minimiser la longueur du circuit, sa sinuosité et la difficulté de mener à bien certains développements à relativement court terme. Ce travail a abouti au dessin présenté en figure 4. Sur ce dessin, seule la partie contenant le sel est représentée (sans les éléments chauffants, ni les isolants). Le circuit est relié à un réservoir de grande taille, situé en contrebas pour pouvoir effectuer une vidange naturelle de la quasi-totalité du sel. La boucle qui est donc entièrement au-dessus du réservoir est maintenue par des châssis supports, non présentés en figure 4 pour des raisons de simplification.

La boucle est constituée d'une circulation courte comprenant une partie tubulure et deux cuves isolées de l'atmosphère extérieure, l'une est destinée à recevoir le circulateur, situé au point haut du circuit, l'autre étant la cuve où s'effectue la séparation entre la phase liquide et la phase gaz. Dans ces deux cuves, il existera une atmosphère de couverture et une interface liquide gaz dont la position devra être maintenue de manière stable. Le détail des couvercles des cuves n'est pas représenté, elles sont munies d'entrées/sortie de gaz, des entrées des dispositifs de mesures de température et de niveau, et pour le circulateur, du passage de l'axe du rotor. L'ensemble est réalisé au laboratoire depuis le dessin des plans en bureau d'étude, jusqu'à la réalisation en atelier. Les étanchéités sont réalisées avec des joints métalliques ou de type graphite suivant les cas.

La mise en circulation du sel dans ce circuit constituera le premier test/résultat de nos travaux. Le maintien en fonctionnement durant une période suffisamment longue, même suivie par une période de réparation ou d'amélioration, serait déjà un succès très important. Il ouvrirait la perspective de progrès sur des aspects cruciaux pour le développement des caloporteurs salins : le comportement général des circuits, la qualification de techniques de mesure adaptées, la possibilité de tester des échangeurs thermiques, ...

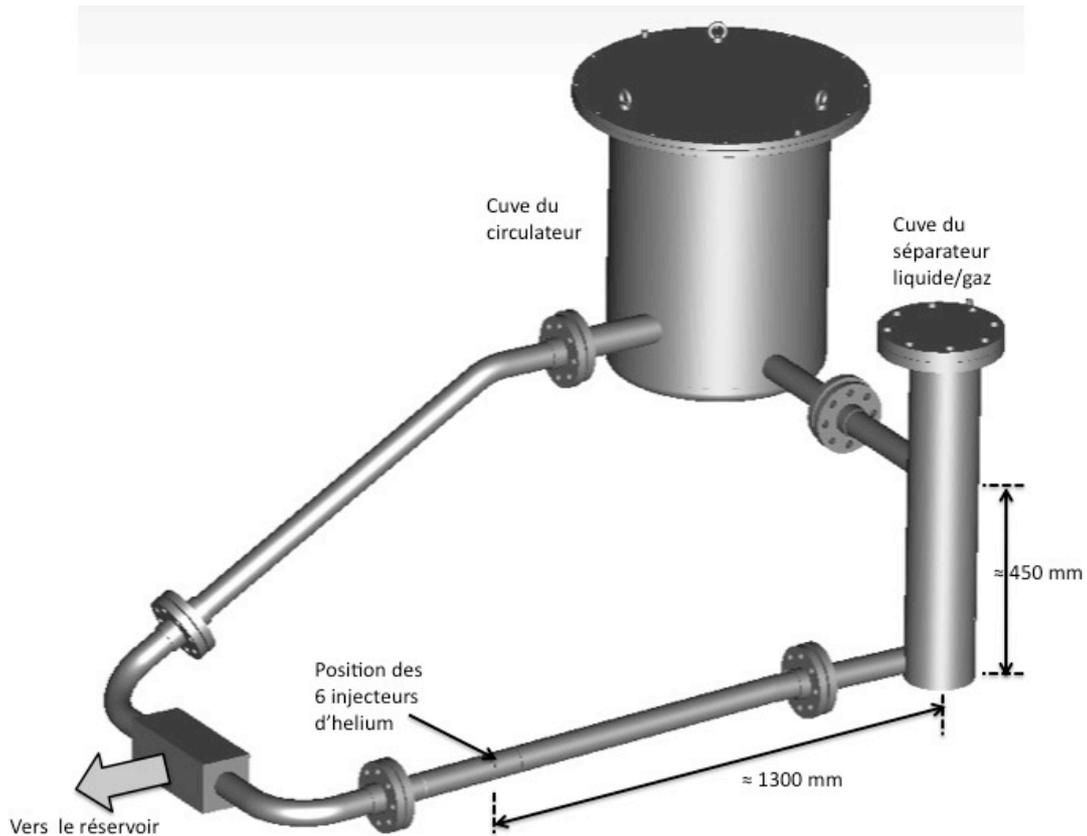
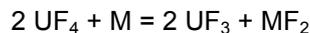


Figure 4 : Dessin de la boucle FFER, seules les parties en contact avec le sel en mouvement sont représentées

### V- Quelques illustrations de problèmes de matériaux

Dans les sels fondus fluorés, les matériaux métalliques qui restent inertes sont essentiellement le molybdène et le nickel et le fer à l'état pur. Si leur utilisation comme matériau de connexion ou comme creuset est toujours possible, des alliages soudables sont nécessaires pour passer à l'échelle du dispositif étanche. Les alliages à base nickel résistent en général mieux à l'action des fluorures mais cela n'est pas une caractéristique suffisante. Le taux de chrome joue en fait un rôle prépondérant. Cela a été bien montré lors des études d'oak Ridge [22,23,24] dans des fluorures de type combustible, dans lesquels la corrosion est activée par le mécanisme d'oxydo-réduction suivant :



et est donc lié à l'équilibre entre les espèces tétravalente et trivalentes de l'uranium. En l'absence d'élément à valence multiple, la corrosion est liée aux impuretés présentes, notamment celles provenant de l'atmosphère (vapeur d'eau). Les mécanismes de dégradation correspondent à une déchromisation des alliages, qui se produit dans tous les cas, mais plus ou moins rapidement selon la microstructure et éléments d'addition de l'alliage, les conditions d'utilisation. Olson [29] a repris récemment ces travaux mais à plus haute température, dans le Flinak où il a comparé la tenue de différents alliages.

A Oak Ridge, des tests de corrosion étaient effectués dans des boucles de convection naturelle sur des échantillons situés en zone chaude, mais les matériaux des boucles servaient aussi de test. Il y en avait en Inconel, en Hastelloy, en acier. Une boucle constituée d'acier 304L a fonctionné avec un  $\Delta T$  de 100°C pour une température maximale de 688°C pendant 74951 h (presque 9 ans). Probablement les conditions d'étanchéité de ce circuit de petite taille et l'absence de remise à l'air ont joué un rôle prépondérant dans sa longévité. Une observation sur un échantillon de 304L, maintenu 5700h dans la boucle en question [24] montre l'allure typique de la corrosion qui s'installe (figure 5). Le sel utilisé était un mélange  $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4\text{-ThF}_4$ .

On retrouve ce même faciès avec d'autres alliages, et avec d'autres sels. C'est le cas pour un feuillard d'inconel soumis à un flux d'un côté seulement de  $\text{LiF-NaF}$  jusqu'à 750°C, avec des variations de température lors d'un essai prospectif au laboratoire. L'endommagement de la structure intergranulaire de l'alliage est très importante, dans toute l'épaisseur de l'échantillon en fait, et elle a conduit à une rupture de type fragile (cf figure 6).

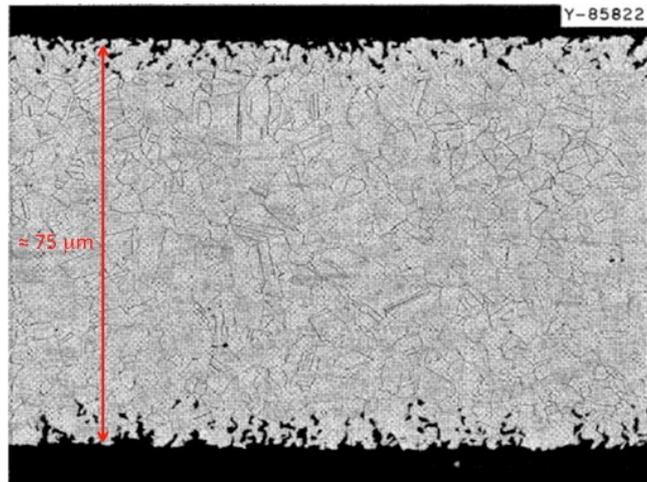


Figure 5 : Echantillon mince en 304L maintenu 5700h dans un mélange  $\text{LiF}-\text{BeF}_2-\text{ZrF}_4-\text{UF}_4-\text{ThF}_4$  [24].

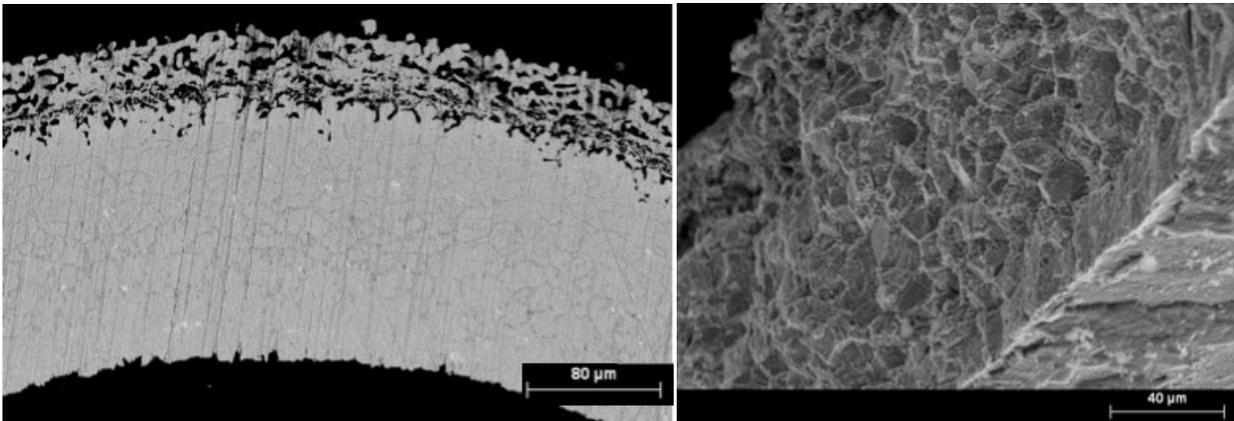


Figure 6 : Echantillon mince en inconel attaqué d'un côté par le mélange  $\text{LiF}-\text{NaF}$ .

En dehors des matériaux métalliques, les matériaux carbonés sont des bons candidats pour l'utilisation en sel fondu : carbone sous forme graphite ou vitreux, carbure de silicium.... Cela ne veut pas dire qu'on évite tous les risques. Il se passe tout de même des choses suivant le prétraitement du matériau ou bien ses conditions d'utilisation. Normalement, les sel fondus fluorés ne mouillent pas le carbone. Ceci n'empêche pas dans certaines conditions des pénétrations de sel à l'état liquide entre des feuillets de graphite même comprimés (figure 7).

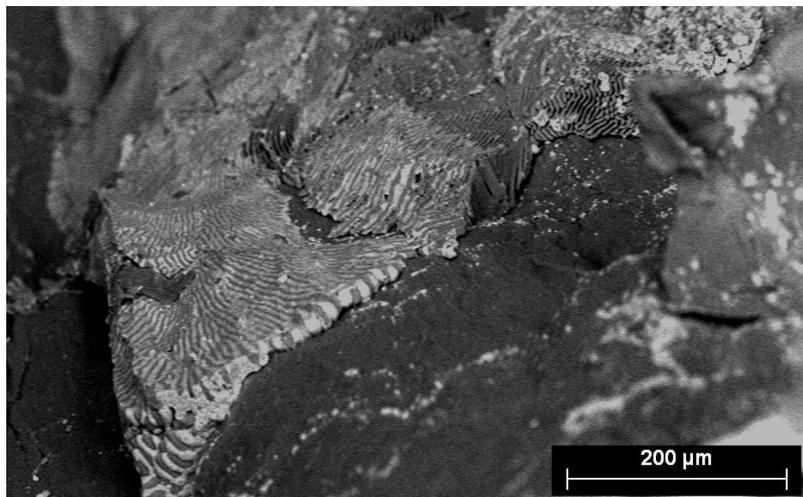


Figure 7 : Mélange eutectique  $\text{LiF}-\text{NaF}$  ayant pénétré entre deux feuillets de graphite.

**Remerciements:**

Le montage de cette boucle, au LPSC, se fait sous la forme de la création d'une plateforme technologique dédiée aux sels fondus. Elle s'appuie sur l'installation PEREN-chimie existant déjà au laboratoire (manipulation, élaboration et expérimentation sur des sels à base LiF, non radioactifs) et sur les techniciens et ingénieurs du laboratoire. Financièrement, la construction repose sur le soutien du CNRS (programme interdisciplinaire PACEN), sur l'Institut Carnot-Energie (projet **TSF** pour "Technologie Sels Fondus") et sur l'université Joseph Fourier.

**Références:**

- [1] *Sels fondus à haute température*, Ed. V. Ghetta, J. Fouletier, P. Taxil, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne (2009).
- [2] R.C. Briant, A.M. Weinberg, "Aircraft Nuclear Propulsion Reactor", *Nuclear Science and Engineering*, vol. 2, 795-853 (1957)
- [3] P.N. Haubenreich, J.R. Engel, "Experience with the Molten Salt Reactor Experiment", *Nuclear Applications and Technology*, vol. 8, 107-117 (1970)
- [4] E.S. Bettis, R.C. Robertson, "The design and performance features of a single-fluid molten salt breeder reactor", *Nuclear Applications and Technology*, vol. 8, 190-207 (1970)
- [5] M.E. Whatley et al., "Engineering development of the MSBR fuel recycle", *Nuclear Applications and Technology*, vol. 8, 170-178 (1970)
- [6] A. Nuttin, "Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique", Thèse de doctorat (Université Joseph Fourier – Grenoble-I) (2002)
- [7] A. Nuttin et al, "Potential of Thorium Molten Salt Reactors", *Prog. in Nucl. En.*, vol 46, p. 77-99 (2005)
- [8] L. Mathieu, "Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor", Thèse de doctorat, (Institut National Polytechnique de Grenoble) (2005)
- [9] L. Mathieu, D. Heuer et al, "The Thorium Molten Salt Reactor: Moving on from the MSBR", *Prog in Nucl En* vol 48, p 664-679 (2006)
- [10] S. Delpech, E. Merle-Lucotte, T. Augé, D. Heuer, "MSFR: Material issues and the Effect of Chemistry Control", 2009 Generation4 International Forum Symposium, Paris France (2009)
- [11] C. Renault, M. Hron, R. Konings, D-E. Holcomb, "The Molten Salt Reactor (MSR) in Generation IV - Overview and Perspectives", 2009 Generation4 International Forum Symposium, Paris France (2009)
- [12] D. Heuer, E. Merle-Lucotte, L. Mathieu : "Concept de réacteurs à sels fondus en cycle Thorium sans modérateur", *Revue Générale du Nucléaire* N° 5/2006, p 92-99 (2006).
- [13] E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, V. Ghetta, C. Le Brun, L. Mathieu, R. Brissot, E. Liatard, "Optimized Transition from the Reactors of Second and Third Generations to the Thorium Molten Salt Reactor", *Proceedings of the International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP)*, Paper 7186, Nice, France (2007)
- [14] E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, V. Ghetta, C. Le Brun, "Introduction of the Physics of Molten Salt Reactor", *Proceedings of the NATO institute of advanced studies on Materials for Generation-IV Nuclear Reactors* (2007)
- [15] C.W. Forsberg, C. Renault, C. Le Brun, E. Merle-Lucotte, V. Ignatiev, "Liquid Salt Applications and Molten Salt Reactors", *Revue Générale du Nucléaire* N° 4/2007, pp 63-71 (2007)
- [16] E. Merle-Lucotte, "Le cycle Thorium en réacteurs à sels fondus peut-il être une solution au problème énergétique du XXI<sup>ème</sup> siècle ? Le concept de TMSR-NM", Habilitation à Diriger les Recherches, Institut Polytechnique de Grenoble, LPSC-0875 (2008)
- [17] E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, X. Doligez, V. Ghetta, C. Le Brun, "Optimization and simplification of the concept of Non-Moderated Thorium Molten Salt Reactor", *Proceedings of the International Conference on the Physics of Reactors PHYSOR2008 «Nuclear Power: A Sustainable Resource»* (2008)
- [18] C. Renault, S. Delpech, E. Merle-Lucotte, R. Konings, M. Hron, V. Ignatiev, "The Molten Salt Reactor (MSR) – R&D Status and Perspectives in Europe", 7<sup>th</sup> European Commission conference on Euratom research and training in reactor systems FISA 2009, Prague, June 22-24 (2009)
- [19] S. Delpech, E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, V. Ghetta, C. Le Brun, L. Mathieu, G. Picard, "Reactor physics and reprocessing scheme for innovative molten salt reactor system", *J. of Fluorine Chemistry*, 130, Issue 1, 11-17 (2009)
- [20] E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, X. Doligez, V. Ghetta, "Optimizing the Burning Efficiency and the Deployment Capacities of the Molten Salt Fast Reactor", *Proceedings of the International Conference Global 2009 - The Nuclear Fuel Cycle: Sustainable Options & Industrial Perspectives*, Paris, France (2009)
- [21] J. Ambrosek, M. Anderson, K. Shridharan, T. Alen, "Current status of Knowledge of the fluoride salt (Flinak) heat transfer", *Nuclear technology*, 165, 166-173 (2009)

- [22] H. E. McCoy, "*Hastelloy N*", ORNL-4782, 161-191 (2009)
- [23] J. W. Koger, "*Alloy compatibility with LiF-BeF<sub>2</sub> salts containing ThF<sub>4</sub> and UF<sub>4</sub>*", ORNL-TM-4786, 1-30 (1972)
- [24] J. W. Koger, A. P. Litman, "*Corrosion studies*", ORNL-4344, 257-266 (1968)
- [25] C. K. Jen, B. Bao, K. T. Nguyen, C. A. Loong, J. G. Legoux, "On-line ultrasonic monitoring of a die-casting process using buffer rods", *J. Ultrasonics*, 35, 335-344 (1997)
- [26] I. Ihara, C. K. Jen, D. R. França, "Ultrasonic imaging, particle detection, V(z) measurements in molten zinc using focused clad buffer rods", *Review of scientific instruments*, vol 71, N° 9, 3579-3586 (2000)
- [27] S. Eckert, G. Gerbeth, V. I. Melnikov, "Velocity measurements at high temperatures by ultrasound Doppler velocimetry using an acoustic wave guide", *Experiments in Fluids* 35(2003) 381-388.
- [28] I. Ihara, D. Burhan, Y. Seda, "In situ monitoring of solid-liquid Interface of aluminium alloy using high temperature ultrasonic sensor", *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 44, N°6B (2005) 4370-4373
- [29] L. Olson, J. Ambrosek, K. Shridharan, M. Anderson, T. Alen, "*Material corrosion in molten LiF-NaF-KF salt*", *J. of Fluorine Chemistry*, 130, 67-73 (2009)