

**TRANSFERTS DE CHALEUR PAR LIQUIDES
ORGANIQUES**

par

F. LANZA

EURATOM

Roger RICQUE et Jean-Paul VILLENEUVE

COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

Rapport CEA - R 2644

Genève 1964, A Conf. 28/P/ 93

TRANSFERTS DE CHALEUR PAR LIQUIDES ORGANIQUES.

Sommaire. -

On a déterminé sur un canal d'essai de section circulaire de 12 mm de diamètre intérieur, la corrélation de transfert de chaleur suivante valable à ± 6 p. 100 près pour les terphényles OMP et OM2 avec 0, 10, 20 ou 30 p. 100 de haute polymères $Nu_b = 0,00835 Re_b^{0,9} Pr_b^{0,4}$. Cette corrélation a été établie dans une gamme de flux de 50 à 100 W/cm², de température de 290 à 420°C, de Reynolds de 30 000 à 350 000.

On a effectué 8 essais de longue durée (250 à 1 000 heures en régime continu) pour déterminer l'effet sur le coefficient d'échange de l'encrassement des surfaces chauffantes. La boucle est en acier inoxydable sauf une partie en acier doux ; on n'observe aucun encrassement même si le terphényle contient 30 ppm de chlore ; par contre l'encrassement est sensible quand on ajoute des produits lourds contenant de l'oxygène combiné.

HEAT TRANSFER WITH ORGANIC FLUIDS.*

Summary. -

Using a test channel with a circular cross-section of 12 mm internal diameter the following heat transfer correlation, valid to about ± 6 p. 100, was determined for the terphenyls OMP and OM2 with 0, 10, 20 or 30 p. 100 of high polymers : $Nu_b = 0,00835 Re_b^{0,9} Pr_b^{0,4}$. This correlation was established with fluxes ranging from 50 to 100 W/cm², temperatures from 290 to 420°C and Reynolds number from 30 000 to 350 000.

8 long-term tests were carried out (250 to 1000 hours continuous running) to determine how deposition on the heating surfaces affects the exchange coefficient. The loops is made of stainless steel except for one part in soft steel. No deposits are observed even if the terphenyl contains 30 ppm of chlorure, while on the other hand deposition is appreciable when heavy substances containing combined oxygen are added.

* with the help of MM. A. MICHEL and A. TEYTU in building the loops

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

TRANSFERTS DE CHALEUR PAR LIQUIDES ORGANIQUES

par

F. LANZA
Euratom

R. RICQUE et J. VILLENEUVE
Commissariat à l'Energie Atomique

1°) INTRODUCTION

Dans le cadre d'un contrat passé par la Direction du Projet ORGEL de l'Euratom, on a étudié sur deux installations d'essais les caractéristiques d'échange thermique de différents terphényles et l'influence, sur le coefficient d'échange, de l'encrassement des surfaces chauffantes par du terphényle OM2 contenant, dans certains cas, du fer, du chlore ou des produits de décomposition.

2°) LES ETUDES DE COEFFICIENT D'ECHANGE

.....a) le dispositif expérimental : boucle L050P

L'ensemble de l'installation est représenté par le schéma ci-après (figure 2. 1).

Le circuit principal de terphényle est construit en grande partie en acier ordinaire et conçu pour fonctionner jusqu'à 450° C et 20 kg/cm² (pressurisation à l'azote).

Il est relié par son point bas à la cuve de stockage dans laquelle le circuit peut se vidanger à peu près intégralement.

La pompe, classique, à presse étoupe, est du type centrifuge.

La section d'essais est essentiellement constituée d'un tube d'acier inoxydable de 80 cm de longueur chauffante, 12 mm de diamètre intérieur et 1 mm d'épaisseur.

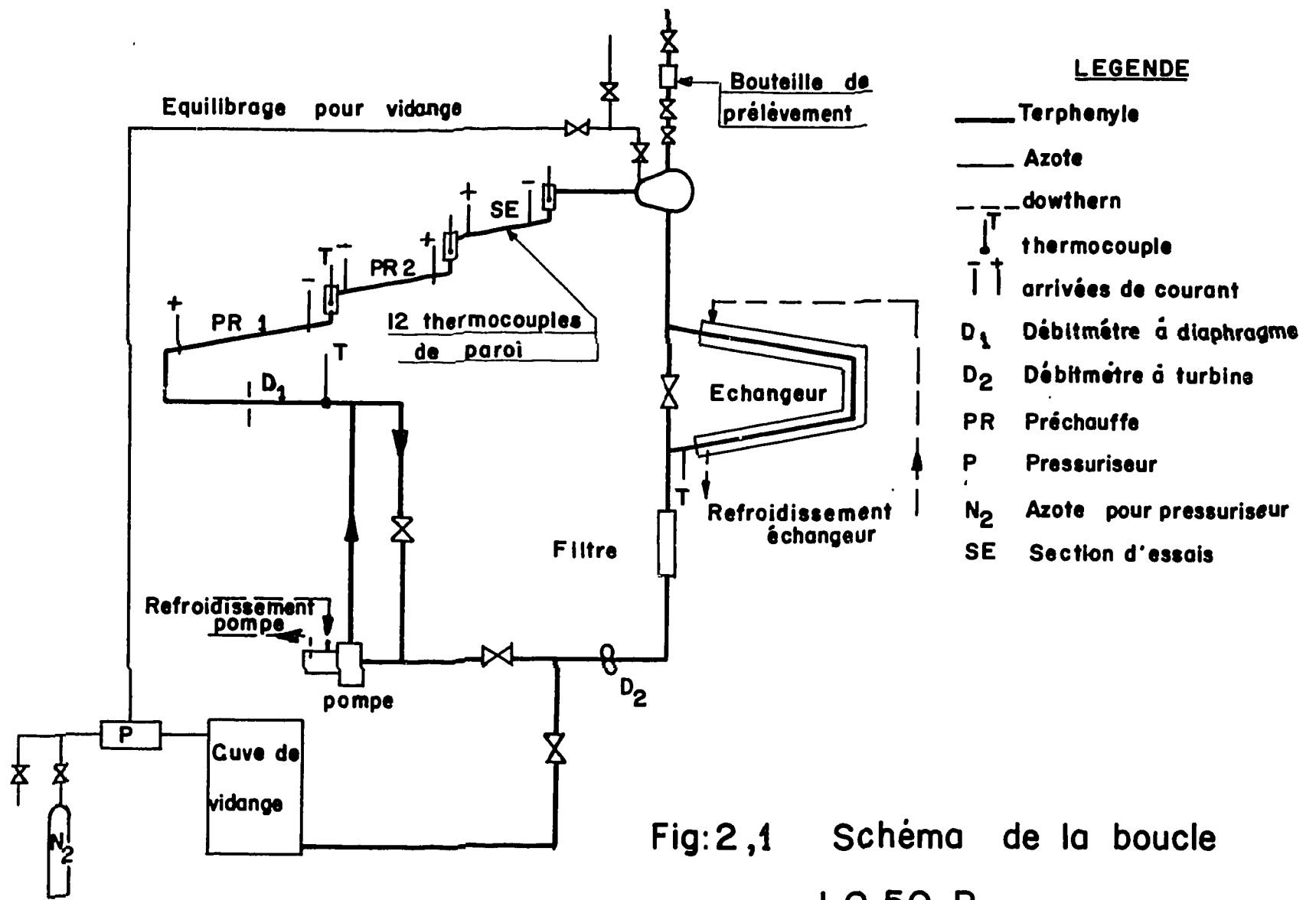


Fig:2,1 Schéma de la boucle
LO.50.P

La mesure du débit est assurée par un orifice déprimogène et un débitmètre à turbine. La pression différentielle de l'orifice déprimogène est transmise à une cellule de pression différentielle par deux lignes de mesure constamment chauffées pour éviter le gel du terphényle.

Ces deux appareils sont étalonnés avec une précision de 0,3 % au banc d'étalonnage hydraulique à froid ; leur concordance en fonctionnement à chaud a toujours été très bonne (mieux que 2 % pour 80 % des points d'essais).

La densité superficielle de flux thermique est déterminée à partir des mesures de tension et intensité du courant continu alimentant la section d'essais.

La mesure de température de fluide est effectuée aux extrémités du canal d'essais par thermocouples et sondes à résistance de platine montés dans une gaine immergée dans un pot assurant le bon mélange de fluide.

Les températures de paroi sont mesurées par des thermocouples thermocoax brasés dans des disques d'argent ; ces disques sont serrés contre la paroi et en sont isolés électriquement par une mince feuille de mica.

L'isolation thermique y est réalisée au moyen de lames d'air délimitées par trois cylindres en cuivre concentriques au canal d'essais.

Entre les deux cylindres extérieurs se trouvent des fils chauffants thermocoax enrobés dans du ciment conducteur Thermon. L'enveloppe chauffante ainsi réalisée fournit un flux bien uniforme.

Le troisième cylindre, de diamètre inférieur aux précédents, délimite entre ceux-ci et le canal lui-même deux couches d'air.

On régule, à l'aide de thermocouples brasés sur les tubes de cuivre et montés en différentiel, les gradients radiaux à travers la couche d'air externe.

Le gradient radial autour du canal d'essais est ainsi réglé à 1 ou 2 degrés près autour d'une valeur voisine de zéro et le flux de fuite est par suite pratiquement annulé.

Un autre dispositif permet d'annuler également les pertes thermiques par conduction dans les barres d'amenée de courant.

Ces précautions permettent d'obtenir des bilans thermiques toujours compris entre 95 et 105 % et donnent une amélioration considérable à la précision des résultats de coefficient d'échange.

b) Les produits organiques testés

On a effectué les mesures sur des terphényles de la Société Progil dont la composition chimique est donnée dans le tableau I.

Tableau I : Composition des terphényles essayés

Produit testé	Composition en pour cent				
	légers	orthoterphényle	métaterphényle	paraterphényle	lourds
OMP	traces	3,4	66,5	30	0,1
OM2 pur	0,5	18,5	76	5	0
(OM2 + HBR) 1	0,4	16,9	66	5,2	11,5
(OM2 + HBR) 2	0,4	15	57	5,1	22,9
(OM2 + HBR) 3	traces	13	54,8	3,4	28,8

Les produits lourds (HBR) provenaient du réacteur américain OMRE.

Ayant besoin de connaître parfaitement les caractéristiques physiques de ces produits jusqu'à 450° C et 20 kg/cm², on a construit à Grenoble un calorimètre, un conductimètre thermique, un viscosimètre et un densimètre permettant ces mesures [2]. On a obtenu les valeurs suivantes, valables entre 240 et 450 °C :

$$\text{densité } \frac{(\text{kg/m}^3) \cdot 10^{-3}}{=} a + b/T + c/T^2 + d/T^3$$

$$\text{viscosité } \frac{(\text{kg/m} \cdot \text{s}) \cdot 10^3}{=} e + f/T + g/T^2 + k/T^3$$

$$\text{chaleur spécifique } c(\text{j/kg}^\circ\text{C}) = j + kT$$

$$\text{conductibilité thermique } (\text{W/m}^\circ\text{C}) = l + mT$$

T est exprimé en °C et les valeurs des constantes sont données dans le tableau II.

Tableau II : constantes de caractéristiques physiques

Fluide	OMP	OM2	OM2 + 10% lourds	OM2 + 20% lourds	OM2 + 30% lourds
a	-0,532	-0,373	-0,442	-0,361	-0,320
b. 10 ⁻²	10,309	8,887	9,667	8,967	8,600
c. 10 ⁻⁴	-25,929	-21,820	-24,348	-22,172	-20,889
d. 10 ⁻⁶	23,055	19,109	21,796	19,626	18,187
e	0,011	0,180	0,042	-0,127	-0,122
f. 10 ⁻²	0,034	-1,672	-0,063	1,716	1,656
g. 10 ⁻⁴	3,6163	8,7990	3,2628	-2,4538	-1,8834
h. 10 ⁻⁶	-0,1722	-5,5927	1,4641	8,8151	9,3927
j	1 644	1,584	1,587	1,590	1,594
k	2,40	2,43	2,38	2,34	2,29
l	0,1487	0,1442	0,1438	0,1436	0,1432
m. 10 ⁴	-1	-1,05	-0,95	-0,86	-0,76

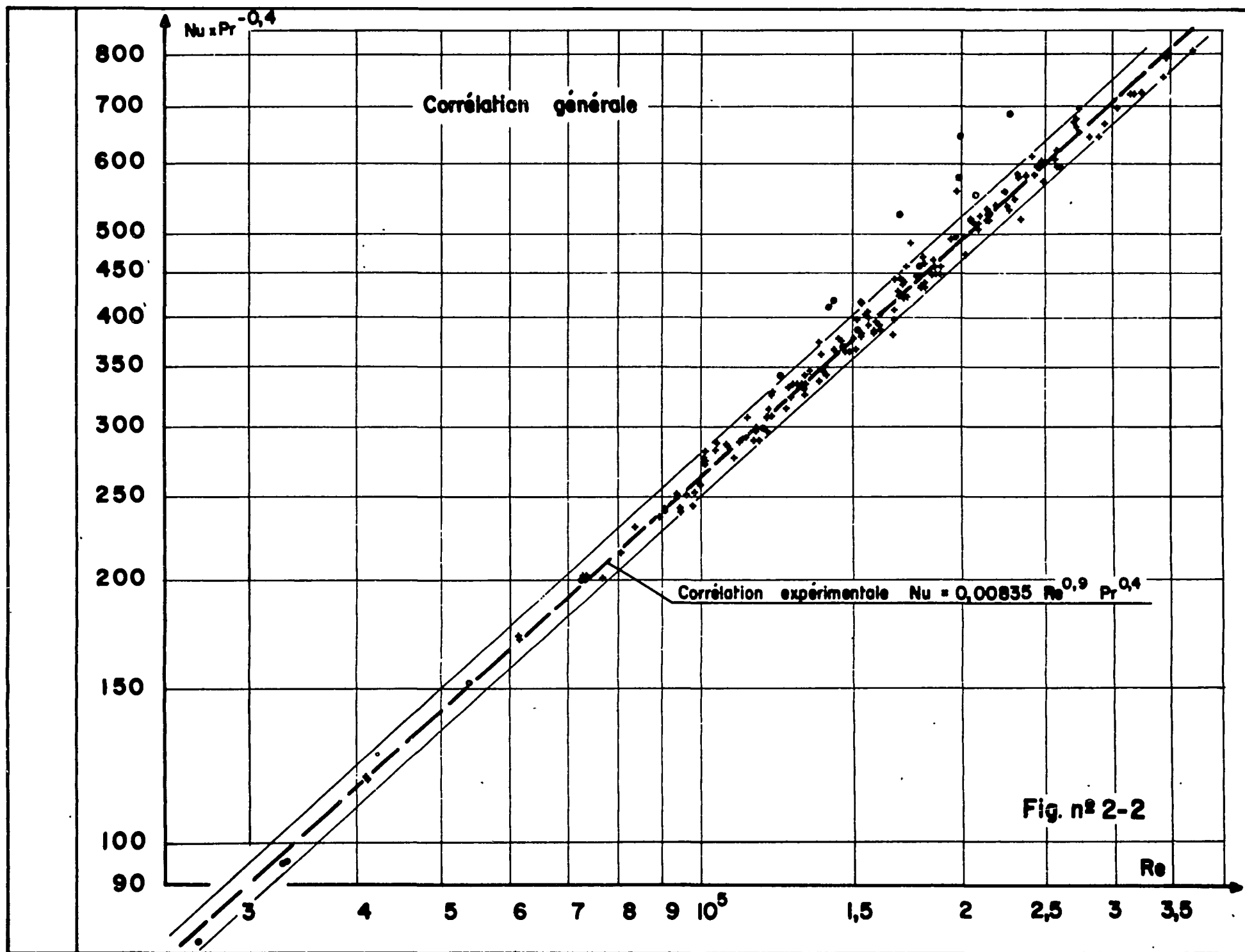


Fig. n° 2-2

c) Résultats d'essais de coefficient d'échange

Les essais de coefficient d'échange ont été tout d'abord réalisés avec le terphényle OMP dans la gamme de paramètres suivants (44 points d'essais) :

densité de flux 50 et 100 W/cm²

vitesse 4 à 9 m/s

température
d'entrée 320 à 410°C

nombre de Reynolds 120.000 à 370 000

nombre de Prandtl 5,5 à 7,8

Ils ont été poursuivis pour 164 points d'essais avec les terphényles OM2 avec et sans produits lourds ; la gamme de paramètres explorés est la suivante :

densité de flux 25 à 50 W/cm²

vitesse 1,5 à 8 m/s

température d'
entrée 290 à 380°C

nombre de Reynolds 26 000 à 270 000

nombre de Prandtl 6,5 à 12

La quasi-totalité (95 %) des 208 points d'essais répond à la corrélation générale suivante :

$$\text{Nu} = 0,00835 \text{ Re}^{0,9} \text{ Pr}^{0,4}$$

les nombres sans dimensions étant calculés pour la température moyenne du fluide. 95 % des points d'essais sont compris dans une bande de dispersion de ± 6 % autour de cette corrélation. La figure 2.2 représente l'ensemble des résultats d'essais. On a constaté que la valeur de la densité de flux thermique n'avait pas d'influence nette sur les résultats.

On a comparé cette corrélation avec les résultats de l'étude théorique de MARTINELLI [1] ; l'analogie de MARTINELLI conduit à un exposant 0,9 pour le nombre de Reynolds comme la corrélation ci-dessus.

On constate, sur la figure 2.2, qu'un certain nombre de points présentent une dispersion anormale, ces points correspondent à des terphényles à forte concentration de lourds circulant à haute température et grande vitesse. On peut penser que, pour ces conditions, la concentration des lourds ne reste pas uniforme dans l'écoulement et qu'il peut s'établir un gradient de concentration entre la paroi et le noyau turbulent ; une étude systématique de ce phénomène reste à faire.

L'étude expérimentale effectuée a donc permis d'établir une corrélation empirique valable pour l'ensemble des produits testés. La faible dispersion des résultats laisse peu d'incertitude sur la détermination de cette corrélation moyenne ; par ailleurs, les nombreuses vérifications de mesure effectuées limitent la possibilité d'erreurs systématiques sur la valeur absolue du coefficient d'échange qu'on peut calculer à partir de cette corrélation moyenne.

Les effets séparés des paramètres Reynolds et Prandtl ayant été analysés, l'extrapolation des résultats à l'aide de la corrélation présentée doit pouvoir se faire avec une assez faible incertitude. De même, la connaissance de la rugosité relative des sections d'essais utilisées rend possible l'application de ces résultats dans le cas d'échanges thermiques sur parois de rugosités différentes.

3° ETUDE DE L'ENCRASSEMENT DES PAROIS CHAUFFANTES PAR LES POLYPHENYLES

Le phénomène d'encrassement des parois chauffantes ou fouling étant très complexe et influencé par un très grand nombre de paramètres, il a paru nécessaire de reprendre cette étude dans le cadre du projet ORGEL à la lumière des résultats déjà enregistrés dans d'autres laboratoires.

Deux séries d'essais ont pu être envisagées :

- La première, où les différents paramètres sont ajustés aux valeurs qu'ils auront dans le réacteur, en particulier la composition du produit, les conditions thermiques et hydrodynamiques, etc... Cette série permettra de connaître les risques d'encrassement dans le réacteur.

- La seconde, où on essaiera de déterminer plus particulièrement l'influence de tel ou tel paramètre, dans des conditions pouvant s'éloigner des conditions prévues dans le réacteur, de façon à pouvoir aboutir à une meilleure compréhension du phénomène.

L'étude du phénomène sur un essai s'effectue en deux temps :

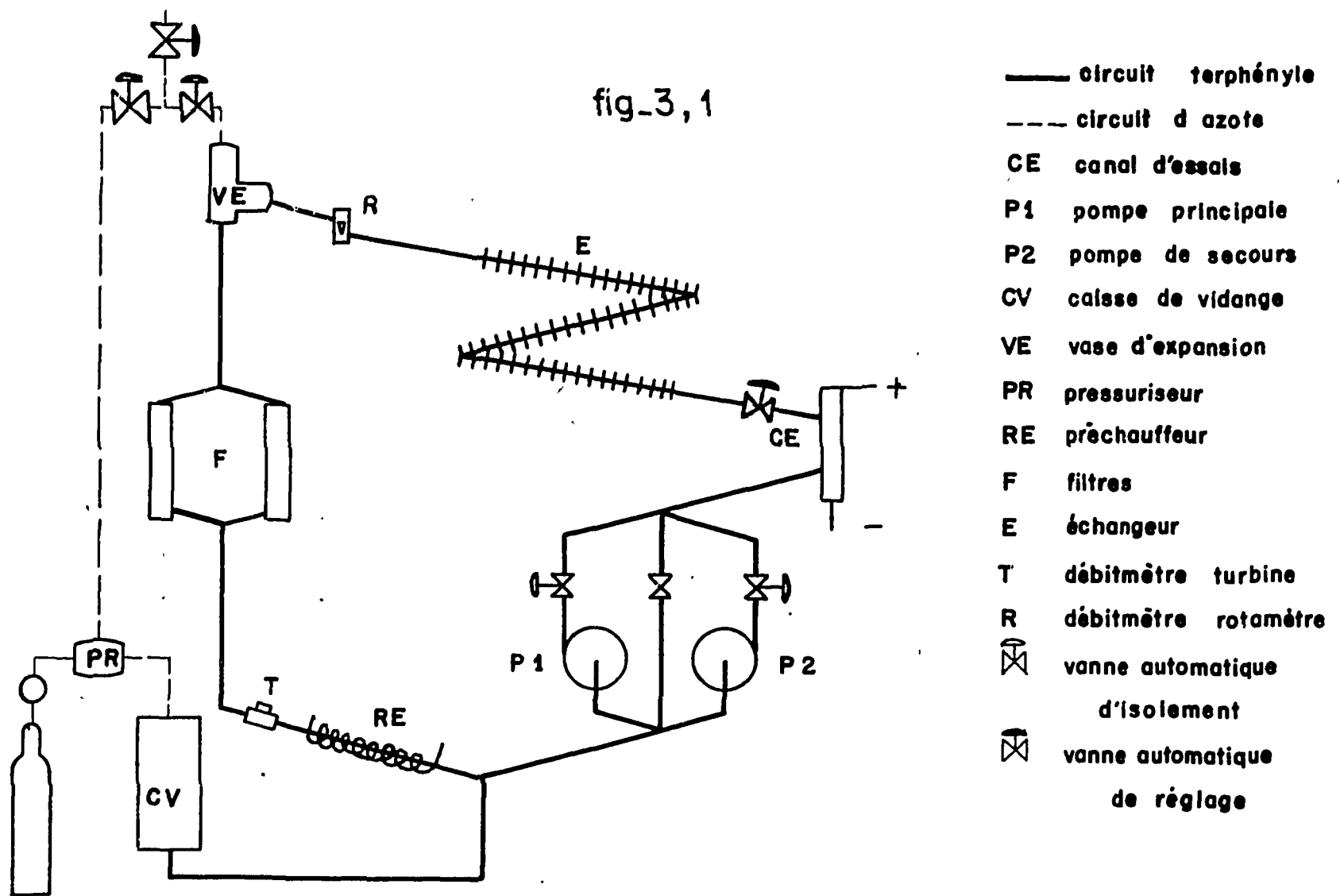
- On suit l'évolution du phénomène par son influence sur le coefficient de transfert de chaleur.

- Après l'essai, le dépôt obtenu est examiné et analysé.

a) le dispositif expérimental : boucle A

- la boucle

La boucle d'essais a été conçue pour fonctionner de façon continue pendant toute la durée d'un essai prolongé.



BOUCLE POUR L'ETUDE DE L'ENCRASSEMENT SCHEMA.

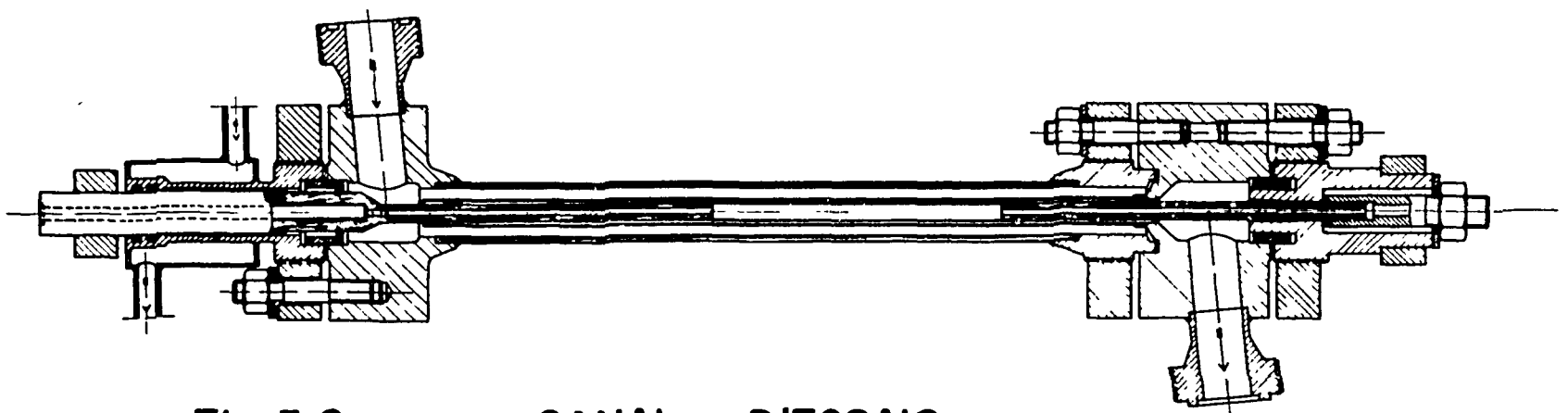


Fig-3.2 CANAL D'ESSAIS
de la boucle pour l'étude de l'encrassement

Ceci a conduit à automatiser l'installation et à doubler un certain nombre d'éléments du circuit.

La figure 3.1 représente le schéma de la boucle dont les caractéristiques principales sont les suivantes :

- pression maxima 40 kg/cm²
- température maxima sur l'ensemble de la boucle 450° C
- débit 0,6m³/h à 3m³/h environ

Le circuit principal, tuyauteries, vannes, pompes et instruments de mesure, ainsi que les capacités, sont en acier inoxydable. Une portion de circuit en acier doux est montée pour certains essais.

Pour éviter des pertes de produits importantes pendant un essai de longue durée, les vannes sont du type à soufflet et les pompes sont du type étanche, à rotor immergé et paliers à roulements à billes.

Deux filtres sont montés en parallèle, ils sont constitués chacun par une cartouche filtrante démontable en marche.

Les cartouches filtrantes sont en acier inoxydable fritté de porosité 3 μ ou 7 μ .

Une mesure de perte de charge placée aux bornes des filtres permet de connaître leur état de colmatage.

- l'ensemble du circuit est "tracé" au moyen de cordons chauffants sous gaine métallique et calorifugé à l'amiante. Il est divisé en une quarantaine de portions ayant chacune un circuit de réchauffage autonome et un thermocouple de contrôle. Un scrutateur mécanique permet de comparer successivement les indications des différents thermocouples à une tension de référence et assure la régulation de chauffage.

- Automatismes et sécurités

Prévue pour fonctionner sans surveillance pendant des périodes assez longues (nuits, fins de semaine), la boucle est dotée d'un certain nombre d'automatismes et sécurités.

La puissance du canal d'essais, le débit et la température du fluide sont régulés automatiquement. Les sécurités sont réparties en 2 classes, l'une conduit à l'arrêt du chauffage du canal d'essais, l'autre conduit en outre à la vidange de l'installation. On a conçu l'installation pour éviter le plus possible une telle vidange.

En cas de défaut d'un débitmètre ou d'une pompe, l'installation se remet en route automatiquement sur les appareils de secours ; de même, en cas de panne

de courant de courte durée.

- Le canal d'essais

La figure 3.2 représente ce canal ; il est à section annulaire et l'élément chauffant, à chauffage direct, est un tube lisse en acier inoxydable, de diamètre extérieur 12 mm, d'épaisseur 0,5 mm et de longueur active 20 cm.

Les cosses d'aménée de courant, de même diamètre que le tube chauffant, sont frettées sur ce dernier.

L'écoulement du fluide s'effectue entre ce tube et un tube concentrique dit "tube flottant", de diamètre intérieur 16 mm. Le centrage de l'âme chauffante sur ce tube est assuré en trois sections par des aiguilles de quartz calibrées maintenues dans des plans diamétraux à 120° par des méplats usinés sur les cosses d'aménée de courant.

L'âme chauffante et le tube flottant sont placés dans un tube de force.

Les brides d'extrémité sont isolées électriquement de l'enveloppe.

Les cosses d'aménée de courant sont percées en leur centre de façon à permettre le passage des fils de thermocouples soudés sur la paroi interne du tube chauffant.

Le canal d'essais ainsi réalisé a un diamètre hydraulique de 4 mm et les cosses d'aménée de courant jouent le rôle de longueurs de tranquillisation sur 50 diamètres à l'amont et 25 diamètres à l'aval.

Les vitesses d'écoulement peuvent varier entre 2 et 10 m/s. L'alimentation en courant alternatif permet une puissance réglable entre 0 et 48 kW (24 V, 2 000A), ce qui permettrait d'atteindre des flux de 350W/cm².

b) Conduite des essais

L'essai consiste :

• A faire circuler le produit aux caractéristiques prévues en mesurant périodiquement le coefficient d'échange et prélevant de temps en temps des échantillons de produits pour analyses.

• A examiner et analyser la surface du canal chauffant après le démontage de fin d'essais.

c) Essais effectués et résultats

L'objectif du programme était le suivant :

• Effectuer deux essais de longue durée avec du terphényle OM2 propre dans une boucle entièrement en acier inoxydable. Ces essais serviraient ensuite d'essais de référence.

• mettre en évidence deux sortes d'encrassement :

- encrassement particulaire prépondérant à faible vitesse et donnant un dépôt lisse contenant 80 % environ de matières organiques.
- encrassement moléculaire prépondérant à grande vitesse et qui donne un dépôt à peu près entièrement inorganique. Il y aurait transport de fer du circuit sur l'élément chauffant.

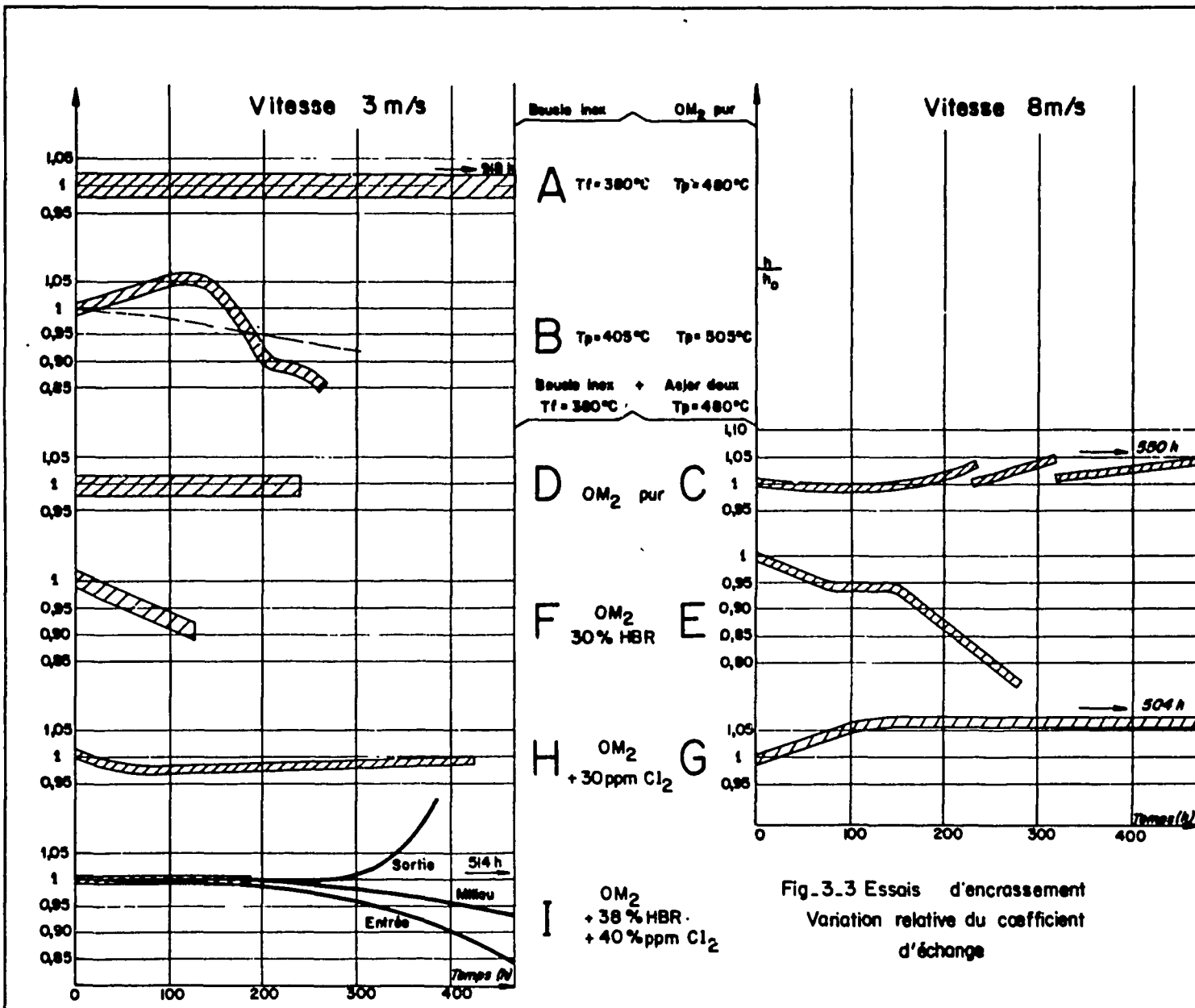
On a donc mis dans la boucle une section de corrosion en acier doux et on a fait circuler à grande et faible vitesse du terphényle OM2, contenant des produits lourds et du chlore.

Le tableau III résume le programme d'essais effectué.

Tableau III : programme des essais d'encrassement

repère	durée heures	vitesse m/s	température fluide paroi initiale		densité flux W/cm ²	section d'acier doux	produits lourds %	chlore ppm
			°C	°C				
A	918	3	380	465	52	non	0,5	faible
B	248	3	405	502	62	non	0 à 2,5	faible
C	550	7,5	380	470	140	oui	0,5 à 1	2
D	240	3	380	470	55	oui	15	2
E	280	7,5	382	478	117	oui	28	2
F	120	3	382	478	56	oui	27	3
G	504	7,5	380	476	117	oui	0,5	20
H	414	3	380	478	55	oui	1,5	30
I	515	3	380	482	50	oui	38	40

La teneur en eau du produit est restée inférieure à 100 ppm, en général.



La variation du coefficient d'échange est donnée en figure 3.3.

On peut tirer de ces essais les constatations suivantes :

. Lors de l'essai A, le coefficient d'échange n'a absolument pas varié pendant les 918 heures d'essai ; la surface chauffante était très propre après démontage. Rappelons que toute la boucle est alors en acier inoxydable.

. l'essai B était destiné à tester un fonctionnement à températures plus élevées ; on n'a pas trouvé sur la surface chauffante de dépôt dur et adhérent, mais une boue ressemblant à des produits de pyrolyse qui affectent notablement le coefficient d'échange : il a en effet baissé de 15 % en 250 heures.

Il semble donc qu'on ait atteint une limite de fonctionnement en température pour le terphényle OM2.

. les essais C et D devaient montrer l'influence d'une section de tuyautage en acier doux sur l'encrassement tout en utilisant un fluide propre ; le coefficient d'échange, lors de l'essai C, a augmenté de 4 % en 450 heures. La surface chauffante portait un dépôt rugueux contenant environ 95 % de fer.

Lors de l'essai D, le coefficient d'échange est resté parfaitement constant, malgré la présence de 15 % de produits lourds de pyrolyse ; la surface chauffante était parfaitement propre après l'essai.

. les essais E et F étaient effectués avec du terphényle OM2 additionné de produits lourds qui, on l'a vu par la suite, contenaient de l'oxygène sous forme combinée. Une section d'acier doux était en place dans le circuit. Le coefficient d'échange a baissé de 20 % en 250 heures pour l'essai à grande vitesse (E) et de 8 % en 100 heures pour l'essai à basse vitesse (F). La surface chauffante était recouverte, après les essais, d'un dépôt noir lisse et adhérent. Il atteignait une épaisseur de 25 microns pour l'essai E, ce qui correspondrait à une conductibilité thermique de ce dépôt voisine de la conductibilité du terphényle. A l'analyse chimique, ce dépôt contenait 22 % de fer et correspondrait à un taux de déposition de $7 \mu\text{g}/\text{h} \cdot \text{cm}^2$. Le dépôt de l'essai F contenait 8 % de fer et correspondrait à un taux de déposition de $6 \mu\text{g}/\text{h} \cdot \text{cm}^2$ environ.

. les essais G et H ont été réalisés avec du terphényle OM2 contenant 30 ppm de chlore, la section d'acier doux étant toujours en place. Les coefficients d'échange ont très peu varié et les surfaces chauffantes ne présentaient pratiquement pas de trace de dépôt à la fin des essais.

l'essai I a été réalisé avec du terphényle OM2 additionné de 38 % de

produits lourds fabriqués par pyrolyse en atmosphère exempte d'oxygène ; le terphényle contenait 40 ppm de chlore.

On a observé une diminution du coefficient d'échange de 12 % en 500 heures dans la partie amont, sur laquelle on a retrouvé un dépôt lisse ; par contre sur la partie aval, le coefficient d'échange a notablement augmenté et on a retrouvé un dépôt très divisé, sous forme de petites pyramides réparties sur la surface. On n'a pas encore analysé des dépôts, mais cet essai semble montrer que l'effet de l'encrassement n'est pas catastrophique, même avec de fortes teneurs en lourds et en chlore ; l'essai confirme que le très fort encrassement observé lors des essais E et F provient probablement de l'oxygène contenu alors dans le produit testé.

En résumé, on a constaté que seule avait une influence nette sur l'encrassement la présence d'oxygène combiné dans le terphényle. Des essais de vérification doivent être poursuivis, mais les essais déjà réalisés permettent de penser que l'encrassement peut être évité dans les réacteurs à liquide organique, même si ces liquides contiennent des produits lourds, à condition d'utiliser des terphényles très peu chargés en impuretés et ne contenant pas d'oxygène. Si on en croit la référence [5], les essais en pile sous radiation n'apportent pas de changement considérable par rapport aux essais hors pile ; les essais décrits ici apportent dès maintenant un élément optimiste aux projets du réacteur ORGEL.

4° CONCLUSION

Les essais effectués depuis 1961 au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble ont permis de fournir la corrélation de transfert de chaleur $Nu = 0,00835 Re_b^{0,9} Pr_b^{0,4}$

valable avec une très faible dispersion pour 5 terphényles différents.

D'autre part, ils ont montré que l'encrassement n'était pas sensible si on prenait des précautions pour assurer la propreté du produit et du circuit. On n'a, en effet, noté un encrassement des surfaces chauffantes à 480°C de température de paroi et 380°C de température de fluide que lorsque le terphényle contenait de l'oxygène combiné. Par contre, il est apparu qu'une température de paroi supérieure à 500°C entraînait une diminution du coefficient d'échange par pyrolyse locale du produit sur la paroi.

5° REMERCIEMENTS

Nous remercions la communauté Européenne de l'Energie Atomique qui a permis ces travaux exécutés sous contrat pour son compte et, en particulier, Monsieur LESAGE qui a été notre correspondant de cet organisme pendant toute la durée du contrat.

Nous exprimons notre gratitude à Messieurs COURTAUD et MARTINLEFEVRE qui ont dirigé les études expérimentales, à Messieurs MICHEL et TEYTU qui ont conduit la construction des installations, ainsi qu'au personnel du Service dont l'activité a permis d'obtenir ces résultats.

Bibliographie

- [1] MARTINELLI
Transaction of ASME
69-947 (1947)
- [2] Rapport Euratom. Rapport final du contrat
007-60-12-ORGF
Tome 1 : appareils de mesure de caractéristiques physiques
- [3] Rapport Euratom. Rapport final du contrat
007-60-12-ORGF
Tome 2 : étude du coefficient d'échange et de l'influence de l'encrassement sur l'échange de chaleur.
- [4] Rapport Euratom. Rapport final du contrat
085-62-12-ORGF
- [5] CHARLESWORTH D.H.
Fouling in organic-cooled systems
Rapport CRCE 1096 (Chalk River - Ontario - Canada) -

FIN