

EUR 4207 f

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE - EURATOM

LIBRARY

ETUDE THEORIQUE DE LA DIFFUSION DE
L'HYDROGENE DANS UN TUBE-GUIDE EN
ALLIAGE DE ZIRCONIUM :
PUITS D'HYDROGENE
ET EFFET DES JONCTIONS

par

B. HUBER et M. F. JAMET

1968



Programme ORGEL

Centre Commun de Recherche Nucléaire
Etablissement d'Ispra - Italie

Projet ORGEL

AVERTISSEMENT

Le présent document a été élaboré sous les auspices de la Commission des Communautés Européennes.

Il est précisé que la Commission des Communautés Européennes, ses contractants, ou toute personne agissant en leur nom :

ne garantissent pas l'exactitude ou le caractère complet des informations contenues dans ce document, ni que l'utilisation d'une information, d'un équipement, d'une méthode ou d'un procédé quelconque décrits dans le présent document ne porte pas atteinte à des droits privatifs ;

n'assument aucune responsabilité pour les dommages qui pourraient résulter de l'utilisation d'informations, d'équipements, de méthodes ou procédés décrits dans le présent document.

Ce rapport est vendu dans les bureaux de vente indiqués en 4^e page de couverture

au prix de FF 5.—	FB 50.—	DM 4	Lit. 620	Fl. 3.60
-------------------	---------	------	----------	----------

Prière de mentionner, lors de toute commande, le numéro EUR et le titre qui figurent sur la couverture de chaque rapport.

Imprimé par Vanmelle S.A.
Bruxelles, décembre 1968

Le présent document a été reproduit à partir de la meilleure copie disponible.

EUR 4207 f

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE - EURATOM

ETUDE THEORIQUE DE LA DIFFUSION DE
L'HYDROGENE DANS UN TUBE-GUIDE EN
ALLIAGE DE ZIRCONIUM :
PUITS D'HYDROGENE
ET EFFET DES JONCTIONS

par

B. HUBER et M. F. JAMET

1968



Programme ORGEL
Centre Commun de Recherche Nucléaire
Etablissement d'Ispra - Italie
Projet ORGEL

RESUME

L'extraction de l'hydrogène provenant de la corrosion du tube-guide par le réfrigérant organique au moyen d'ailettes soudées à la paroi externe du tube-guide (« puits d'hydrogène ») est étudiée. Les répartitions de la température et de la concentration en hydrogène dans le tube et les ailettes sont calculées à l'aide du code Difhyd. Une étude paramétrique ainsi que la conception de puits d'hydrogène pour le canal du Prototype ORGEL sont proposées. La propagation le long du tube-guide de l'hydrogène absorbé aux jonctions alliage de zirconium/acier est calculée.

MOTS-CLES

ZIRCONIUM
STEELS
JOINTS
ADSORPTION
HYDROGEN
CORROSION
ORGANIC COOLANT
ORGEL REACTOR
TEMPERATURE
ABUNDANCE
D - CODES

MATIERES

1.	INTRODUCTION	Page	3
2.	LOIS DE DIFFUSION D'HYDROGENE		5
3.	CALCUL DES PUIITS D'HYDROGENE		7
	3.1. Méthode de calcul		7
	3.2. Caractéristiques physiques utilisées		8
4.	ETUDE PARAMETRIQUE DES PUIITS D'HYDROGENE		10
5.	PUIITS D'HYDROGENE POUR LE PROTOTYPE ORGEL		11
	5.1. Données		11
	5.2. Conception de puits d'hydrogène		12
	5.3. Performances du système retenu et comparaison avec le tube-guide non-protégé		14
6.	PROPAGATION DE L'HYDROGENE ABSORBE AUX JONCTIONS		15
	6.1. Dérivation des formules		15
	6.2. Résultats		16
7.	CONCLUSION		17

-.o-.o-.o-.o-.o-.o-.o-.o-

REFERENCES

TABLEAUX

FIGURES



1. INTRODUCTION

Les alliages de zirconium sont le matériau de structure préféré des réacteurs modérés à l'eau lourde parce qu'ils permettent de réaliser une bonne économie neutronique. Leur emploi dans un réfrigérant hydrogéné, que ce soit de l'eau, de la vapeur d'eau ou un liquide organique, pose cependant le problème de l'hydruration, si la température dépasse 300°C environ. L'hydrogène provenant du réfrigérant peut donner lieu à la formation d'hydrure de zirconium, qui réduit la ductilité et la résilience du matériau.

L'avant-projet établi par le groupement industriel pour le concours Prototype ORGEL prévoit un tube-guide en Zr - 2,5% Nb; cet alliage est celui qui parmi les alliages de zirconium suffisamment développés pour être utilisés dans un réacteur de puissance absorbe le moins d'hydrogène. Néanmoins, il a paru prudent aux industriels de choisir une épaisseur importante (3,5 mm) et d'envisager le remplacement des tubes-guides après un fonctionnement d'environ 10 ans, pour éviter le risque de l'hydruration.

Afin de résoudre le problème de l'hydruration de façon plus économique, les voies suivantes ont été prospectées :

- développement d'alliages nouveaux absorbant moins d'hydrogène (Ozhennite, ZrFeCu);
- recouvrement du tube-guide par une peau formant barrière à l'hydrogène;
- extraction in situ de l'hydrogène par des "puits d'hydrogène".

Cette dernière solution fait l'objet principal de l'étude présente. Les puits d'hydrogène sont des ailettes soudées à la paroi externe du tube-guide. Le gradient thermique le long des ailettes fait diffuser l'hydrogène vers les sommets des ailettes, où il se dépose sous forme d'hydrure. A cet endroit l'hydrure n'est pas nocif, car les ailettes n'ont pas de fonction mécanique.

La protection de tubes-guides par des puits d'hydrogène a été inventée au Canada et un brevet a été demandé (1). L'efficacité de la protection fut démontrée par une expérience hors pile (2). Elle a d'ailleurs été constatée également en pile sur des gaines de combustible (3).

La section 6 de cette étude est consacrée à l'hydrogénation au niveau des jonctions, où les extrémités du tube-guide en zirconium sont raccordées à ses prolongements en acier. Diverses expériences ont en effet montré que de l'hydrogène provenant de l'organique pouvait facilement entrer dans les alliages de zirconium à travers l'acier, si les deux métaux sont liés métallurgiquement. C'est précisément le cas pour deux types de jonction développés dans le programme ORGEL: jonctions fabriquées par martelage à chaud et jonctions fabriquées par explosion. *) Les résultats disponibles ne

*) Les jonctions basées sur une liaison métallurgique se distinguent des jonctions mécaniques (mandrinées par exemple) par une étanchéité parfaite et un encombrement réduit.

permettant pas encore d'évaluer le débit d'hydrogène traversant les jonctions - en particulier, on ignore l'influence de la pression partielle d'hydrogène dans le réfrigérant - nous nous limitons ici à étudier comment l'hydrogène absorbé à une extrémité se propage le long du tube guide.

2. LOIS DE DIFFUSION D'HYDROGENE (4) (5)

Les forces motrices, qui font diffuser l'hydrogène dissous dans le zirconium, sont dues aux gradients de concentration et de température. L'hydrogène diffuse vers les zones de concentration faible - c'est la loi normale de toute diffusion (loi de Fick) - et vers les zones de basse température. Ainsi, le flux d'hydrogène est donné par la formule :

$$\vec{I} = -D \left(\text{grad } N_s + \frac{N_s Q}{R T^2} \text{ grad } T \right)$$

- \vec{I} = flux d'hydrogène
D = coefficient de diffusion
 N_s = concentration d'hydrogène dissous
Q = chaleur de transport
R = constante universelle des gaz
T = température absolue.

Si la concentration d'hydrogène dépasse la limite de solubilité, l'excès d'hydrogène précipite sous forme d'une seconde phase, l'hydrure de zirconium. On fait

l'hypothèse, qu'en présence d'hydrure, la solution est en équilibre avec l'hydrure, donc :

$$N_s = N \quad \text{pour} \quad N \leq S$$

$$N_s = S \quad \text{pour} \quad N \geq S$$

N = concentration totale d'hydrogène

S = limite de solubilité.

La concentration maximale possible est atteinte, si tout le métal est transformé en hydrure, donc :

$$N \leq C$$

C = limite de concentration.

La variation temporelle de la concentration obéit à la loi de continuité :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = - \operatorname{div} \vec{I}$$

t = temps.

3. CALCUL DES PUITTS D'HYDROGENE

3.1. Méthode de calcul

Les calculs sont fait à l'aide du code Difhyd qui est décrit en détail dans la référence (6).

Le calcul s'étend circonférentiellement - et, si les soudures ne sont pas continues, axialement - du plan médian d'une soudure jusqu'au plan médian entre cette soudure et la soudure consécutive. Les tubes-canal sont schématisés par des surfaces planes. Le domaine obtenu ainsi est découpé en zones rectangulaires et triangulaires pour la résolution des équations différentielles par la méthode des différences finies (voir fig. 9).

Le calcul se déroule en deux étapes :

- 1) Calcul thermique: Evaluation de la répartition de température, à partir des températures données de l'organique et de l'eau lourde. Le domaine de calcul comprend le tube-guide avec les ailettes, le gaz isolant et le tube de calandre.

- 2) Calcul de diffusion d'hydrogène: Le domaine de calcul comprend le tube-guide avec les ailettes. On considère qu'une zone en bout d'ailette est transformée en hydrure et on impose la condition $N_s = S$ à l'interface entre cette zone et le reste de l'ailette. Avec cette condition et considérant l'état d'équilibre ($\text{div } \vec{I} = 0$), on calcule la répartition de la concentration d'hydrogène.

Ensuite on calcule la quantité de l'hydrogène présent dans l'ensemble tube-ailettes, ce qui permet d'évaluer le temps de fonctionnement correspondant à l'état d'hydrogénation calculé.

3.2. Caractéristiques physiques utilisées

Données physiques pour le calcul thermique

Coefficients d'échange thermique *) :

- organique/tube guide : $1,4 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$
- tube de calandre/eau lourde : $0,15 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$

Conductibilités thermiques :

- alliages de zirconium (7) :
 $k = 0,07981 (1 + 1,54 \cdot 10^{-3} T) \text{ W/cm}^\circ \text{ K}$
- gaz carbonique (8) :
 $k = 2,52 \cdot 10^{-7} T^{1,156} \text{ W/cm}^\circ \text{ K}$
- azote (8) :
 $k = 3,417 \cdot 10^{-6} T^{0,762} \text{ W/cm}^\circ \text{ K}$

Coefficient d'émissivité global des tubes-canal (9) : 0,27.

Constante de Stephan-Boltzmann : $5,67 \cdot 10^{-12} \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{K}^4$

*) Ces valeurs correspondent aux conditions d'un canal ORGEL (vitesse d'organique égale à 10 m/s; convection naturelle pour l'eau lourde).

Données physiques pour la diffusion d'hydrogène

Taux d'absorption d'hydrogène (pour l'alliage Zr-2,5% Nb)
(10) (11) :

$$A = 49055 \exp(-9855/T) \quad \text{mg/dm}^2 \text{ j}$$

Coefficient de diffusion d'hydrogène (4) :

$$D = 2,17 \cdot 10^{-3} \exp(-8300/RT) \quad \text{cm}^2/\text{s}$$

Chaleur de transport (5) :

$$Q = 6000 \text{ cal/mole}$$

Limite de solubilité d'hydrogène (12) *) :

$$S = 1,2 \cdot 10^5 \exp(-8550/RT) \quad \text{ppm}$$

Limite de concentration d'hydrogène :

$$C = 18000 \text{ ppm}$$

*) Cette relation a été adoptée parce qu'elle découle du plus grand nombre d'expériences. Il ne paraît pas y avoir de différence significative entre les alliages d'intérêt (Zr-2, Zr Nb ect.) qui sont tous à faible quantité de métal d'appoint. Voir aussi (13) (14).

4. ETUDE PARAMETRIQUE

Une étude paramétrique a été faite afin d'évaluer l'influence des caractéristiques géométriques et des conditions de fonctionnement sur les performances des puits d'hydrogène.

On s'est basé sur des puits d'hydrogène en forme de bandes suivant des génératrices équidistantes du tube guide *). La ligne médiane de chaque bande est soudée en continu ou par point au tube-guide. Chaque bande représente ainsi une paire d'ailettes (voir fig. 7).

L'influence isolée des paramètres suivants a été examinée autour d'un point de référence

- épaisseur du gaz isolant
- rapport hauteur d'ailettes/épaisseur de gaz isolant
- longueur des ailettes
- épaisseur des ailettes
- nombre d'ailettes
- largeur de soudure
- longueur d'interruption de la soudure
- température d'organique
- nature du gaz isolant (CO_2 , N_2)
- taux d'hydrogénation
- densité d'échauffement par rayons γ

Les valeurs numériques utilisées sont données dans le tableau 1.

*) Il est aussi envisageable d'arranger les bandes circumférentiellement ou en hélice. Ceci serait avantageux si on craint un affaiblissement du tube-guide par la soudure. Les calculs présentés ici restent valables pour des telles configurations, à condition d'espacement d'ailettes égal.

Les résultats sont donnés dans les figures suivantes :

- température au bout d'ailette: Fig. 1
- pertes thermiques dues aux ailettes : Fig. 2
- concentration maximale d'hydrogène dans le tube-guide lorsque la limite de solubilité est atteinte en bout d'ailette: Fig. 3
- temps de fonctionnement pour atteindre la limite de solubilité en bout d'ailette : Fig. 4
- concentration maximale d'hydrogène dans le tube-guide lorsque la moitié de l'ailette est transformée en hydrure : Fig. 5
- temps de fonctionnement pour atteindre la transformation en hydrure de la moitié de l'ailette: Fig. 6

L'augmentation due aux ailettes de la température maximale locale du tube de calandre est en général négligeable (inférieure à 1 °C pour presque tous les cas étudiés).

5. PUIITS D'HYDROGENE POUR LE PROTOTYPE ORGEL

5.1. Données

Le tableau 2 donne les caractéristiques de conception et de fonctionnement du canal, prévues dans l'avant-projet du groupement pour le Prototype ORGEL. Ces caractéristiques seront adoptées ici pour la conception de puits d'hydrogène, à l'exception de l'épaisseur du tube-guide.

L'épaisseur prévue dans l'avant-projet (3,5 mm) - pour un tube-guide non-protégé - a été dictée par des considérations d'hydruration. Pour le tube-guide à puits d'hydrogène, nous adoptons une épaisseur de 2,5 mm, valeur qui est considérée comme le minimum pour des raisons de fabrication et qui est certainement suffisante du point de vue de la résistance mécanique *).

En conséquence de la réduction de l'épaisseur du tube-guide, l'épaisseur de l'espace isolant est portée de 5 à 6 mm.

5.2. Conception de puits d'hydrogène

Comme dans le paragraphe 4 on adopte des bandes soudées le long de génératrices du tube-guide. Une section très faible de soudure entre ailette et tube-guide serait suffisante pour l'extraction de l'hydrogène (voir paragraphe 4). La soudure doit cependant résister aux contraintes thermiques (cisaillement) dues à la différence des températures du tube guide et des ailettes **). Pour cette raison on adopte une soudure continue avec une largeur égale à 2 fois l'épaisseur de l'ailette.

Il paraît souhaitable d'éviter le contact entre les ailettes et le tube de calandre, principalement en raison de

*) Contraintes tangentielles dans le tube-guide de 2,5 mm d'épaisseur : 5,06 kg/mm² à 301°C (entrée du canal) et 3,74 kg/mm² à 360°C (sortie du canal).

***) Ces contraintes peuvent être réduites au moyen de fentes coupées dans les ailettes. L'effet de ces fentes sur l'extraction de l'hydrogène est négligeable.

la fragilité des ailettes en état hydruré. Il faut donc prévoir un certain jeu entre les sommets des ailettes et le tube de calandre, tenant compte de diverses tolérances de fabrication et de montage. D'autre part, l'extraction d'hydrogène est d'autant plus efficace que le rapport hauteur d'ailette/épaisseur de l'espace isolant est élevé. Une hauteur d'ailette égale à la moitié de l'épaisseur de l'espace isolant paraît être un bon compromis.

Le volume total des ailettes doit être faible en raison de l'absorption neutronique, mais suffisant pour emmagasiner l'hydrogène absorbé. Il est opportun de surdimensionner le volume afin d'avoir une sécurité contre les incertitudes des hypothèses de calcul. Moyennant un calcul simplifié on a choisi une section totale d'ailettes de $0,6 \text{ cm}^2$.

Il reste à déterminer le nombre, la longueur et l'épaisseur des ailettes. Des ailettes longues et minces donnent une température faible en bout d'ailette, ce qui est favorable pour l'extraction de l'hydrogène. Cet effet est contrarié par "l'effet d'écoulement" qui, à concentration d'hydrogène en aval (bout d'ailette) donnée, augmente la concentration en amont (tube-guide), analogue à une perte de charge hydraulique. L'extraction d'hydrogène la plus efficace serait obtenue avec des ailettes très nombreuses, très minces et perpendiculaires à la surface du tube-guide. Le nombre d'ailettes doit cependant être faible en raison du coût de fabrication.

En respectant les caractéristiques déjà fixées ci-dessus - en particulier hauteur et section totale des ailettes - on a étudié l'influence de la longueur et de

l'épaisseur des ailettes sur l'extraction de l'hydrogène, pour 2 et 4 paires d'ailettes. Les résultats, qui sont donnés dans le tableau 3 ont permis de choisir un système à 4 paires d'ailettes de 25 mm de longueur et de 0,3 mm d'épaisseur.

La figure 7 montre le système d'ailettes retenu.

5.3. Performances du système retenu et comparaison avec le tube-guide non-protégé

La figure 8 donne les dimensions du domaine de calcul schématisé, la figure 9 donne la répartition de température et la figure 10 donne la répartition de la concentration d'hydrogène et de la limite de solubilité.

Les résultats précédents sont relatifs à la sortie du canal, où la température, et en conséquence le taux d'hydrogénation, sont les plus élevés. L'échauffement γ , ayant un effet néfaste sur l'efficacité des puits d'hydrogène, est par contre maximum au milieu du canal. On a donc effectué des calculs pour différentes cotes axiales. Les résultats figurent dans le tableau 4. On peut en déduire, qu'à la fin du fonctionnement du canal la concentration maximale d'hydrogène existe à la sortie du canal.

Le tableau 5 donne les sections du tube-guide, les caractéristiques d'hydrogénation et les pertes thermiques pour les canaux sans et avec puits d'hydrogène.

6. PROPAGATION DE L'HYDROGENE ABSORBE AUX JONCTIONS

6.1. Dérivation des formules

Hyphotèses :

- un flux constant d'hydrogène (I_0) entre dans le tube-guide par une surface perpendiculaire à l'axe du tube (cote $x = 0$) ;
- la température est uniforme. En effet, comme on verra ensuite, l'hydrogène reste pratiquement confiné dans la partie du tube-guide qui est hors du coeur du réacteur et où la température est uniforme ;
- la concentration d'hydrogène ne dépasse pas la limite de solubilité ($N_s = N$).

Le problème se formule alors ainsi (voir section 2) :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = D \frac{\partial^2 N}{\partial x^2}$$

avec les conditions particulières :

$$N = 0 \quad \text{pour} \quad t = 0$$

$$N \rightarrow 0 \quad \text{pour} \quad x \rightarrow \infty$$

$$- D \frac{\partial N}{\partial x} = I_0 \quad \text{pour} \quad x = 0$$

La solution est *) :

$$N = I_0 \sqrt{\frac{t}{D}} \left[\frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\exp - \frac{x^2}{4Dt} \right) - \frac{x}{\sqrt{Dt}} \left(\operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \right]$$

Cette solution est représentée en paramètres sans dimensions dans la figure 11.

Pour la concentration maximale (au plan limite $x = 0$) on obtient :

$$N = 2 I_0 \sqrt{\frac{t}{\pi D}}$$

Notons que la concentration maximale croît avec la racine du temps.

6.2. Résultats

Des courbes N / I_0 en fonction de la distance x , pour une température de 400°C **) et pour différents temps de fonctionnement, sont données dans la figure 12. Pour des températures plus faibles la propagation de l'hydrogène est plus lente. Pour convertir les données de la figure 12 à 360°C , il faut multiplier N / I_0 et diviser x par 1,22.

*) Pour mémoire la définition d'error function complement) :

$$\operatorname{erfc} y = \int_y^\infty (\exp - \eta^2) d\eta$$

**) La constante de diffusion a été calculée à partir de la relation donnée dans la section 3.2.

On constate un pic accentué de concentration dans le plan de la liaison alliage de zirconium/acier (plan limite $x = 0$) et une propagation très lente de l'hydrogène le long du tube. Lorsque ce pic atteint la limite de solubilité, il faut craindre la formation d'une zone mono-phase d'hydrure ^{*)}, ce qui n'est certainement pas tolérable à cet endroit. Notons qu'il est envisagé de réduire le débit d'hydrogène traversant la jonction par recouvrement de la surface d'acier avec une couche d'AlSi et que la protection par des puits d'hydrogène serait également possible.

7. CONCLUSIONS

Dans les conditions de la filière ORGEL ^{**)} les puits d'hydrogène convenablement conçus sont capables de maintenir la concentration d'hydrogène dans un tube-guide en alliage de zirconium sensiblement au-dessous de la limite de solubilité. Ainsi ils préviennent la fragilisation du métal par la formation d'hydrure de zirconium. En particulier, les puits d'hydrogène permettent l'emploi d'un alliage bien connu - le Zr 2,5 Nb - jusqu'aux températures limites intrinsèques au concept ORGEL, sans remplacement du tube-guide durant la vie du réacteur et avec une épaisseur du tube non supérieure à la valeur demandée

*) La condition limite au plan $x = 0$ n'est alors plus $\partial N / \partial x = I_0$, mais $N = S$. Il en résulte que le débit d'hydrogène sortant du plan limite vers le tube-guide décroît. Le débit entrant par le plan limite du côté acier restant constant, l'interface jouerait un rôle de puits d'hydrogène.

***) Les résultats de l'étude présente permettent de penser que les puits d'hydrogène seraient également applicables à d'autres conditions, par exemple celles des réacteurs refroidis par la vapeur d'eau.

par des raisons autres que l'hydruration. Le volume d'ailettes nécessaire est faible et les pertes thermiques vers le modérateur ne sont en général que peu augmentées ou, dans certains cas, même diminuées.

Pour le Prototype ORGEL on propose un tube-guide de 2,5 mm épaisseur, muni de 4 paires d'ailettes suivant des génératrices du tube *) (voir figure 7). Les ailettes ne présentent qu'une section totale de $0,6 \text{ cm}^2$. La concentration d'hydrogène dans le tube-guide atteint 80 ppm après 34 ans **, à comparer à la limite de solubilité de 134 ppm.

Rappelons que pour le tube-guide sans puits d'hydrogène, qui est prévu dans l'avant-projet du Prototype, en raison de l'hydruration on a adopté une épaisseur de 3,5 mm et envisagé le remplacement après environ 10 ans de fonctionnement. En effet, la limite de solubilité est atteinte après 10,2 ans.

*) On s'est limité à 4 paires d'ailettes, en raison du coût de fabrication. Rappelons que le coût de fabrication a été avancé comme raison principale, pour ne pas adopter les puits d'hydrogène dans l'avant-projet du Prototype ORGEL. Une extraction sensiblement plus efficace serait obtenue avec des ailettes plus nombreuses, plus minces et plus courtes, à volume total d'ailettes invarié. Nous croyons que ces caractéristiques pourraient être réalisées de façon économique avec une bande enroulée en hélice, si une méthode idoine de fabrication était mise au point.

***) C'est lorsque la moitié d'ailette est transformée en hydrure.

Par comparaison avec cette solution, celle qui fait appel aux puits d'hydrogène offre les avantages suivants :

- section du tube-guide, y compris les ailettes, de 3 cm^2 plus faible ;
- pas de remplacement des tubes-guides ;
- risque réduit de fragilisation lors de baisses de température, car concentration d'hydrogène plus faible.

L'hydrogène entrant aux extrémités du tube-guide, en traversant les jonctions métallurgiques, donne lieu à un pic accentué de concentration d'hydrogène dans le plan de la liaison et ne se propage que très lentement le long du tube. Des résultats expérimentaux de débit d'hydrogène absorbé sont nécessaires pour apprécier définitivement l'importance du phénomène.

—°—°—°—°—°—°—°—°—°—°—

REFERENCES

- (1) Demande de brevet canadien n° 946919 du 3.12.1965.
- (2) B.J.S. WILKINS et A. SAWATZKY " Thermal Diffusion of Hydrogen in Finned Zircaloy-2 Pressure Tubes" AECL - 2634, Octobre 1966.
- (3) J.F. WALKER "The Behaviour of Zircaloy-2 and Zr-2,5% Nb Clad Uranium Dioxide Fuel in an Organic Coolant. The X-719 Irradiation". AECL-2661, novembre 1966.
- (4) A. SAWATZKY "The Diffusion and Solubility of Hydrogen in the Alpha-Phase of Zircaloy-2" J. Nucl. Mat. 2 (1960), p. 62.
- (5) A. SAWATZKY "Hydrogen in Zircaloy-2 : Its Distribution and Heat of Transport". J. Nucl. Mat. 2 (1960), p. 321.
- (6) M.F. JAMET "Code Difhyd. Méthode pour le calcul de la diffusion d'hydrogène dans un tube-guide à ailettes en alliage de zirconium". Rapport EUR à paraître.
- (7) B.J. SEDDON "Zirconium Data Manual". TRG Report 108(R), 1962.
- (8) R.A. SVEHLA "Estimated Viscosities and Thermal Conductivities of Gases at High Temperatures". NASA-TRR-132, 1962.
- (9) J. FAURE' et E. LABARRE "Isolement thermique d'un canal ORGEL par une lame de gaz stagnant". EUR-2175. f, 1964.
- (10) J. BOULTON "The Use of Zirconium Alloys in Organic Coolants". AECL - 2619, septembre 1966.
- (11) J. BOULTON "Some Aspects of Materials in Organic Cooled Reactors (A Summary of Canadian Experience)". AECL - 2640, Mai 1966.
- (12) J.J. KEARNS "Terminal Solubility and Partitioning of Hydrogen in the Alpha Phase of Zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4". J. Nucl. Mat. 22 (1967), p. 292

- (13) A. SAMATZKY and B.J. WILKINS "Hydrogen Solubility in Zirconium Alloys Determined by Thermal Diffusion" J. Nucl. Mat. 22 (1967), p. 304.
- (14) G.F. SLATTERY "The Terminal Solubility of Hydrogen in Zirconium Alloys between 30 and 400°C". J. Inst. Met., Vol. 95 (1967), p. 43.

-.o-.o-.o-.o-.o-.o-.o-.o-.o-

TABLEAU 1 : Etude paramétrique des puits d'hydrogène -
Valeurs numériques utilisées

Caractéristiques	Symbole	Unité	Valeur *)
Diamètre interne du tube-guide	-	mm	<u>100</u>
Epaisseur du tube-guide	-	mm	<u>2,5</u>
Epaisseur du tube de calandre	-	mm	<u>1,5</u>
Epaisseur du gaz isolant	E _g	mm	4 - <u>6</u> - 8
Hauteur d'ailette/épaisseur de gaz	H	-	1/4 - <u>1/2</u> - 3/4 - 1
Longueur d'ailette	L	mm	5 - <u>15</u> - 25
Epaisseur d'ailette	E	mm	0,25 - <u>0,5</u> - 1
Nombre de paires d'ailettes	N	-	3 - 4 - <u>6</u>
Largeur de la soudure	LS	mm	0,5 - <u>1</u> - 2
Longueur non soudée/soudée	LSS	mm/mm	<u>0</u> - 2/1 - 4/1
Température d'organique	T	°C	300 - 340 - <u>380</u>
Température d'eau lourde	-	°C	<u>80</u>
Nature du gaz isolant	-	-	<u>CO</u> ₂ - N ₂
Taux d'hydrogénation	-	ppmcm/s	<u>A</u> - 2A **)
Echauffement	W	W/cm ³	0 - <u>4</u> - 8

*) Lors de l'étude d'un paramètre, les valeurs soulignées sont utilisées pour les autres caractéristiques.

**) A = taux d'hydrogénation obtenu avec la relation donnée dans le paragraphe 3.2.

TABLEAU 2 : Canal du Prototype ORGEL - Caractéristiques de design et de fonctionnement

Tube de force

- matériau :	Zr-2,5% Nb
- diamètre interne :	110 mm
- épaisseur :	3,5 mm

Tube de calandre

- matériau :	Zr-2
- diamètre interne :	127 mm
- épaisseur :	2 mm

Réfrigérant

- nature	HB 40
- température d'entrée	301°C
- température de sortie, max.	360°C
- pression d'entrée	24 kg/cm ²
- pression de sortie	18 kg/cm ²

Gaz isolant

- nature	CO ₂
- pression	1 kg/cm ²

Modérateur

- nature	D ₂ O
- température	80°C

TABLEAU 3 : Canal Prototype ORGEL à puits d'hydrogène -
Influence de la longueur et de l'épaisseur
des ailettes.

Conditions de calcul :

- sortie du canal (température d'organique: 360°C;
échauffement : 2,58 W/cm³)
- hauteur d'ailettes : 3 mm
- section totale d'ailettes : 60 mm²

	Nombre de paires d'ailettes					
	2			4		
longueur des ailettes mm	25	30	35	20	25	30
épaisseur des ailettes mm	0,6	0,5	0,428	0,375	0,3	0,25
température bout d'ailette °C	319,9	310,3	300,4	311,6	299,2	286,1
concentration *) ppm	93,1	91,8	94,1	68,8	64,9	64,9
durée **) an	5,1	5,0	5,1	3,8	3,6	3,6

*) concentration maximum d'hydrogène dans le tube-guide lorsque la limite de solubilité est atteinte au bout d'ailette.

**) durée de fonctionnement pour atteindre la limite de solubilité au bout d'ailette.

**TABEAU 4 : Canal Prototype ORGEL à puits d'hydrogène -
Variation des performances le long du canal**

Configuration d'ailettes : voir figure 7

Distance à partir de l'entrée du canal/ longueur du canal	1/2	3/4	1
Température d'organique °C	330	347	360
Echauffement W/cm ³	5,69	5,69	2,58
Température au bout d'ailette °C	287,0	301,2	299,2
Concentration max. d'hydrogène dans le tube-guide lorsque la limite de solubilité est atteinte au bout d'ailette ppm	53,3	65,6	64,9
Durée de fonctionnement pour atteindre la limite de solubilité au bout d'ailette an	6,4	5,1	3,6
Limite de solubilité dans le tube- guide ppm	96,9	117,1	132,2

TABLEAU 5 : Comparaison des canaux Prototype ORGEL
sans et avec puits d'hydrogène

	Canal sans puits	Canal avec puits
Section de Zr Nb	tube-guide (110 x 117 mm ϕ): 12,48cm ²	-tube-guide (110 x 115 mm ϕ): 8,84cm ² -ailettes: 0,60cm ² -total: <u>9,44cm²</u>
Hydrogénation (sortie canal)	taux: 13,1 ppm/an; la limite de solubilité (134 ppm) est atteinte après 10,2 ans	la concentration atteint 79,6 ppm après 33,8 ans (lorsque la moitié d'ai- lette est transformée en hydrure)
Pertes thermiques (sortie canal)	15,3 W/cm (W par cm longueur de canal)	13,9 W/cm
Point chaud tube de calandre	86,8 °C	86,9 °C

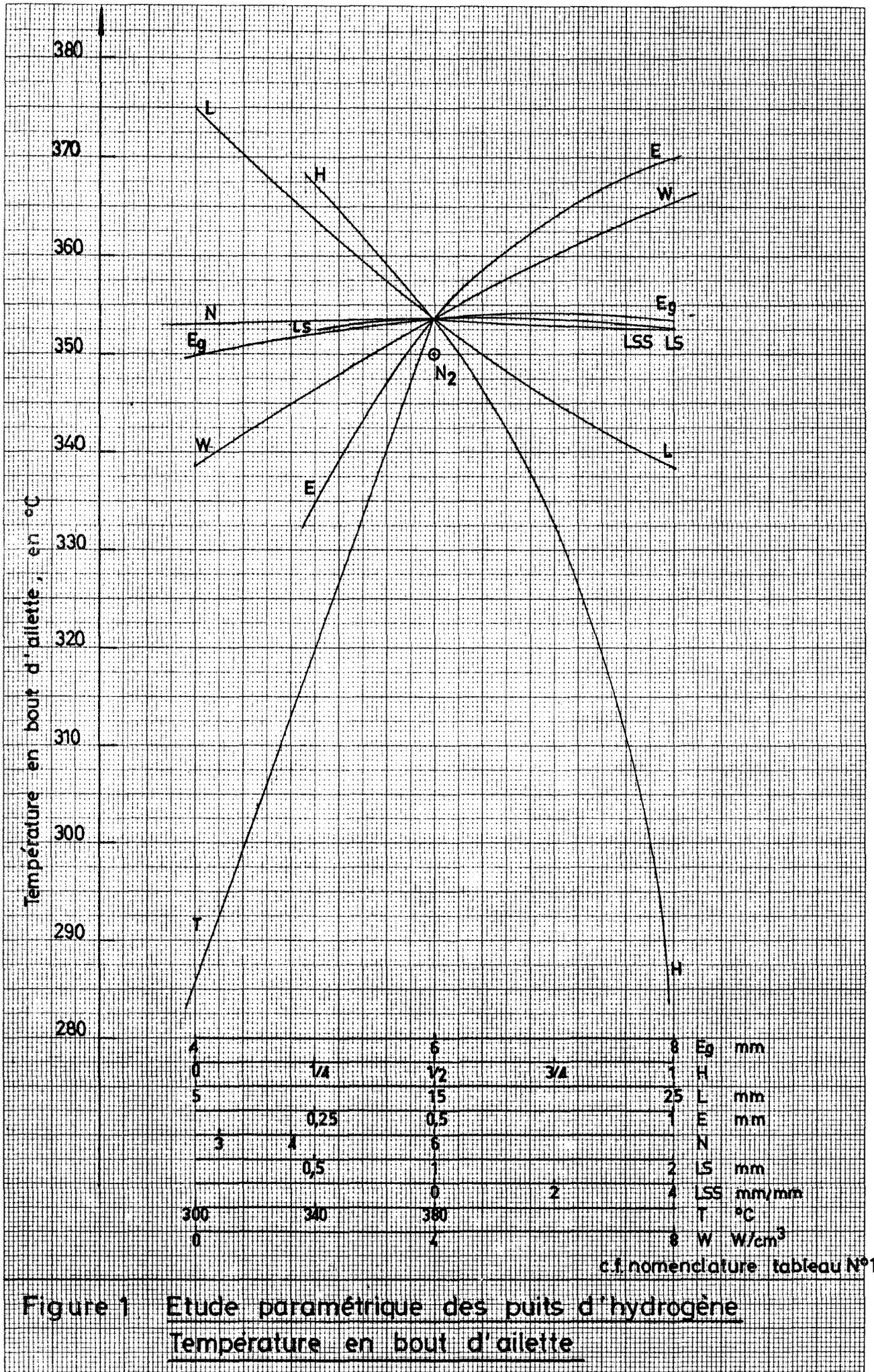
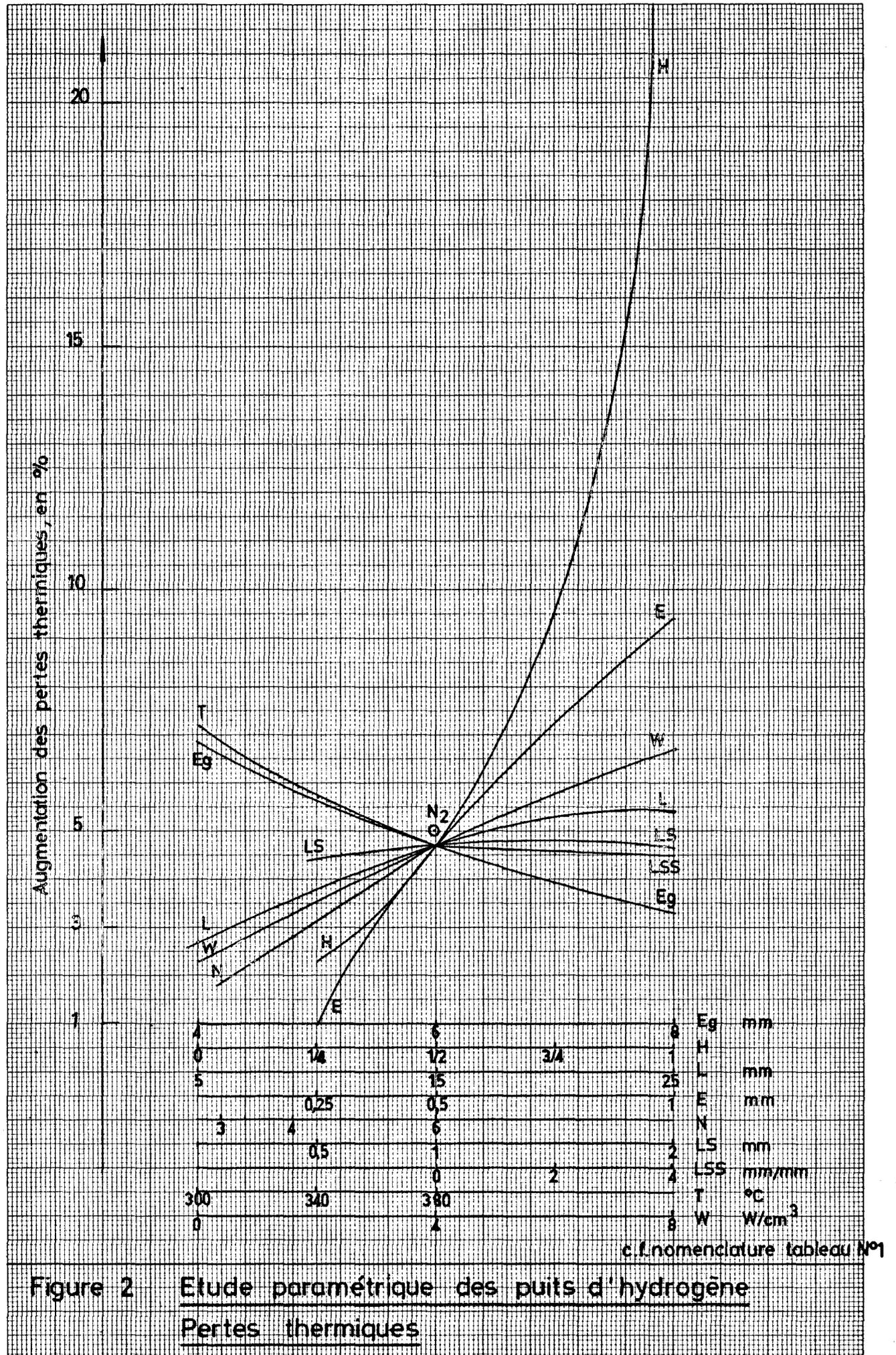


Figure 1 Etude paramétrique des puits d'hydrogène
Température en bout d'ailette



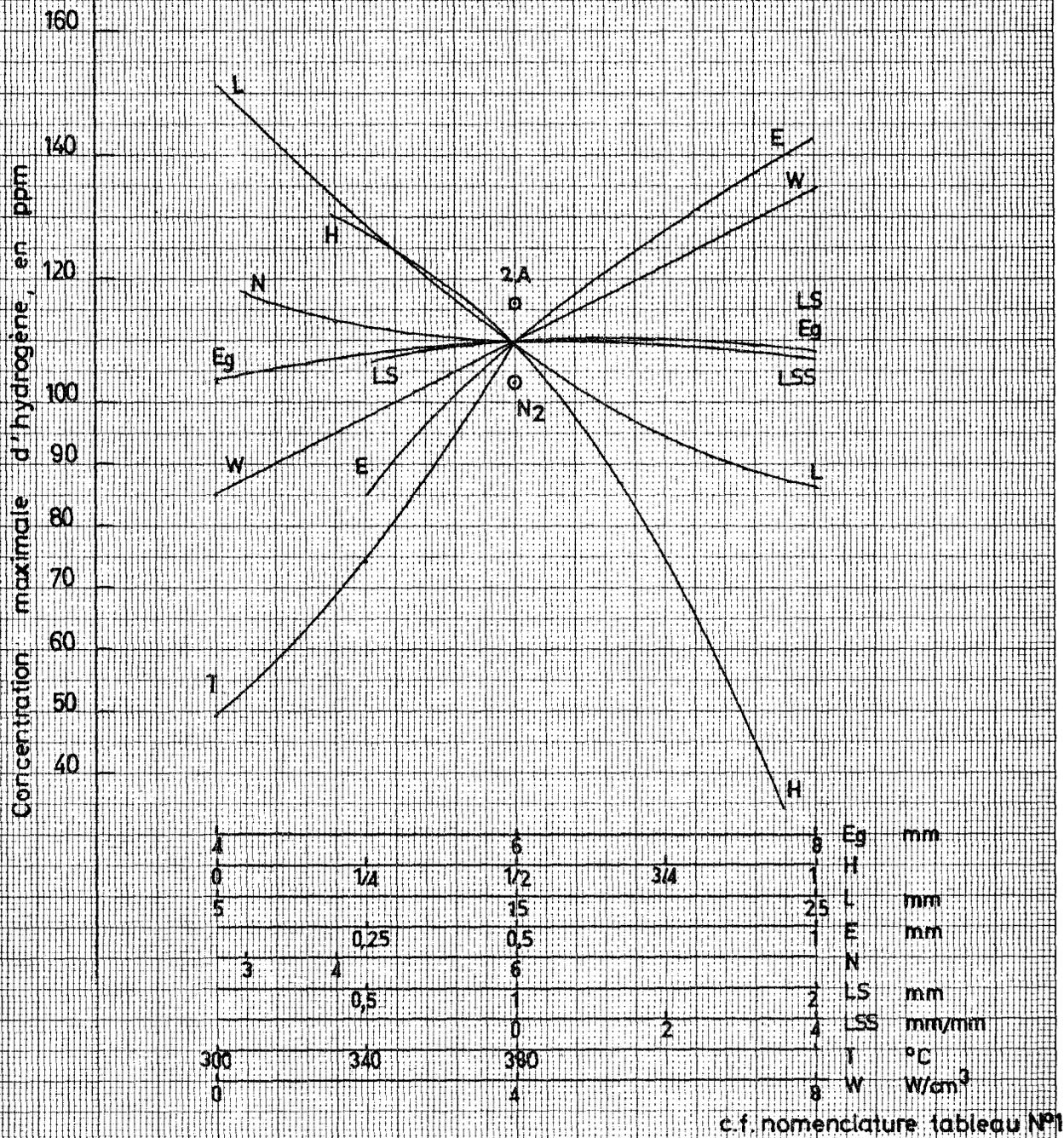


Figure 3 Etude paramétrique des puits d'hydrogène.
 Concentration maximale d'hydrogène dans le tube-
 guide lorsque la limite de solubilité est atteinte
 en bout d'ailette.

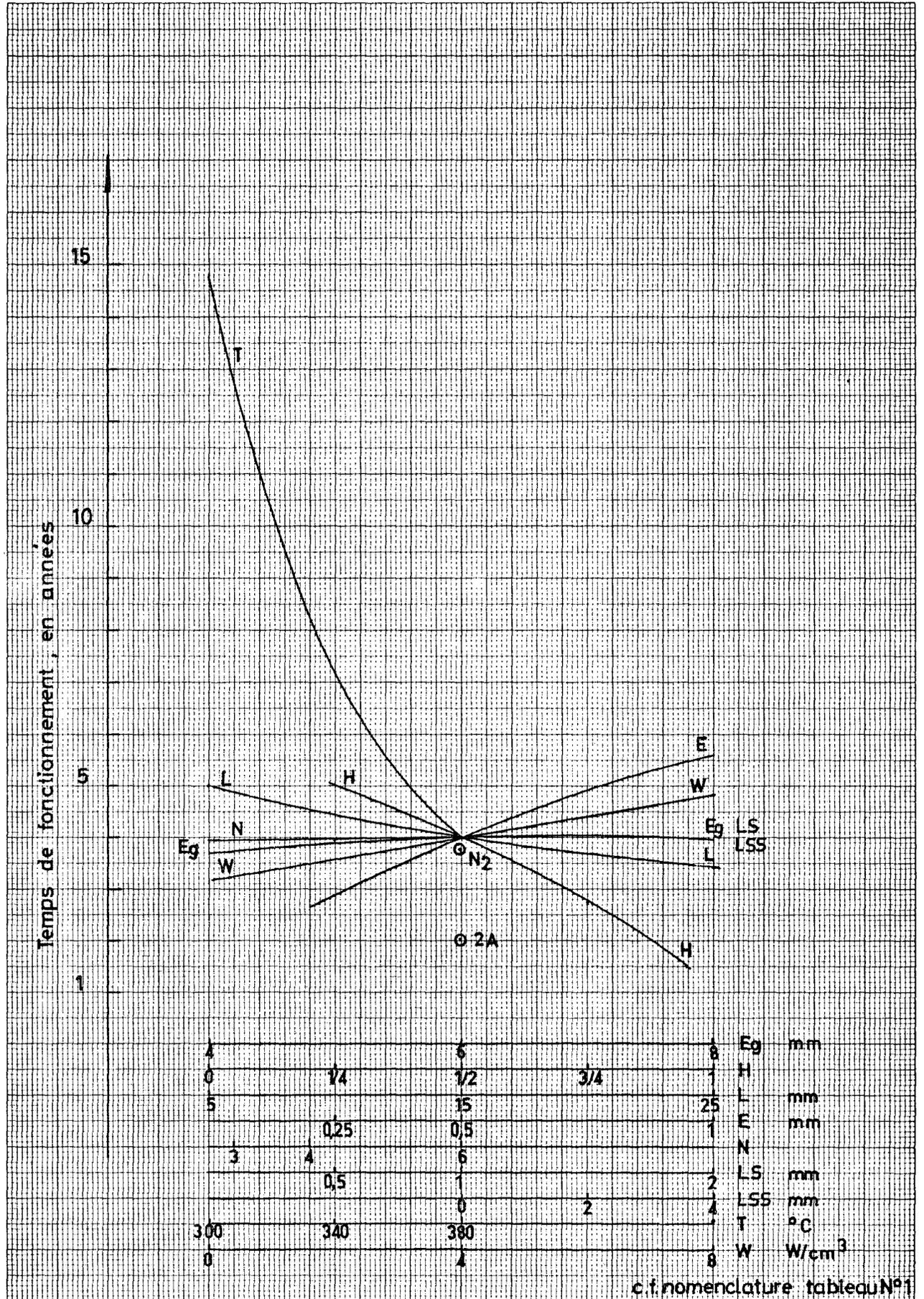


Figure 4 Etude paramétrique des puits d'hydrogène
Temps de fonctionnement pour atteindre la limite
de solubilité en bout d'ailette.

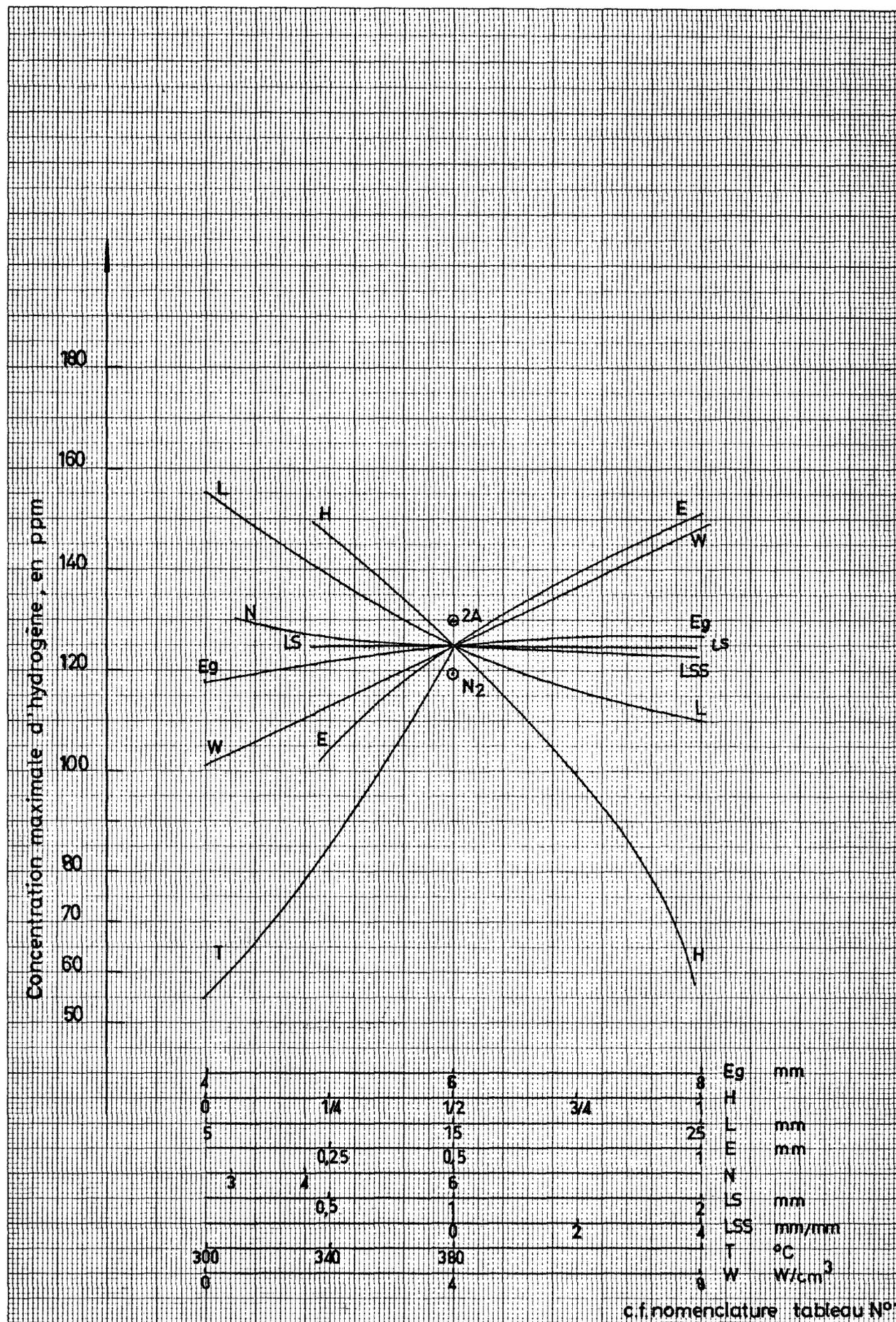


Figure 5 Etude paramétrique des puits d'hydrogène
 Concentration maximale d'hydrogène dans le tube-guide lorsque
 la moitié de l'ailette est transformée en hydrure.

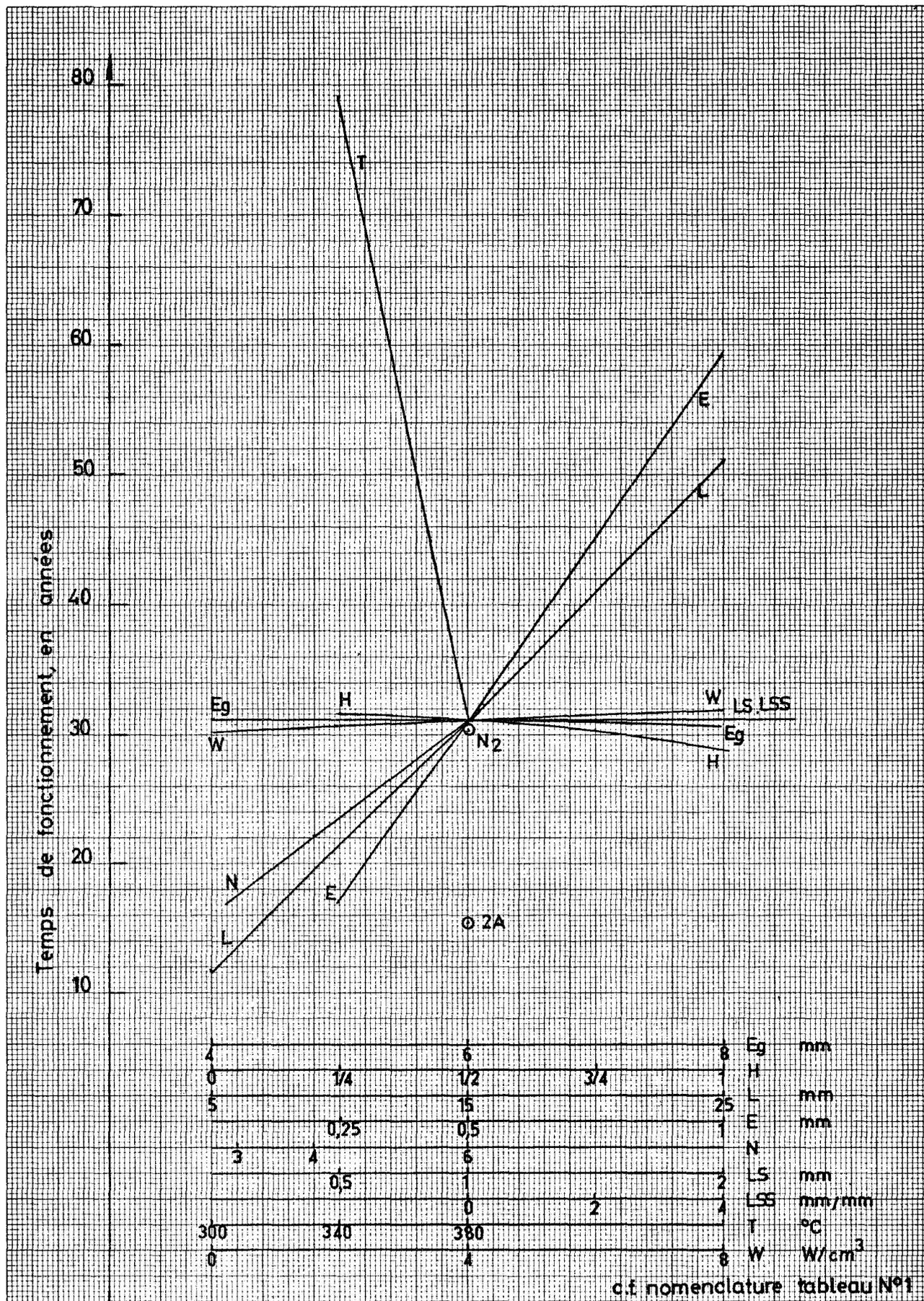


Figure 6 Etude paramétrique des puits d'hydrogène.
Temps de fonctionnement pour attendre la
transformation en hydrure de la moitié de l'ailette.

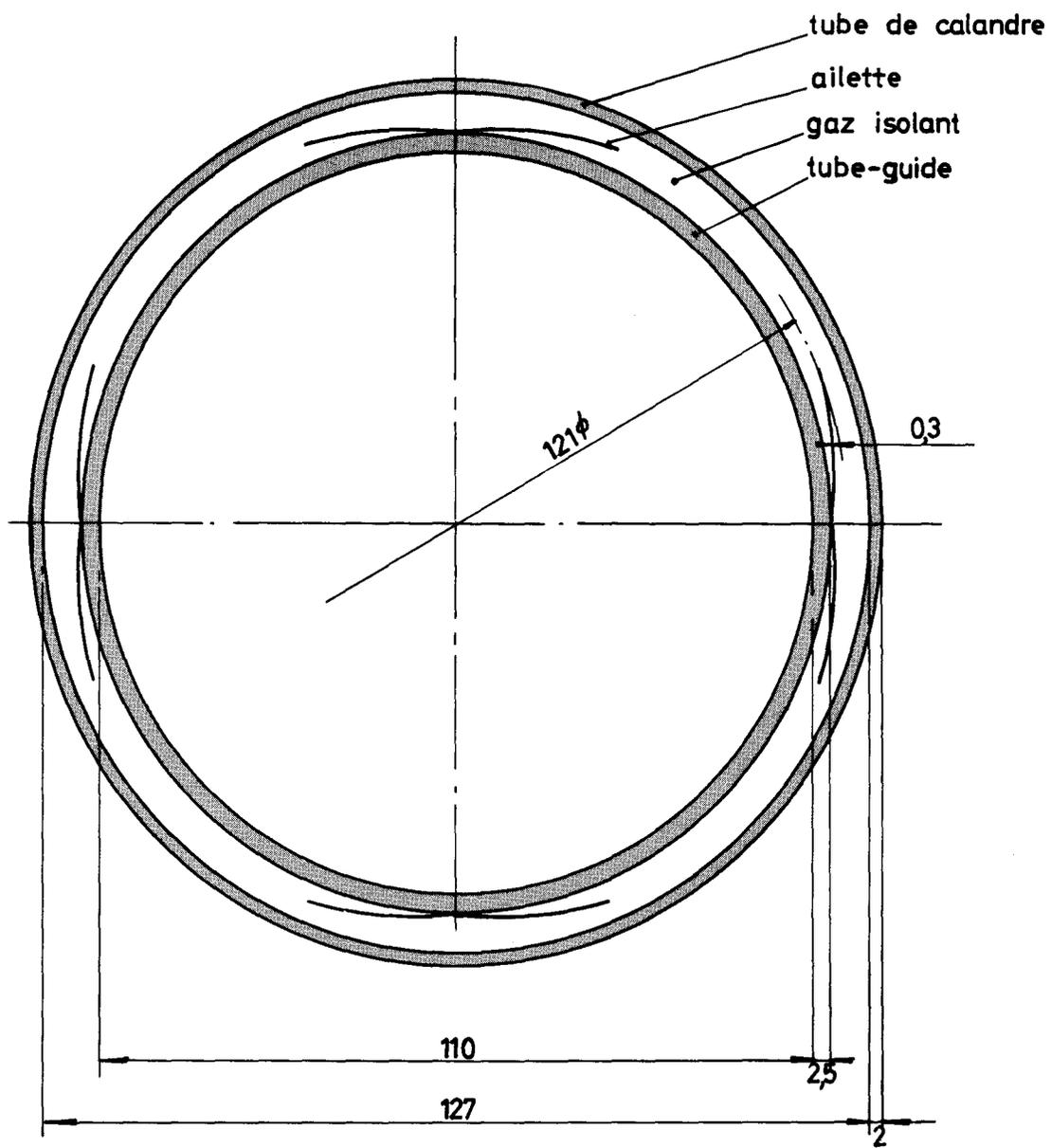


Figure 7

Canal Prototype à puits d'hydrogène.

Section du canal

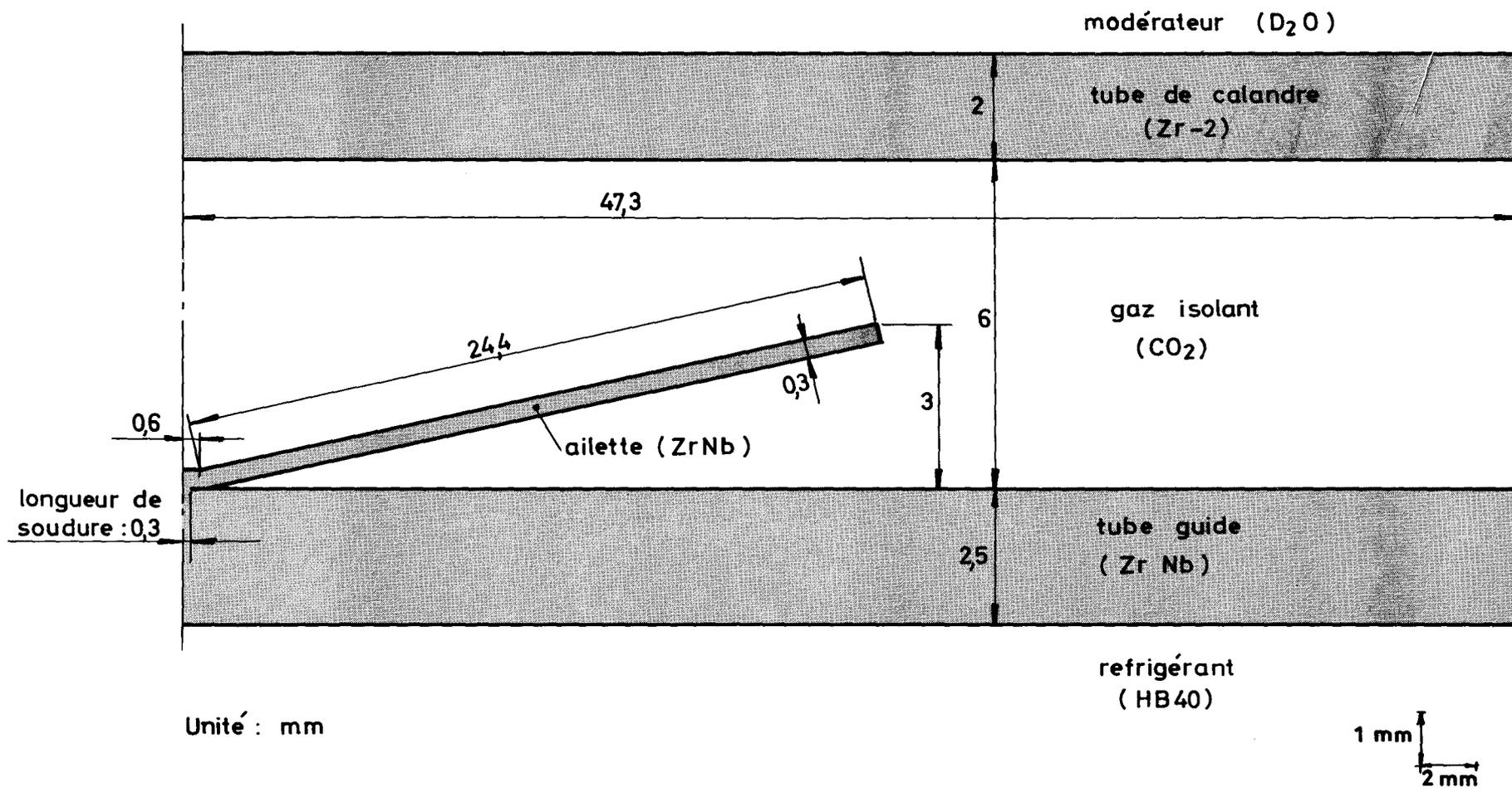
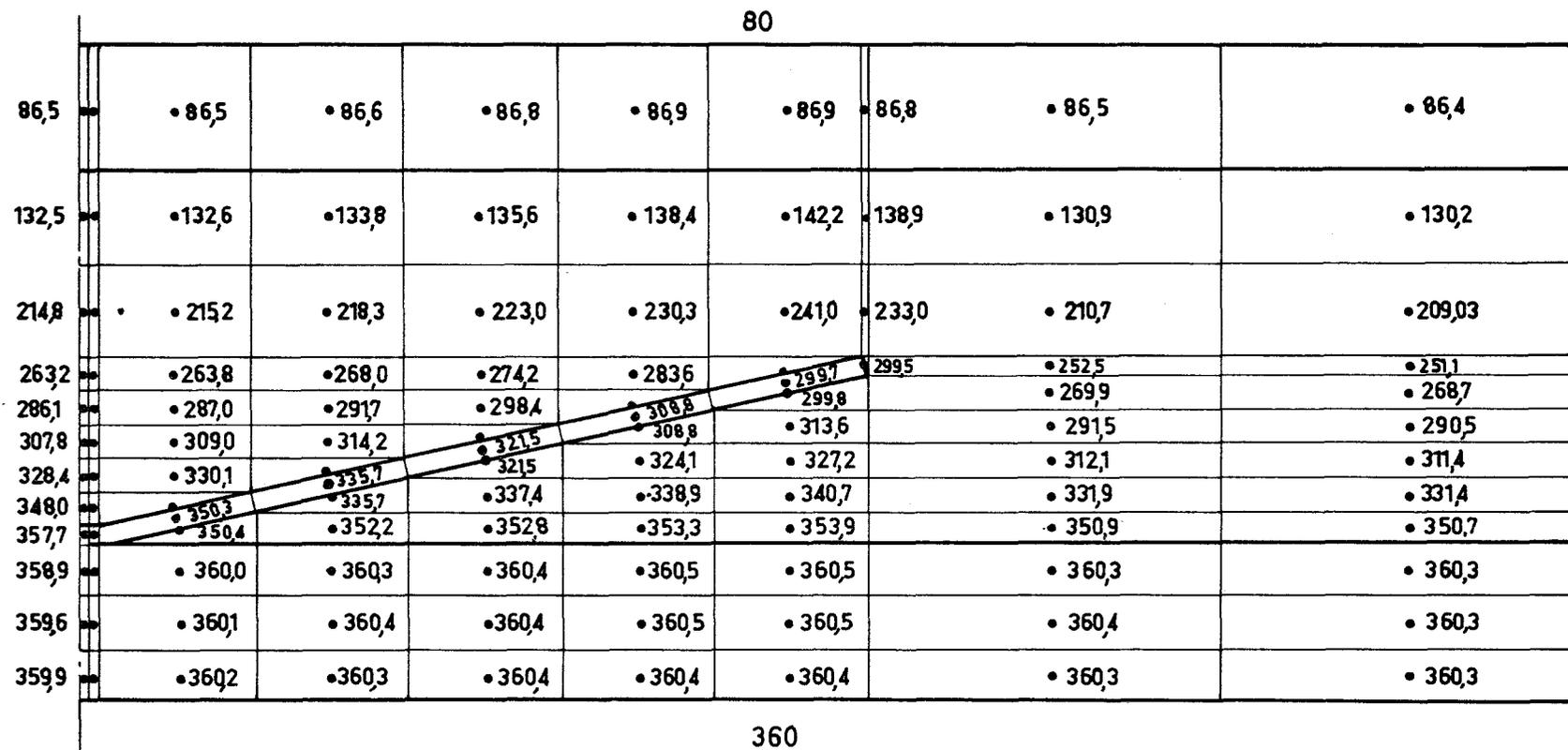


Figure 8 Canal Prototype ORGEL à puits d'hydrogène (domaine de calcul schématisé)
Dimensions



Unité : °C

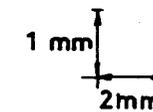
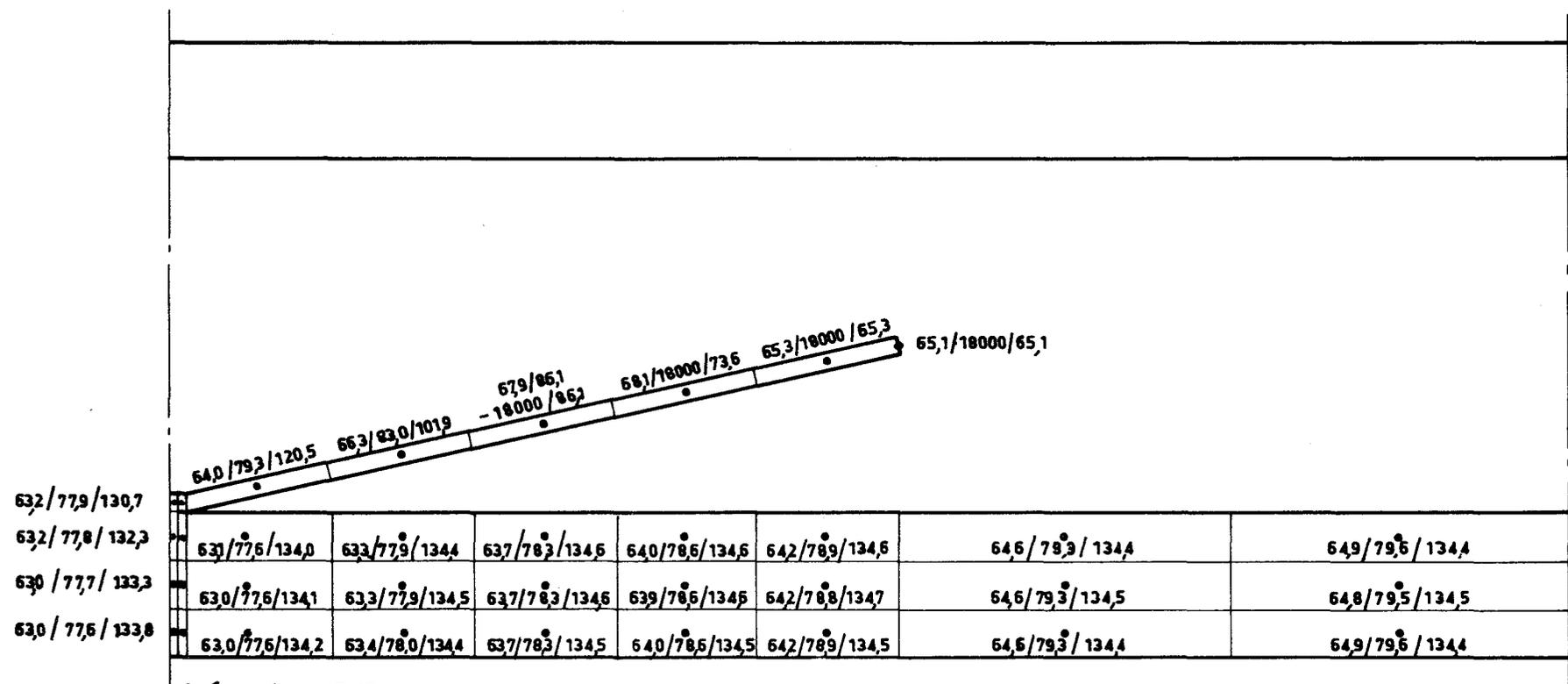


Figure 9 Canal Prototype ORGEL à puits d'hydrogène (domaine de calcul schématisé)
Répartition des températures



Légende A/B/C

- A = concentration d'hydrogène lorsque la limite de solubilité est atteinte en bout d'ailette (3,61 ans)
- B = concentration d'hydrogène lorsque la moitié d'ailette est transformée en hydrure (33,8 ans)
- C = limite de solubilité.

Unité : ppm

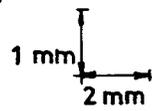


Figure 10 Canal Prototype ORGEL à puits d'hydrogène (domaine de calcul schématisé)
Répartition de concentration d'hydrogène et de limite de solubilité.

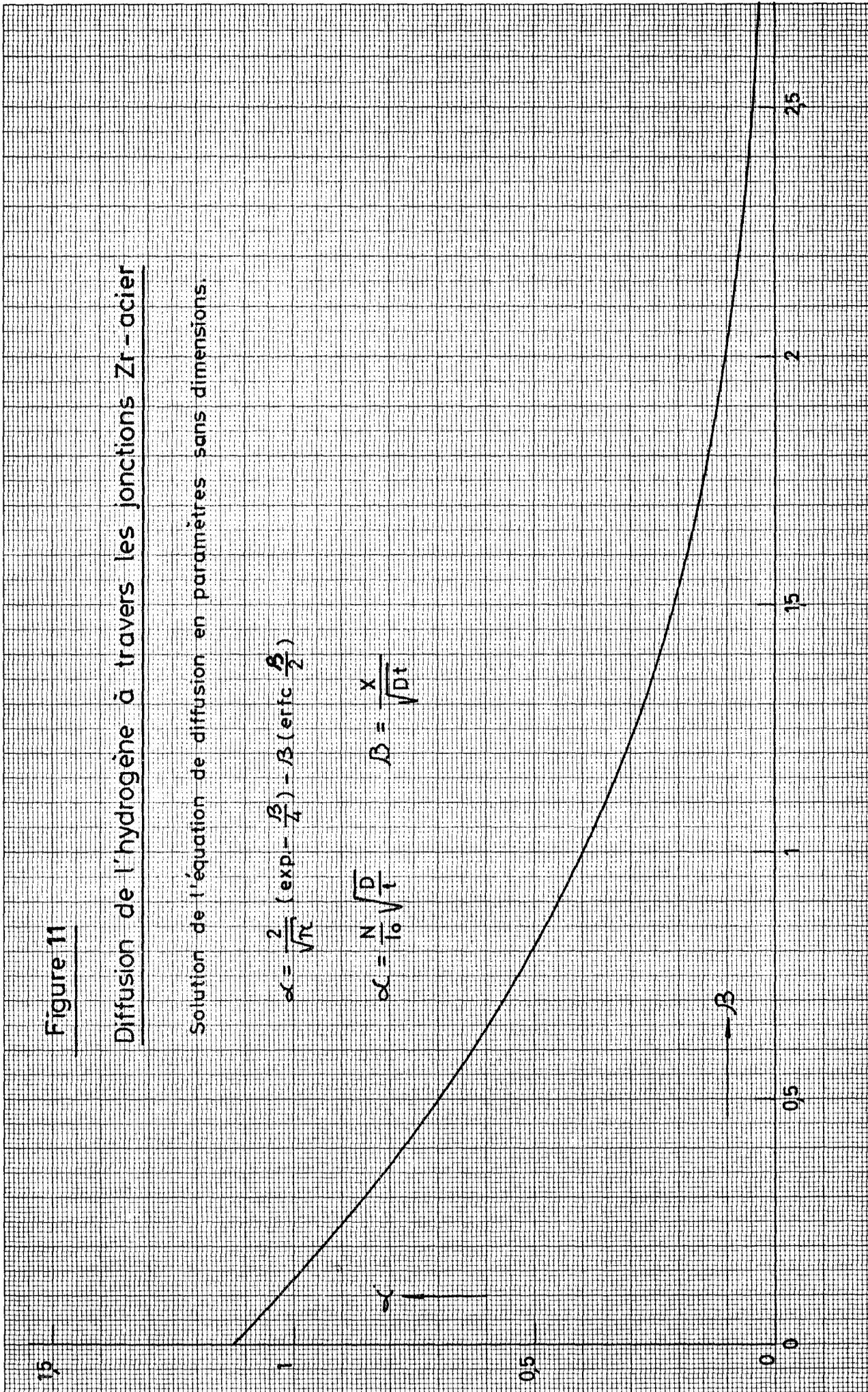
Figure 11

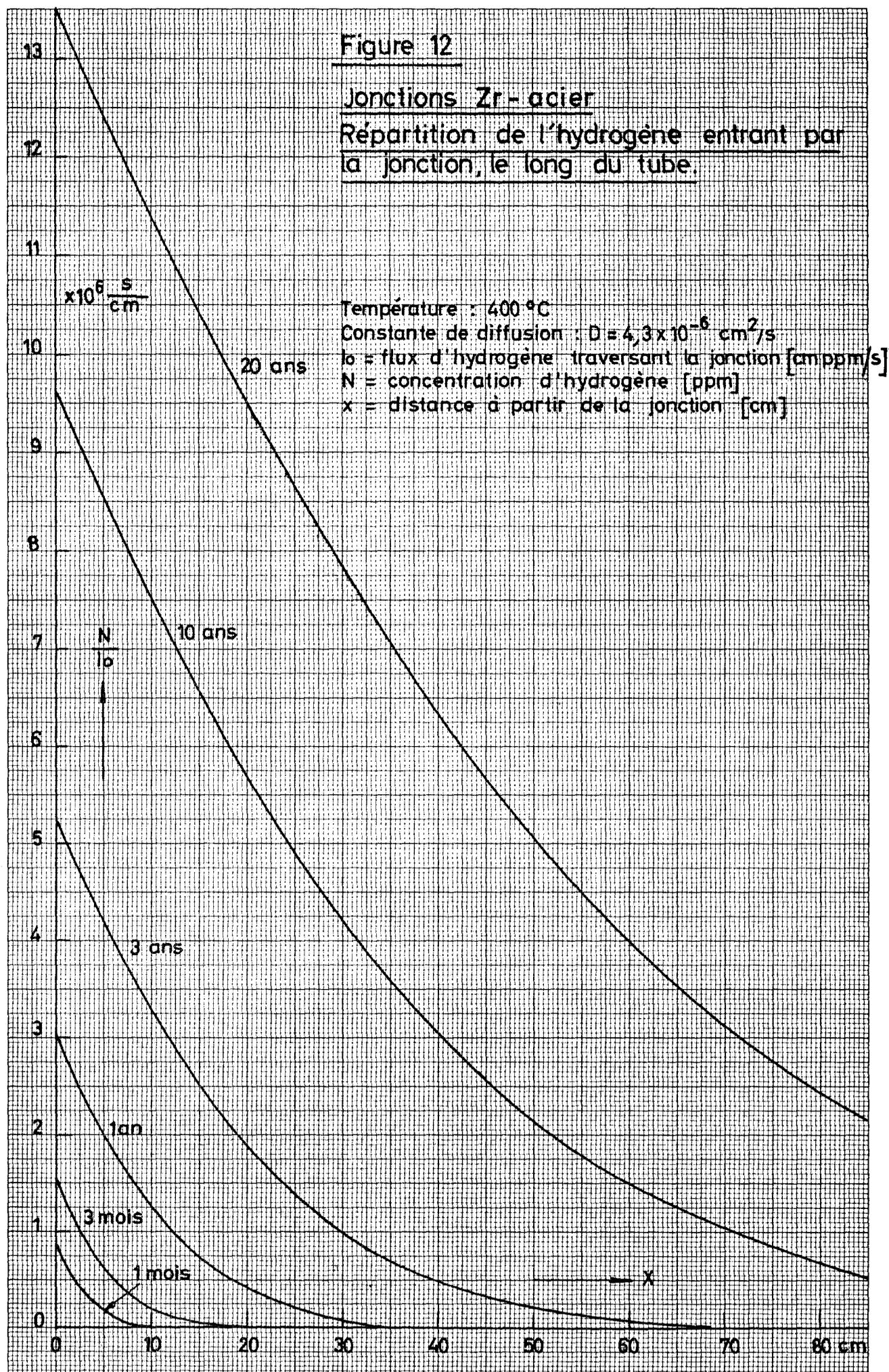
Diffusion de l'hydrogène à travers les jonctions Zr - acier

Solution de l'équation de diffusion en paramètres sans dimensions.

$$\alpha = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\exp - \frac{\beta^2}{4} \right) - \beta \operatorname{erfc} \left(\frac{\beta}{2} \right)$$

$$\alpha = \frac{N}{N_0} \sqrt{\frac{D}{t}} \quad \beta = \frac{x}{\sqrt{Dt}}$$





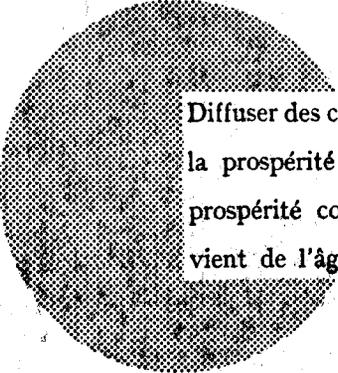
AVIS AU LECTEUR

Tous les rapports Euratom sont signalés, au fur et à mesure de leur publication, dans le périodique mensuel **EURATOM INFORMATION**, édité par le Centre d'information et de documentation (CID). Pour souscrire un abonnement (1 an : FF 75, FB 750) ou recevoir un numéro spécimen, prière d'écrire à :

Handelsblatt GmbH
"Euratom Information"
Postfach 1102
D-4 Düsseldorf (Allemagne)

ou à

Office de vente des publications
des Communautés européennes
2, Place de Metz
Luxembourg



Diffuser des connaissances c'est distribuer de la prospérité — j'entends la prospérité collective et non la richesse individuelle — et cette prospérité contribue largement à la disparition du mal qui nous vient de l'âge des ténèbres.

Alfred Nobel

BUREAUX DE VENTE

Tous les rapports Euratom sont vendus dans les bureaux suivants, aux prix indiqués au verso de la première page de couverture (lors de la commande, bien indiquer le numéro EUR et le titre du rapport, qui figurent sur la première page de couverture).

OFFICE CENTRAL DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

2, place de Metz, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
40-42, rue de Louvain - Bruxelles
BELGISCH STAATSBLAD
Leuvenseweg 40-42, - Brussel

LUXEMBOURG

OFFICE CENTRAL DE VENTE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
9, rue Goethe - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
26, rue Desaix - Paris 15^e

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P. O. Box 569 - London S.E.1

EURATOM — C.I.D.
51-53, rue Belliard
Bruxelles (Belgique)