

THESE

PRÉSENTÉE POUR L'OBTENTION DU GRADE DE
DOCTEUR

DE L'UNIVERSITÉ LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

ECOLE DOCTORALE : SCIENCES DE LA MATIÈRE, DU RAYONNEMENT ET DE
L'ENVIRONNEMENT

FILIÈRE : OPTIQUE ET LASERS, PHYSICO-CHEMIE, ATMOSPHERE

ADRIEN CARTONNET

Contribution à l'étude du rejet à l'environnement de l'iode radioactif lors d'une séquence accidentelle de type RTGV

Soutenue le 17/12/2013 devant la commission d'examen :

Pr	Abraham Francis	Université Lille 1 (ENSC), Président
Pr	Gasnot Laurent	Université Lille 1 (PC2A), Directeur de thèse
Dr	Demoulin François-Xavier	Université de Rouen (CORIA), Rapporteur
Pr	Simoni Eric	Université Paris Sud (IPN-Orsay), Rapporteur
Dr	Dehbi Abdelouahab	Paul Sherrer Institut-Suisse, Examineur
Dr	Cantrel Laurent	IRSN-Cadarache, Examineur
Dr	Goy Laurent	EDF-DIN/SEPTEN/Lyon, Examineur
Dr	Cousin Frédéric	IRSN-Cadarache, Invité

Remerciements

Ces trois années de thèse, réalisées à l'Institut de Recherche et de Sûreté Nucléaire (IRSN) sur le site de Cadarache, ont été riches en enseignements et en échanges, à la fois scientifiques et humains. Je souhaite donc adresser ici mes remerciements à quelques personnes qui ont pris part à cette aventure.

En premier lieu, je tiens à remercier mon directeur de thèse, Monsieur Laurent Gasnot pour la confiance qu'il m'a accordée en acceptant d'encadrer ce travail doctoral. J'ai été sensible à ses qualités humaines d'écoute et de compréhension tout au long de ce travail.

Un grand merci à Frédéric Cousin que j'ai sollicité à de nombreuses reprises pour la partie modélisation de ce travail de thèse. Ces conseils se sont avérés judicieux.

Je remercie Laurent Cantrel, qui a encadré les travaux portant sur la chimie de l'iode, pour ses précieux conseils.

Je n'oublie bien évidemment pas Sidi Souvi et nos longues discussions concernant la thermodynamique,...

Je remercie très chaleureusement Monsieur Victor Layly. Il n'a jamais cessé de m'impressionner par sa disponibilité, sa gentillesse, et ses conseils très éclairés. Qu'il trouve ici l'expression de ma plus sincère gratitude.

Je tiens à remercier Monsieur Eric Simoni, professeur à l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay, et Monsieur François-Xavier Demoulin, docteur au CORIA d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail.

J'exprime ma sincère reconnaissance au professeur Francis Abraham, président, à Monsieur Laurent Goy et à Monsieur Abdelouahab Dehbi d'avoir accepté d'être membres du jury de thèse.

Ce travail n'aurait pas vu le jour sans la participation financière d'électricité de France (EDF/SEPTEN), que je tiens à remercier vivement.

Je remercie également Monsieur Dider Vola, pour m'avoir accueilli comme doctorant dans son laboratoire et pour son soutien tout au long de ce travail.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans une pensée pour mes amis du Sud, Samuel et Émilie, Alice, Frédérique,... Merci de m'avoir aidé et encouragé, et pour m'avoir changé les idées quand j'en avais besoin.

Mes dernières pensées iront vers ma famille qui m'a soutenue dans la réalisation de cette thèse. Je tiens à remercier tout particulièrement mes parents, et Marjolaine pour leur soutien et leur écoute.

Table des matières

Introduction	19
I La modélisation du flashing	20
1 Introduction : observations expérimentales	22
2 Fragmentation mécanique	25
2.1 Morphologie d'un spray	25
2.2 Les différents régimes de fractionnement	31
2.3 Modélisation de l'atomisation primaire : corrélations	39
3 Fragmentation thermique	47
3.1 Modèles d'évaporation hors nucléation	48
3.2 Détente adiabatique et nucléation	64
3.3 Croissance d'une bulle de vapeur	74
3.4 Modèle d'évaporation avec croissance des bulles	80
3.5 Critères de rupture	83
3.6 Résumé des équations et principales hypothèses	95
4 Caractérisation du modèle : exemples de calculs	97
4.1 Détente adiabatique d'une goutte liquide	97
4.2 Evaporation d'une goutte sans germe	99
4.3 Evaporation et fragmentation d'une goutte en présence de germes	102
5 Validation : comparaisons modèle/mesures	107
5.1 Les essais NRC	107
5.2 Les essais INERIS	121
II Transfert primaire de l'iode (Flashing de l'iode)	124
1 Introduction : origine de la contamination du fluide primaire	125
2 Quelques références sur la spéciation de l'iode dans le circuit primaire	128
2.1 Chimie dans le primaire	128
2.2 Etat de l'art sur la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire	129

3	Spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire	132
3.1	Radiolyse de l'eau	132
3.2	Radiolyse de l'iode	139
3.3	Prise en compte des impuretés (Fe, Cu)	145
3.4	Calcul de la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire en régime permanent	147
4	Détermination des coefficients de partage de HOI, IO₃, I, I₂ et IO	158
4.1	Bibliographie	158
4.2	Méthodologie	160
4.3	Paramètres de calcul	162
5	Flashing de l'iode et transfert primaire	165
5.1	Le transfert primaire et le transfert secondaire	165
5.2	Solution simplifiée	167
5.3	Application à une distribution en tailles des gouttes	168
5.4	Cas de la formation de germes de vapeur suivie d'une micro-explosion	170
5.5	Les corrections à l'expression du taux de flashing	170
5.6	Cas de plusieurs espèces volatiles	171
5.7	Taux de transfert primaire de l'iode (ou taux de by-pass)	171
III	Application à une séquence RTGV (accident de dimensionnement)	173
1	Description phénoménologique d'une RTGV de dimensionnement	174
1.1	Fonctionnement normal	174
1.2	Fonctionnement accidentel	175
1.3	Transfert primaire et transfert secondaire	177
2	Applications à un transitoire RTGV	178
2.1	Organisation du calcul	178
2.2	Données d'entrée du calcul	179
2.3	Présentation des résultats et discussion	180
2.4	Synthèse	196
	Conclusion et perspectives	199

IV	Annexes	200
A	Distributions granulométriques	201
A.1	Définition d'une distribution	201
A.2	Caractérisation d'une distribution	202
A.3	Distribution de Rosin-Rammler	206
B	Modélisation d'un jet diphasique et relaxation cinétique des gouttes	208
B.1	Le modèle d'Epstein	208
B.2	Prise en compte du glissement	210
B.3	Solution simplifiée : fonction d'essai	211
C	Equation de Rayleigh	215
D	Coefficients de transfert en régime transitoire	217
D.1	Conduction à travers une plaque plane	217
D.2	Conduction dans une sphère liquide	218
D.3	Conduction dans une sphère liquide avec modification du gradient	219
D.4	Coefficients de transfert thermique en phase liquide : nombre de Nusselt	221
E	La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan	225
E.1	Transferts de chaleur et de masse (nombres de Nusselt et de Sherwood)	225
E.2	L'analogie de Reynolds	225
E.3	La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan dans le cas monodimensionnel	227
E.4	La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan dans le cas bidimensionnel	228
	Références	230

Table des figures

1	Schéma présentant les trois barrières de confinement d'un REP	12
2	Schéma d'un générateur de vapeur	14
3	Photographies de fissures sur des tubes GV [5] et [6]	15
4	Schéma général de calcul du transfert primaire des espèces iodées volatiles . . .	19
5	Cliché d'un jet liquide surchauffé obtenu par Brown et al. [13]	22
6	Clichés d'un jet liquide surchauffé obtenus par Nagai et al. [14] pour différentes températures	22
7	Visualisation de la différence entre un jet avec et sans flashing [15]	23
8	Distributions granulométriques obtenues par Reitz [15]	23
9	Description d'un jet diphasique d'après Faeth et al. [18]	25
10	Visualisation ombroscopique de l'évolution temporelle d'un spray [26]	29
11	Fractionnement primaire/fractionnement secondaire, d'après Hermann [27] . . .	31
12	Courbe de stabilité des jets liquides, d'après Leipertz [29] (Longueur du cône liquide en fonction de la vitesse d'injection)	32
13	Photos des différents régimes de rupture, d'après Leroux [30]	32
14	Régime de Rayleigh [31]	32
15	Premier régime d'action aérodynamique [31]	33
16	Deuxième régime d'action aérodynamique [31]	33
17	Régime d'atomisation [31]	33
18	Les critères de transitions des différents modes de fractionnement	35
19	Evolution du nombre de Weber critique en fonction du nombre d'Ohnesorge [35] . . .	37
20	Atomisation simple	37
21	Atomisation en sac	37
22	Atomisation par arrachement	38
23	Atomisation explosive	38
24	Evolution du SMD en fonction de la vitesse à la brèche pour différentes corrélations . . .	44
25	Evolution du SMD en fonction de la vitesse à la brèche pour les deux corrélations proposées par Witlox et al. [44]	45
26	Schéma d'une goutte dans un écoulement gazeux	55
27	Evolution du Nu_{liq} quand $t \rightarrow \infty$ en fonction du Pe_{liq} de Abramzon et Sirignano [9]	58
28	Profils axiaux de la vitesse liquide, gaz et du taux de vide	60
29	Profils de relaxation pour différentes tailles de gouttes	61

30	Evolution du paramètre B en fonction du Re_{d0} pour le calcul de \bar{Nu}_{gaz}	62
31	Evolution du nombre de Nusselt liquide moyen en fonction du paramètre B	63
32	Diagramme thermodynamique P-V-T	64
33	Schéma d'une détente adiabatique : détente jusqu'à un état métastable (T_l^*) puis formation de germes à pression constante (T_l)	64
34	Travail minimal à fournir pour créer un germe de rayon r^*	66
35	Comparaisons de différentes mesures de croissance de bulles avec le modèle MRG et les deux cas limites [60]	78
36	Evolution du rayon et de la température d'une goutte en évaporation au cours du temps pour deux nombres de Nusselt ($Nu_{liq} = 6.58$ et $Nu_{liq} = 17.9$)	100
37	Evolution du taux de flashing obtenu avec le modèle de transfert en phase gaz pour différentes fractions molaires	101
38	Evolution du rayon d'un germe en fonction du degré de surchauffe	102
39	Evolution du rayon d'un germe, du taux de vide dans la goutte et de la température de la phase liquide	103
40	Evolution du rayon d'un germe de vapeur et de la goutte au cours du temps	104
41	Evolution du taux de vide et de la température de la phase liquide en fonction du temps pour deux fractions molaires	105
42	Dispositif expérimental de la NRC	108
43	Schéma du dispositif expérimental pour le type de brèche fente	108
44	Exemples de deux plaques de collecte pour deux granulométries différentes [67]	109
45	Granulométries = $f(\Delta T)$ (type de brèche : guillotine) ($x_{v\infty} = 1.0$)	112
46	Granulométries = $f(\Delta T)$ (type de brèche : guillotine) ($x_{v\infty} = 0.8$)	113
47	Granulométries = $f(\Delta T)$ (type de brèche : guillotine) ($x_{v\infty} = 0.6$)	114
48	Granulométrie = $f(\Delta T)$ (type de brèche : fente) / $xv_{\infty} = 1$	115
49	Granulométrie = $f(\Delta T)$ (type de brèche : fente) / $xv_{\infty} = 0.8$	116
50	Granulométrie = $f(x_{v\infty})$, pour une forte dépressurisation	117
51	Photographies du dispositif expérimental de l'INERIS	121
52	Evolution du débit surfacique en fonction de la différence de pression amont-aval [1]	122
53	Différents essais INERIS	123
54	Photographies d'une pastille de combustible et d'une gaine fissurée	125
55	Protocole de mesure issue de la publication de Lin [71] (1980)	128
56	Fraction d'iode moléculaire mesurée par Voillequé (1990), t=0 h correspond à l'arrêt du réacteur (les carrés blancs sont des mesures inférieures à la L.D).	131
57	Analyses chimiques effectuées sur le circuit primaire en fonctionnement normal et transitoire	131

58	Mécanismes de la phase physico-chimique et de chimie hétérogène de la radiolyse de l'eau [77]	134
59	Spéciation de l'iode = $f(ddd)$	151
60	Spéciation de l'iode = $f(T_{liq})$	152
61	Spéciation de l'iode = $f(pH)$	153
62	Spéciation de l'iode = $f([I^-])$	154
63	Spéciation de l'iode = $f([O_2])$	155
64	Spéciation de l'iode = $f([Fe^{2+}])$	156
65	Spéciation de l'iode = $f([Cu^{2+}])$	157
66	Potentiels d'interactions possibles d'une molécule	160
67	Evolution d'un système soluté-solvant vers un système avec solvant pur	161
68	Fenêtrage pour le calcul de l'énergie libre de solvation	162
69	Géométries des molécules HOI et IO ₃	163
70	Schéma du circuit primaire et secondaire d'un REP	175
71	Volumes de contrôle du module CESAR	178
72	Localisation des différents modules du calcul	179
73	Evolution de la pression du circuit primaire et du circuit secondaire	185
74	Evolution de la température du circuit primaire et du circuit secondaire	185
75	Evolution du débit liquide au niveau de la brèche	186
76	Evolution de la vitesse liquide au niveau de la brèche	186
77	Taux de flashing CESAR (ou DROPLET sans germes) et taux de flashing DROPLET	187
78	Taux de flashing thermohydraulique et taux de flashing iode	187
79	Evolution de la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire	188
80	Evolution de la spéciation chimique de l'iode (traces) dans le circuit primaire	188
81	Pic d'iode	189
82	Distribution granulométrique des gouttes générées au niveau de la brèche pour différents temps	189
83	Evolution du rejet en iode (transfert primaire)	190
84	Evolution de la pression du primaire et du secondaire	192
85	Evolution de la température du primaire et du secondaire	192
86	Evolution du débit liquide au niveau de la brèche	193
87	Evolution de la vitesse liquide au niveau de la brèche	193
88	Evolution de la distribution granulométrique des gouttes générées au niveau de la brèche	194

89	Evolution de la masse d'iode rejetée au niveau de la brèche (transfert primaire) .	194
90	Evolution du taux de flashing CESAR et DROPLET	195
91	Evolution du rejet en iode (transfert primaire) en prenant en compte le taux de flashing CESAR (ou DROPLET sans germes)	195
92	Représentations graphiques d'une distribution log-normale	202
93	Différents diamètres caractéristiques d'une distribution log-normale	205
94	Représentation des distributions cumulées normalisées log-normale et Rosin-Rammler	207

Liste des tableaux

1	Classification des différents régimes de fragmentation mécanique	35
2	Synthèse des résultats du calcul du degré de surchauffe en fin de détente adiabatique pour trois cas INERIS [1]	98
3	Synthèse des résultats du calcul du degré de surchauffe en fin de détente adiabatique pour trois cas NRC [2]	98
4	Synthèse des résultats de calculs du rayon et du nombre de germes pour deux tailles de gouttes (deux cas INERIS et deux cas NRC)	98
5	Comparaison entre le taux de flashing de CESAR et le taux de flashing calculé sans germe	100
6	Comparaison entre le taux de flashing calculé à T_{liq0} et à T_l en fin de détente adiabatique	101
7	Taille des fragments produits pour un degré de surchauffe $\Delta T = 4$ K pour les deux profils de vitesse	104
8	Etendue des données thermohydrauliques des différents essais NRC	109
9	Données thermohydrauliques des différents essais NRC	110
10	Description des données thermohydrauliques des essais INERIS	122
11	Les éléments autres que l'iode présents dans le circuit primaire	129
12	Liste des réactions pour la radiolyse de l'eau [3]	135
13	Liste des réactions pour la radiolyse de l'iode [3]	141
14	Composition moyenne de l'alliage Zircaloy-4	145
15	Liste des réactions pour les impuretés (pour le Fer [3], pour le Cuivre [4])	146
16	Coefficients de partages extraits de la littérature	158
17	Enthalpie libre standard de solvatation (kcal.mol^{-1})	164

Introduction

Ce travail est une contribution à l'évaluation du rejet de radioactivité à l'environnement lors d'une séquence accidentelle de type RTGV (rupture de tube(s) d'un générateur de vapeur). Les séquences RTGV sont classées dans la catégorie des accidents de dimensionnement. Contrairement aux accidents graves (accidents qui conduisent à la perte des systèmes de sauvegardes et à la fusion partielle ou totale du cœur du réacteur), les accidents de dimensionnement sont pris en compte dès la conception du réacteur. Dans ce type de séquence, des espèces radioactives (produits de fission et produits d'activation) présentes dans le circuit primaire sont susceptibles d'être transférées à l'environnement, ce rejet résultant principalement de l'ouverture des vannes de contournement de la turbine (GCTA). On porte une attention particulière aux espèces iodées volatiles qui présentent un risque majeur pour les populations. Pour l'évaluation des impacts sanitaires, il est nécessaire de quantifier le rejet à la fois en activité mais aussi en termes de formes physiques (vapeur, liquide, granulométrie) et de composition chimique. Les séquences accidentelles de type RTGV font partie du cadre plus général des accidents de dépressurisation, pour lesquelles ce travail pourrait également apporter une contribution. Le caractère particulier des accidents de RTGV est que ce sont des accidents dits « de by-pass » de l'enceinte de confinement, c'est-à-dire qu'ils induisent un chemin direct de rejet à l'environnement (figure 1).

⇒ Description sommaire d'un réacteur

L'évaluation de la sûreté des réacteurs nucléaires et la préparation de la gestion de crise en cas d'accident impliquent, pour chaque scénario accidentel possible, la spéciation physico-chimique et l'inventaire isotopique de l'ensemble des éléments radiotoxiques qui pourraient être relâchés dans l'environnement. Ces éléments radiotoxiques sont produits par la fission du combustible nucléaire, d'où leur qualificatif de produits de fission. Parmi ces produits de fission, l'iode est le plus étudié car il porte la majorité des conséquences sanitaires à court terme, à travers son isotope ^{131}I et ses formes volatiles.

Les réacteurs à eau pressurisée du parc nucléaire français disposent de trois barrières de confinement des produits radioactifs.

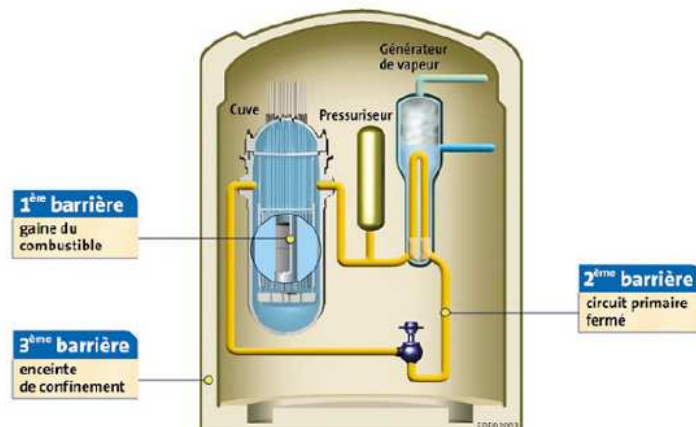


FIGURE 1 – Schéma présentant les trois barrières de confinement d'un REP

Le combustible nucléaire se présente sous la forme de pastilles centimétriques de dioxyde d'uranium ou d'un mélange de dioxyde d'uranium et de plutonium qui sont empilées dans des gaines

étanches composées d'un alliage métallique appelé zircaloy pour former les crayons combustibles (4 m de hauteur). Le coeur d'un REP 900 MWe du parc électronucléaire français est constitué de 157 assemblages de 264 crayons chacun. Cette gaine étanche en zircaloy (alliage composé essentiellement de zirconium) constitue la première barrière de confinement des produits de fission. Un ensemble de phénomènes liés au fonctionnement du réacteur, non précisés ici, conduisent à l'apparition de défauts d'étanchéité dans les gaines. L'eau du circuit primaire contient ainsi des produits de fission gazeux ou très volatils comme l'iode, le césium, des gaz rares comme le krypton, le xénon mais aussi des impuretés métalliques qui sont activées par le rayonnement (les produits d'activation). L'activité de l'eau du circuit primaire peut être corrélée à un taux de défaut des gaines des crayons de combustible.

Le circuit primaire permet d'évacuer l'énergie produite par le coeur et de la transférer aux différents générateurs de vapeur. Il forme la seconde barrière de confinement. Il se compose de la cuve réacteur contenant le coeur (chaudière), du pressuriseur, des pompes primaires et du faisceau tubulaire des générateurs de vapeur. La dernière protection séparant le coeur de l'environnement est une enceinte en béton recouvrant le système coeur-circuit primaire ainsi que les générateurs de vapeur.

La phénoménologie régissant le comportement des produits de fission, relâchés depuis le combustible jusqu'à leur arrivée dans l'environnement, est très complexe. Elle a fait l'objet de nombreuses actions de recherche dont certaines sont toujours en cours.

L'IRSN et EDF ont décidé en 2010 de lancer une action de recherche, dont cette thèse fait partie, sur la chimie de l'iode dans des conditions de dépressurisation rapide du circuit primaire, conditions dites de flashing, le but étant de déterminer quelles pourraient être les conséquences radiologiques d'un accident dit de **rupture de tube(s) de générateur de vapeur** ou RTGV. Une étude de l'IRSN menée dans le cadre de l'instruction du groupe permanent *conséquences radiologiques des accidents hors accidents graves, parc en exploitation et EPR* qui a eu lieu le 25 juin 2009, a en effet mis en évidence la nécessité de diminuer les incertitudes qui existent sur le comportement de l'iode dans ces conditions. L'ensemble de ces éléments de contexte sont repris dans les paragraphes qui suivent de manière plus détaillée.

⇒ **Le fonctionnement d'un générateur de vapeur**

Ce paragraphe a pour objectif de présenter succinctement le fonctionnement d'un générateur de vapeur (GV) et d'en décrire les principaux constituants.

Le générateur de vapeur est un échangeur de chaleur qui utilise l'énergie du circuit primaire pour transformer l'eau du circuit secondaire en vapeur qui alimentera la turbine. Il a approximativement la forme d'un cylindre d'environ 22 m de haut et de 5 m de diamètre. L'eau du circuit primaire entre au niveau de la partie basse du GV, par la boîte à eau branche chaude à une température d'environ 320 °C et une pression de 155 bar, circule dans les nombreux tubes où elle cède sa chaleur au fluide secondaire et ressort de l'autre côté de la boîte à eau à une température d'environ 280 °C. La puissance thermique échangée par un générateur de vapeur est considérable : $\approx 150 \text{ kW.m}^{-2}$ au niveau de la surface des tubes.

Ces conditions de fonctionnement (haute pression et haute température) sont choisies pour réaliser le meilleur rendement d'extraction de la puissance du coeur, tout en respectant les nombreuses contraintes mécaniques et thermiques. Dans un REP, l'eau primaire sert également de modérateur (ajout de bore comme absorbeur de neutrons).

Le faisceau tubulaire joue un rôle primordial car il représente une surface d'échange très importante (4000 à 6000 tubes selon les GV) et assure le confinement de l'eau du circuit primaire en évitant tout contact entre celui-ci et le circuit secondaire (seconde barrière de confinement).

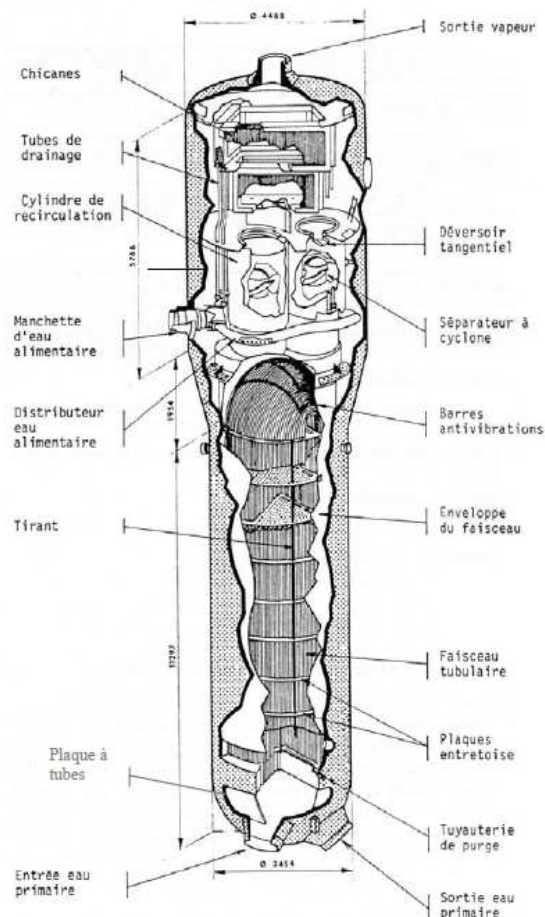


FIGURE 2 – Schéma d'un générateur de vapeur

Le mélange liquide-vapeur généré en partie haute du GV est d'abord centrifugé dans un séparateur à cyclone. Le film liquide est plaqué contre la paroi et retombe par gravité. La vapeur traverse ensuite un étage sécheur constitué de chicanes successives qui éliminent une grande quantité de gouttelettes d'eau. En sortie, l'humidité relative est inférieure à 1% (limitation des risques d'endommagement des turbines et de corrosion du circuit secondaire).

Lors des cycles de fonctionnement du réacteur, le faisceau tubulaire est soumis à des vibrations. Ces vibrations sont à l'origine de fissures dont l'évolution peut être très rapide. Des dispositifs comme les barres anti-vibratoires ont été mis en place afin de lutter contre cette fatigue mécanique.

⇒ Les causes et les conséquences d'une rupture de tube(s) d'un générateur de vapeur

Un accident de RTGV correspond à une rupture partielle ou totale d'un ou de plusieurs tubes d'un générateur de vapeur. Une rupture partielle correspond à une fissure plus ou moins étendue sur le tube (figures 3(a) et 3(b)). Une rupture totale est appelée rupture doublement débattue (figure 3(c)).

Les principales causes de fissuration des tubes GV sont, les multiples vibrations entre les différentes structures, l'accumulation de produits de corrosion au niveau des plaques entretoises conduisant à une fatigue vibratoire plus importante, mais également la circulation de corps migrant dans le circuit secondaire.

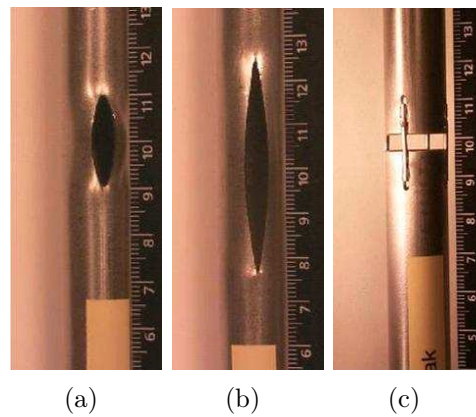


FIGURE 3 – Photographies de fissures sur des tubes GV [5] et [6]

Lors d'un accident de RTGV, la dépressurisation du circuit primaire va conduire à une montée en pression du circuit secondaire. Si cette montée en pression est trop importante, la conduite du réacteur prévoit de privilégier une dépressurisation rapide du secondaire par un éventage vers l'atmosphère à travers des soupapes de sécurité pour éviter un risque de dégradation des deux circuits.

⇒ La nature des rejets vers l'atmosphère en cas de RTGV

Suite à un accident de RTGV, deux types de rejets sont à analyser :

- les rejets sous forme liquide
- les rejets sous forme vapeur

Lorsque survient une brèche sur un tube de GV, la différence de pression entre les circuits primaire et secondaire conduit à la formation d'un jet diphasique contenant un mélange de vapeur et de fines gouttelettes. Une fraction de liquide qui s'échappe par la brèche se vaporise instantanément, traduisant le déséquilibre thermodynamique du fluide primaire entre les deux circuits. Il s'agit du phénomène de **flashing**. Une partie des espèces volatiles présentes dans le liquide qui transite à la brèche est transférée à la phase vapeur. Cette distribution des espèces volatiles entre les deux phases est liée au **coefficient de partage**.

La différence de vitesse entre la phase liquide et la phase gaz du secondaire provoque la fragmentation en fines gouttelettes de la phase liquide (instabilités hydrodynamiques). On parle de **fragmentation mécanique**.

Si la conduction dans le jet liquide permet d'évacuer l'excès de chaleur, il se produit **une évaporation de surface**. Dans le cas contraire, des micro-bulles de vapeur se développent et forment en explosant un nuage de petites gouttes. On parle de **fragmentation thermique**. Enfin, l'impaction d'un jet ou de fragments liquides contre une paroi donne naissance à une nouvelle distribution. On parle alors de **fragmentation par impaction**. Tous ces phénomènes contribuent à la formation d'un nuage de gouttelettes et son entraînement est généralement appelé **carry-over** ou **taux de by-pass**.

Si la rupture du tube se situe dans la partie non immergée du GV, la fraction flashée ainsi que les petites gouttes seront véhiculées par la vapeur du secondaire à travers le séparateur et le sécheur, et relâchées après rétention partielle par les soupapes de décharge du secondaire.

Si la brèche se situe sous le niveau d'eau du GV, la majeure partie des produits de fission transportée à la brèche sera retenue par barbotage dans la phase liquide du secondaire, le reste atteignant la phase vapeur du GV.

Enfin, une fraction de l'eau présente dans le GV en partie basse est entraînée par un flux constant de vapeur sous forme de gouttes. Une partie de ces gouttelettes est stoppée par le bloc séparateur/sécheur et retombe. L'autre partie est entraînée dans la ligne vapeur. Cette fraction de gouttelettes entraînées, phénomène qui se produit également en fonctionnement normal, est appelée **taux de primage**.

En ce qui concerne les rejets sous forme vapeur, le taux de flashing est déterminé via un bilan enthalpique sur la phase liquide s'échappant par la brèche. La fraction liquide générée par le flashing contribue en partie au **by-pass**.

Durant toute la phase du transitoire RTGV, les crayons de combustible subissent des contraintes thermiques et mécaniques, augmentant le relâchement de produits de fission dans le circuit primaire. La concentration d'espèces iodées présentes dans le réfrigérant augmente alors rapidement, ce qui impacte potentiellement le rejet à l'environnement. Ce phénomène est appelé **pic d'iode** mais il concerne également d'autres produits de fission.

Les enjeux de cette étude sont donc multiples. Dans un premier temps, il sera nécessaire d'identifier les différents phénomènes physiques régissant la formation des fines gouttelettes, afin d'établir une distribution granulométrique. Les paramètres clés pilotant la fragmentation thermique et mécanique seront identifiés.

Au niveau de la brèche (l'endroit où se produit la rupture du tube) se développe un jet diphasique composé d'un nuage de gouttelettes et d'une phase gazeuse. Les espèces iodées peuvent a priori se répartir entre ces deux phases : les espèces non volatiles dans les gouttes et les espèces volatiles partiellement dans les gouttes et partiellement dans la phase gazeuse.

Les objectifs de cette thèse sont :

- de caractériser le rejet à la brèche en déterminant la distribution granulométrique des gouttes et le taux de flashing (fraction massique gazeuse à la brèche) ;
- de déterminer la composition des espèces iodées à la brèche et le cas échéant préciser leurs propriétés de volatilité (coefficient de partage) ;
- d'intégrer la modélisation à un code de simulation et de confronter les résultats de la simulation à des données expérimentales disponibles afin de qualifier le modèle ;
- d'évaluer les rejets vapeur et liquide lors d'une séquence accidentelle en tenant compte de la quantité d'iode flashé et de la granulométrie des gouttes générées.

A ce jour les codes de simulation (logiciel ASTEC pour l'IRSN [7]) ne prennent pas en compte cette phénoménologie. Le travail de thèse consiste à développer une modélisation physico-chimique qui doit être transposable à un code de calcul d'accident type 0D (code organisé de façon modulaire). D'une part, ce type de code est un outil d'étude de sûreté, ce qui implique un temps de calcul relativement court. D'autre part, la complexité et le grand nombre de phénomènes physiques à traiter par ce type de code rend indispensable son architecture modulaire. De ce fait, notre approche ne peut pas être purement mécaniste. En revanche, ce modèle doit identifier, définir et prendre en compte les paramètres physiques essentiels. Les résultats du modèle ainsi développés seront comparés aux données de la littérature.

Ce travail s'articule donc essentiellement en deux parties. Une partie consiste en l'étude de la modélisation du flashing (séparation liquide-vapeur à la brèche). Une seconde partie est consacrée à la modélisation de la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire et à la détermination des coefficients de partage des espèces volatiles de l'iode. Dans l'approche actuelle d'ASTEC, le transfert de l'iode à la phase gaz est directement déterminé par la connaissance du taux de flashing et du coefficient de partage thermodynamique. Une troisième partie est consacrée à un exemple d'évaluation de rejets pour une séquence accidentelle type. Cette séquence considère le cas d'une brèche non immergée en partie haute du faisceau tubulaire, ce qui est le cas le plus pénalisant.

La modélisation du flashing

Pour les raisons évoquées plus haut, on simplifie le problème en le dissociant en une phase de fragmentation mécanique qui produit une première distribution granulométrique en aval de la brèche, suivie d'une phase de fragmentation thermique engendrée par le différentiel des conditions thermodynamiques entre le primaire et le secondaire. A l'issue de ces deux phases, on détermine la quantité de vapeur produite par l'évaporation de surface et la quantité de vapeur contenue dans les germes libérée par l'éclatement des gouttes.

La fragmentation mécanique est due à la déstabilisation du jet liquide due au différentiel de vitesse au niveau de l'interface liquide-gaz. Il existe dans la littérature des méthodes mécanistes (CFD) très lourdes en temps de calcul et qui, par conséquent, ne sont pas adaptées à nos contraintes évoquées plus haut. On préférera l'utilisation de corrélations empiriques. Ces corrélations fournissent en général le diamètre moyen de Sauter de la distribution en fonction de groupements de nombres sans dimension (Reynolds, Weber,...). On fait l'hypothèse, conformément à la démarche choisie, qu'il n'y a pas de modification d'origine thermique de la distribution pendant cette première phase. Ce chapitre est donc essentiellement descriptif et a pour objectif de justifier le choix d'une telle corrélation. On obtient ainsi une distribution de gouttes « primaires ».

La fragmentation thermique est la partie centrale de ce travail. Le mécanisme essentiel est l'éclatement des gouttes sous l'effet de la croissance des germes de vapeur. Cet éclatement joue un rôle déterminant dans le calcul de la granulométrie des gouttes « secondaires ». Les données expérimentales ne peuvent pas être reproduites sans la prise en compte de ce mécanisme. On trouve dans la littérature un critère de rupture lié au taux de vide dans la goutte (environ 50 %). Nous avons montré que ce critère est assez bien justifié. Un autre point important est la taille et le nombre des fragments produits lors de l'éclatement d'une goutte. Nous proposons une modélisation qui relie la taille des fragments au degré de surchauffe de la goutte au moment de la rupture. Ce dernier est directement dépendant de tous les aspects de la modélisation : détente adiabatique initiale qui aboutit à un degré de surchauffe et à une taille et un nombre de germes initiaux, transferts de chaleur et de masse en phase liquide et en phase gaz, croissance des germes. A partir de la distribution des gouttes primaires, ces calculs doivent être réalisés pour toutes les classes de taille de la distribution.

La détente adiabatique conduit à un état métastable avec production de germes. Cet état est obtenu en utilisant les coefficients thermodynamiques sur la courbe de saturation côté liquide. En faisant une hypothèse raisonnable sur le taux de vide initial, il est possible de calculer la surchauffe initiale, le diamètre des germes à l'équilibre hydrostatique qui lui est directement lié, et par conséquent le nombre de germes.

Les échanges goutte-atmosphère reposent sur un ensemble de corrélations pour les nombres de Nusselt et de Sherwood. Pour les échanges en phase gaz, on a retenu la célèbre corrélation de Ranz et Marshall [8], fonction des nombres de Reynolds et de Prandtl ou Schmidt. Pour

le transfert de chaleur en phase liquide, le problème est par nature transitoire, mais on se contente de la valeur obtenue pour un gradient de température établi. Abramzon et Sirignano [9] ont proposé une corrélation qui relie, en fonction des nombres de Reynolds et Prandtl les deux cas limites de la sphère rigide (vitesse nulle) et des grands nombres de Peclet (Kronig et Brink [10]). En pratique, une goutte, au cours de son transit le long du jet, va avoir un différentiel de vitesse avec le gaz sur une large gamme, et donc des coefficients d'échange qui varient considérablement. Nous avons donc développé un modèle simplifié du jet diphasique qui permet de calculer la dynamique de relaxation pour chaque classe de taille. On peut ainsi évaluer des coefficients d'échange moyens pour le temps de transit de chaque goutte. On montre que l'on peut corréler les résultats pour toutes les classes de taille et toutes les vitesses initiales du jet en fonction des nombres de Reynolds et de Peclet à la brèche. Les équations de bilan de masse et d'énergie sont établies en relation avec les conditions du secondaire suivant deux types de bilan : le transfert en condition de flashing pur lorsque le secondaire est en vapeur pure, ou la prise en compte des transferts en phase gaz quand ce n'est pas le cas. Dans ce dernier cas, on utilise la théorie de Spalding, qui diverge lorsque la fraction de vapeur tend vers un. Suivant une idée de Collier [11], nous avons développé une méthode qui permet de basculer d'un cas à l'autre sans discontinuité.

Pour les séquences RTGV, on considère que le circuit secondaire est en vapeur pure humide (avec un titre massique compris entre 0.2 et 0.4) ce qui nous place dans les conditions de flashing pur.

Croissance des germes Dans la littérature, on distingue le régime de croissance inertielle (équation de Rayleigh) et le régime diffusif dans lequel la croissance est pilotée par l'évaporation à l'interface (caractérisé par le nombre de Jacob qui dépend du degré de surchauffe). Nous avons développé, en poursuivant une idée de Mikic [12], une équation différentielle qui prend en compte les aspects inertielle et diffusif de façon continue. Dans cette équation, le paramètre essentiel est le degré de surchauffe. Ceci permet d'écrire un système d'équations différentielles couplées permettant de suivre l'évolution au cours du temps de la température de la goutte, de son rayon, et du taux de vide. Ce système est résolu par une méthode numérique implicite. Ces résultats sont confrontés à des résultats expérimentaux. Ceux de la NRC sont représentatifs d'un transitoire accidentel RTGV. Ceux de l'INERIS concernent l'étude d'un jet liquide sous pression atmosphérique dans un mélange air-vapeur.

La chimie de l'iode dans le circuit primaire

Pour évaluer la spéciation de l'iode dans le circuit primaire, on utilise la procédure suivante : on injecte une source continue d'iode qui conduit à une concentration très faible, supposée homogène, dans l'eau du primaire. Cette source est obtenue à partir des spectres d'activité mesurés par EDF sur des réacteurs en fonctionnement normal et en transitoire accidentel.

La difficulté est de traiter la chimie de l'iode à l'état de trace ($\approx 10^{-10}$ mol.l⁻¹), à température élevée, et qui plus est sous rayonnement. Plus précisément, la radiolyse de l'eau produit des radicaux et des molécules qui réagissent avec l'iode. La production de ces radicaux est directement liée au débit de dose. Cette donnée résulte du calcul de la proportion d'isotopes stables et instables réalisée par le code de neutronique DARWIN. Le débit de dose est maximum au voisinage du coeur mais, étant donnée l'architecture du code ASTEC qui considère un seul volume de contrôle pour la chimie (le volume du primaire), on considère un débit de dose moyen.

Une revue bibliographique a permis d'établir un mécanisme réactionnel pour l'iode incluant environ 120 réactions. Un solveur numérique permet, à partir du mécanisme réactionnel, de calculer la concentration de chaque espèce en phase liquide au cours du temps et donc d'obtenir la spéciation de l'iode à la brèche secondaire. En ce qui concerne les espèces volatiles, il est

indispensable de connaître leur coefficient de partage. Lorsque ce dernier n'est pas connu ou qu'il existe des incertitudes dans la littérature, on réalise des simulations de dynamique moléculaire afin de calculer l'énergie de solvatation et donc d'en déduire le coefficient de partage. Le code SPyDERS (IRSN) a été utilisé dans ce but en utilisant le champ de forces AMBER.

Pour une espèce iodée volatile, on peut définir le « taux de flashing » à chaque instant de la séquence accidentelle, et finalement le rejet à l'environnement de cette espèce. Soit \dot{m}_{I10} le débit massique de cette espèce en phase liquide à la brèche, $\dot{m}_{I \rightarrow g}$ le débit de production de cette espèce en phase gaz. Le taux de flashing, ou taux de transfert primaire de cette espèce est donné par une relation, dont une expression approchée pour de faibles taux de flashing thermodynamique est :

$$\boxed{\frac{\dot{m}_{I \rightarrow g}}{\dot{m}_{I10}} = \frac{\tau_{th}}{K} \frac{\rho_{liq0}}{\rho_{g\infty}}} \quad (1)$$

où τ_{th} est le taux de flashing thermodynamique et K le coefficient de partage de cette espèce. La fraction qui reste en phase liquide à l'issue du flashing peut éventuellement être de nouveau vaporisée à partir du bouchon d'eau ou des structures (transfert secondaire) ou contaminer le circuit secondaire.

Applications à une séquence accidentelle

Dans une troisième partie, les résultats du présent modèle sont illustrés par deux exemples d'applications au calcul d'une séquence accidentelle RTGV. L'organisation du calcul est présentée sur la figure 4, dans laquelle apparaissent les apports de la présente modélisation.

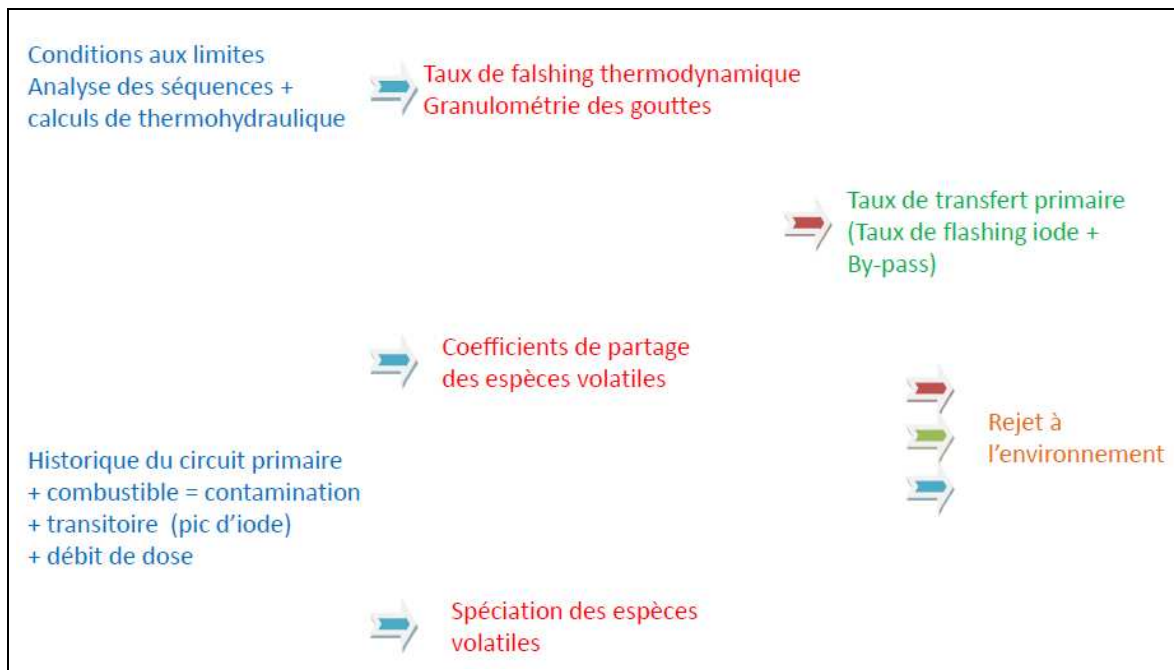


FIGURE 4 – Schéma général de calcul du transfert primaire des espèces iodées volatiles

Première partie

La modélisation du flashing

Sommaire

1	Introduction : observations expérimentales	22
2	Fragmentation mécanique	25
2.1	Morphologie d'un spray	25
2.1.1	Le coeur liquide : longueur du cône potentiel	26
2.1.2	L'ouverture du jet : la divergence	27
2.1.3	L'expansion spatiale du jet : la pénétration	28
2.1.4	La taille de gouttes générées : diamètre moyen	29
2.2	Les différents régimes de fractionnement	31
2.2.1	Fractionnement primaire	31
2.2.2	Fractionnement secondaire	36
2.3	Modélisation de l'atomisation primaire : corrélations	39
2.3.1	Approche mécaniste	39
2.3.2	Corrélations	40
3	Fragmentation thermique	47
3.1	Modèles d'évaporation hors nucléation	48
3.1.1	Flashing pur	48
3.1.2	Comparaison avec le taux de flashing dans CESAR (code de thermo-hydraulique de l'IRSN)	49
3.1.3	Transfert dans un mélange air-vapeur	50
3.1.4	Un modèle adapté à toutes les conditions aux limites	51
3.1.5	Coefficients de transfert	55
3.2	Détente adiabatique et nucléation	64
3.2.1	Les germes à l'équilibre	65
3.2.2	Conditions (surchauffe et taux de vide) à la fin de la détente adiabatique	66
3.2.3	Equation de bilan de la détente	67
3.2.4	Un critère pour déterminer le nombre de germes et leur taille initiale	68
3.2.5	Principe de calcul	68
3.2.6	Cas du liquide primaire sous-refroidi : recherche de l'interception	69
3.2.7	Détente adiabatique sans nucléation et liquide dans un état métastable	70
3.2.8	Formation des germes	71
3.3	Croissance d'une bulle de vapeur	74
3.3.1	Régime inertiel	74
3.3.2	Régime diffusif	75
3.3.3	Solution complète combinant les deux régimes (MRG)	76

3.3.4	Notre approche : la solution complète en géométrie sphérique	78
3.4	Modèle d'évaporation avec croissance des bulles	80
3.4.1	Equations générales	80
3.5	Critères de rupture	83
3.5.1	Critère énergétique : cas d'une bulle unique	85
3.5.2	Cas d'un grand nombre de germes	86
3.5.3	Critère de fragmentation lié à un nombre de Weber critique	87
3.5.4	Une formulation plus réaliste de l'énergie disponible	89
3.5.5	Prise en compte de la distribution en taille des fragments	90
3.5.6	Prise en compte de la distribution en taille des fragments : un autre profil de vitesse	92
3.5.7	Caractérisation des gouttes secondaires	92
3.6	Résumé des équations et principales hypothèses	95
4	Caractérisation du modèle : exemples de calculs	97
4.1	Détente adiabatique d'une goutte liquide	97
4.2	Evaporation d'une goutte sans germe	99
4.3	Evaporation et fragmentation d'une goutte en présence de germes	102
5	Validation : comparaisons modèle/mesures	107
5.1	Les essais NRC	107
5.2	Les essais INERIS	121

1 Introduction : observations expérimentales

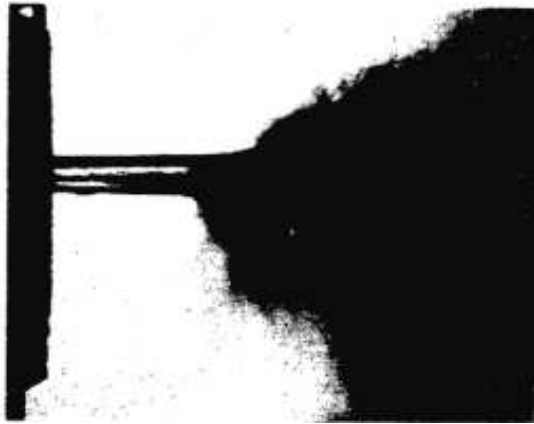


FIGURE 5 – Cliché d'un jet liquide surchauffé obtenu par Brown et al. [13]

La mise au point de méthodes de détection optiques a permis de caractériser finement l'évolution d'un jet liquide surchauffé.

En 1962, Brown et al. [13] ont établi, à l'aide de photographies, les premières distributions de gouttelettes dans le but d'étudier l'influence de la forme de l'orifice sur le comportement d'un jet d'eau et de fréon surchauffé évoluant dans des conditions atmosphériques. Ils ont montré que les deux processus de fragmentation mécanique et thermique jouaient un rôle dans l'établissement de la taille des gouttelettes.

L'ombroscopie a également été utilisée par Nagai et al. [14] et Rietz [15] pour réaliser des clichés de jets d'eau surchauffée. Des temps de pose très courts ont été nécessaires pour figer le mouvement et éviter la superposition des nombreuses gouttes générées dès la sortie de la brèche. Les photogra-

phies de Nagai et al. [14] montrent l'existence d'un coeur liquide à proximité de la sortie. Dans le prolongement de cette longueur intacte, le jet perd sa cohérence et se transforme en un brouillard dense. Plus la température d'injection est élevée, plus la longueur du coeur liquide est petite.

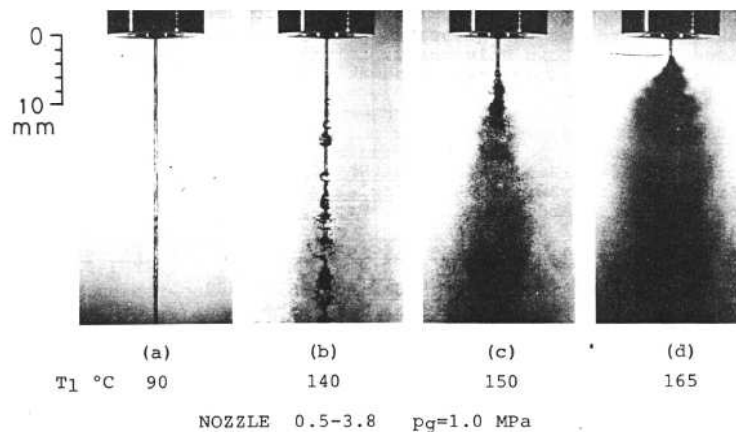


FIGURE 6 – Clichés d'un jet liquide surchauffé obtenus par Nagai et al. [14] pour différentes températures

Les figures 7(a) et 7(b)) illustrent la différence entre un jet liquide avec et sans le phénomène de flashing. On voit très clairement l'impact du degré de surchauffé sur la morphologie du jet. Un jet liquide sans flashing présente une cohérence presque parfaite. Un jet liquide surchauffé diverge dès la sortie de l'orifice.

Toutes ces expériences ont été réalisées à l'aide d'orifices circulaires. Dans le cas d'une brèche quelconque, les bords sont irréguliers et perturbent l'écoulement. La morphologie du jet s'en trouve modifiée et des gouttes sont présentes dès la sortie. La prise en compte de ce paramètre

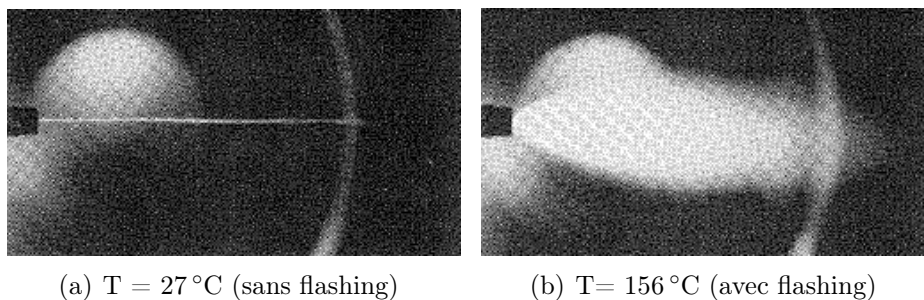


FIGURE 7 – Visualisation de la différence entre un jet avec et sans flashing [15]

impliquerait l'étude d'un facteur de forme propre à chaque brèche. La forme plus ou moins aplatie de la brèche va modifier l'écoulement et la répartition des gouttelettes produites.

Selon Witlox et al. [16], la fragmentation du jet découle de la croissance de bulles de vapeur dans le cône liquide en aval de l'orifice, après un temps très court (inférieur à la μs). Ce phénomène prédomine sur la fragmentation mécanique pour des pressions de stockage inférieures à 10 bar mais également pour des orifices dont le diamètre est supérieur à 1 mm. Lorsque la fragmentation thermique domine, la génération de gouttelettes de plus petites tailles provient directement de la croissance et plus particulièrement de l'explosion de ces micro-cavités de vapeur générant un brouillard de fines gouttelettes.

En ce qui concerne les tailles de gouttes générées, Reitz [15] a effectué des essais sur des jets d'eau à des températures différentes et a mesuré les diamètres des gouttelettes à plusieurs distances du jet dans les directions axiale et radiale. La figure 8 présente les principaux résultats obtenus :

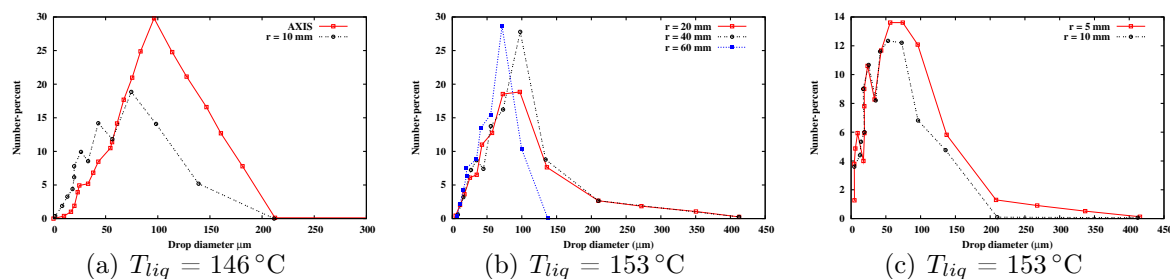


FIGURE 8 – Distributions granulométriques obtenues par Reitz [15]

La figure 8(a) nous indique que la fragmentation du coeur liquide donne, à 60 mm de l'orifice, des gouttes de plus gros diamètre ($100\ \mu m$) au niveau de l'axe qu'à 10 mm de cet axe (environ $63\ \mu m$).

La figure 8(b) nous renseigne sur l'impact de la température de la phase liquide sur la taille des gouttes produites. En effet, à 60 mm de l'orifice sur l'axe et pour une température de stockage augmentée de 7 °C , le diamètre passe de $100\ \mu m$ à $70\ \mu m$.

La figure 8(c) nous montre que pour des distances proches de l'orifice (5 et 10 mm) et décalées de 5 mm par rapport à l'axe, le diamètre moyen est compris entre 50 et $75\ \mu m$. Il observe que ces diamètres sont plus petits que pour des gouttes se situant sur l'axe et à la même distance de l'orifice.

En résumé, un jet liquide surchauffé se caractérise par une longueur intacte directement après le passage de l'orifice et d'une zone composée de pures gouttelettes. La longueur intacte ainsi

que la taille des gouttelettes diminuent lorsque la température de la phase liquide augmente. Le phénomène de croissance de bulles de vapeur à l'intérieur du cône liquide est très rapide (de la μs à la ms). Enfin, les gouttes produites en périphérie sont plus petites d'un facteur 2 à 3 par rapport aux gouttes produites au niveau de l'axe. Ces résultats correspondent aux observations réalisées par Bushnell et Gooderum [17].

Cet aspect n'est pas pris en compte dans le cadre de ce travail. En effet, dans ce qui suit, on parlera de distribution en classe de tailles des gouttes sans préciser leur localisation dans le jet. Pour tenir compte de cet aspect, il faudrait donner une description bidimensionnelle du jet.

2 Fragmentation mécanique

Dans cette section, on passe en revue les différents mécanismes responsables de la formation d'un spray liquide, la fragmentation thermique étant exclue. On a admis, c'est une des hypothèses fondamentales de ce modèle, que cette première fragmentation se produit dans une zone très proche de la brèche et que l'on peut la dissocier de la fragmentation thermique qui se développe à partir de cette première distribution de gouttes. On admet que le fluide primaire est monophasique liquide. C'est également une hypothèse forte. On se limite au cas d'une brèche en périphérie du faisceau tubulaire et non-immersée. L'objectif est de déterminer une distribution granulométrique en champ proche, représentative des conditions thermohydrauliques, en particulier du débit d'injection, pour toute la séquence accidentelle. On doit donc rendre compte de la distribution en taille des gouttes produites pour une large gamme de débits, depuis le débit maximal d'injection au début de l'accident jusqu'au renoyage de la brèche.

La première section est consacrée à une description qualitative d'un spray liquide. Puis, les différents modes de fragmentation à l'origine de la formation de gouttelettes sont passés en revue. A l'issue de cette analyse, on montre qu'un traitement mécaniste de cette partie n'est pas envisageable dans le cadre de ce travail. On est donc conduit à faire le choix d'une corrélation empirique qui nous semble la mieux adaptée à nos conditions.

2.1 Morphologie d'un spray

Un spray désigne un ensemble de particules liquides ou solides en mouvement dans un autre fluide piloté par une impulsion initiale, contrairement à un brouillard, où les gouttelettes sont en suspension dans un gaz sans vitesse initiale. Un spray liquide est généré par la désintégration d'un jet libre dans une atmosphère gazeuse. L'étude d'un tel système peut se diviser en deux zones (figure 9) :

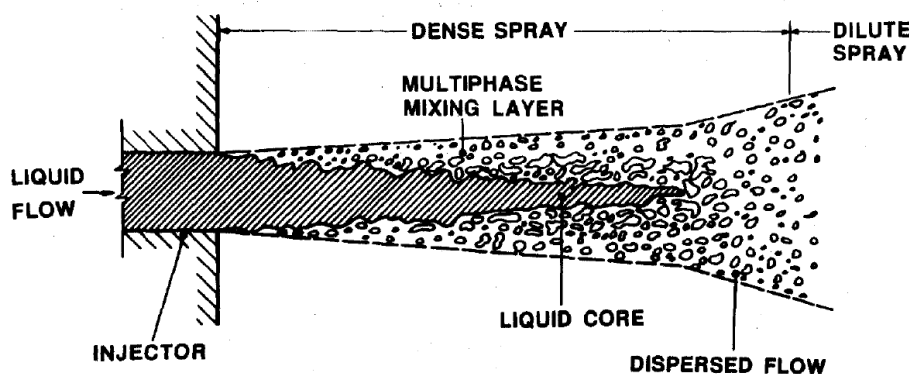


FIGURE 9 – Description d'un jet diphasique d'après Faeth et al. [18]

- une zone dense, où il y a coexistence entre le coeur liquide (ou noyau potentiel) de forme cônica et une couche de mélange de part et d'autre de ce coeur (région de développement ou région d'entrée) ;
- une zone diluée, où le coeur liquide n'existe plus et où l'écoulement est tel que toutes les quantités (vitesse, pression,...) peuvent se déduire des profils amont par similitude (région établie ou de similitude).

Un spray se caractérise également par un phénomène d'induction. En effet, le jet entraîne une grande quantité de gaz environnant dans la direction radiale et le long de la couche de mélange, ce qui a pour conséquence de rendre le jet turbulent. La morphologie d'un spray liquide peut s'étudier à travers quatre grandeurs qui sont : la longueur du cône liquide (L_c), l'angle d'ouverture du jet (θ), la pénétration du spray (S) et la taille des gouttes générées, généralement caractérisée par un diamètre moyen, le diamètre de Sauter (d_{32}) (Annexe A).

2.1.1 Le coeur liquide : longueur du cône potentiel

La région dense d'un spray est caractérisée par la présence d'un coeur liquide appelé cône liquide ou cône potentiel. Cette dénomination vient du fait que, dans cette zone, on ne peut traiter le profil de vitesse qu'en supposant qu'il dérive d'un potentiel. L'étude expérimentale de cette zone est réalisable à travers l'utilisation de méthodes non-intrusives comme les méthodes optiques. Taylor et Hoyt [19] ont effectué des mesures optiques par ombroscopie pour étudier la déstabilisation d'un jet liquide dans une atmosphère au repos. Cependant, la très forte densité de fragments liquides sur toute la longueur du jet rend l'interprétation des résultats très délicate. Une autre méthode expérimentale basée sur la mesure de la conductivité électrique de la phase liquide (méthode intrusive) a permis de remonter à une estimation de cette longueur. Cette méthode consiste à disposer un grillage métallique en aval du jet. En maintenant une différence de potentiel entre l'injecteur et ce grillage et en faisant varier la position de celui-ci, il est possible, en mesurant la résistance électrique du liquide, de remonter à la longueur intacte. Il faut noter que le déplacement éventuel des charges électriques par le spray n'a pas été pris en compte dans le calcul des incertitudes liées à cette technique. Arai et al [20] ont utilisé cette méthode pour caractériser la longueur intacte d'un jet d'eau issu d'un injecteur diesel (diamètre \approx mm). Ils mesurent une longueur de cône liquide égale à environ 50 fois le diamètre de l'orifice pour une pression d'injection supérieure à 200 bar dans une atmosphère au repos composée d'air à 30 bar et à 20°C. Chehroudi et al.[21] proposent une corrélation de nature empirique, très souvent citée dans la littérature, donnant la longueur du cône liquide en fonction des masses volumiques de la phase liquide et de la phase gaz :

$$\frac{L_c}{d_0} = C \left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

où d_0 est le diamètre de l'orifice, C une constante empirique exprimant les conditions de l'écoulement au niveau de la brèche telle que $7 \leq C \leq 16$. En prenant les conditions thermodynamiques initiales d'un accident de RTGV ($\rho_{\text{liq}} \approx 730 \text{ kg.m}^{-3}$ et $\rho_{\text{gaz}} \approx 30 \text{ kg.m}^{-3}$) et en considérant un diamètre de brèche d'environ 1 cm, on est conduit à une estimation de la longueur de cône potentiel comprise entre 30 et 70 cm.

Hiroyasu et al. [22] proposent également une corrélation donnant la longueur de cône liquide en fonction d'un terme caractérisant les effets de cavitation et de turbulence en amont de la brèche :

$$\frac{L_c}{d_0} = 7 \left(1 + 0.4 \frac{r_0}{d_0} \right) \left(\frac{P_g}{\rho_{\text{liq}} U_0^2} \right)^{0.05} \left(\frac{l_0}{d_0} \right)^{0.13} \left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \right)^{0.5} \quad (2)$$

où r_0 est le rayon de courbure de l'orifice, d_0 le diamètre, P_g la pression du gaz, U_0 la vitesse de la phase liquide au niveau de l'orifice et l_0 la longueur (épaisseur) de l'orifice. En considérant une vitesse à la brèche $U_0 \approx 130 \text{ m.s}^{-1}$, la pression du gaz $P_g \approx 60 \text{ bar}$ et une longueur $l_0 \approx 1$

mm (épaisseur du tube GV), nous obtenons comme longueur de cône liquide $L_c \approx 30 \text{ cm}$. Nous retrouvons l'ordre de grandeur obtenu avec la corrélation de Chehroudi et al. [21]. Notons que cette corrélation fait intervenir la vitesse d'injection et la pression du milieu ambiant dans le terme $\frac{P_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}} U_0^2}$. On soulignera le fait que, pour cette corrélation, la longueur du cône liquide ne dépend que de la pression aval. En règle générale, ces études sont réalisées avec des diamètres d'orifice de l'ordre du mm et pour des pressions de plusieurs centaines de bar. Ce sont les conditions opératoires propres à une chambre de combustion d'un moteur diesel. Les longueurs de cône potentiel obtenues sont alors de l'ordre de quelques cm. Comme nous avons un facteur 10 entre les diamètres caractéristiques d'une brèche RTGV et ces diamètres, on retrouve une cohérence entre ces deux corrélations.

Au cours d'un transitoire accidentel, la vitesse au niveau de la brèche va diminuer jusqu'au renoyage éventuel de la brèche. Le terme lié à la cavitation va donc augmenter, ce qui va avoir pour conséquence une augmentation de la longueur intacte.

L'existence de cette longueur intacte va influencer le mode de fractionnement selon la localisation de la brèche dans le faisceau de tubes. En effet, si la brèche se situe à l'intérieur du faisceau tubulaire, le cône liquide va impacter les autres tubes GV à proximité (espace interstitiel de l'ordre de la dizaine de mm). Dans ce cas la fragmentation mécanique provient de l'impaction du cône liquide sur les tubes voisins. Si la brèche se situe sur la partie externe du faisceau, alors le spray se développe pleinement dans l'enceinte du GV et la génération de gouttes primaires sera pilotée par différentes instabilités à la surface de ce cône liquide. Mon travail de thèse ce limite à ce dernier cas.

2.1.2 L'ouverture du jet : la divergence

La divergence d'un spray liquide dépend principalement des conditions thermohydrauliques à l'intérieur de l'orifice et des conditions thermodynamiques du gaz environnant (pression du gaz).

Nous pouvons mentionner la corrélation de Reitz et al. [23] basée sur un modèle de rupture aérodynamique proposé par Ranz (1958) [24], qui a essayé de prendre en compte les effets liés à l'orifice. Il fait l'hypothèse que la perturbation engendrée par l'orifice peut être reliée à l'angle d'ouverture du spray. Il suppose également que le taux de croissance de la perturbation est proportionnel à la vitesse radiale des gouttes en sortie (croissance en phase linéaire). Cette corrélation s'exprime par la relation suivante :

$$\tan(\theta) = \frac{4\pi}{A} \left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \right)^{\frac{1}{2}} F(\gamma) \quad (3)$$

où θ est le demi-angle d'ouverture du spray par rapport à l'axe du jet, ρ_{gaz} et ρ_{liq} respectivement la masse volumique du gaz et du liquide. A est une constante faisant intervenir les caractéristiques géométriques de l'orifice suivant la relation :

$$A = 3 + 0,28 \left(\frac{l_0}{d_0} \right) \quad (4)$$

où l_0 et d_0 représentent respectivement l'épaisseur et le diamètre de l'orifice. $F(\gamma)$ est une fonction représentative des conditions thermohydrauliques de l'écoulement à travers le rapport entre

le nombre de Reynolds (Re) et le nombre de Weber (We) :

$$F(\gamma) = \frac{\sqrt{3}}{6} (1 - e^{-10\gamma}) \quad (5)$$

$$\text{avec, } \left\{ \begin{array}{l} \gamma = \left(\frac{\text{Re}_{\text{liq}}}{\text{We}_{\text{liq}}} \right)^2 \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \\ \text{Re}_{\text{liq}} = \frac{\rho_{\text{liq}} U_0 d_0}{\mu_{\text{liq}}} \\ \text{We}_{\text{liq}} = \frac{\rho_{\text{liq}} U_0^2 d_0}{\sigma_{\text{liq}}} \\ U_0 = c_d \left(\frac{2\Delta P}{\rho_{\text{liq}}} \right)^{\frac{1}{2}} \end{array} \right.$$

où, U_0 correspond à la vitesse au niveau de l'orifice et c_d le coefficient de décharge. En considérant les mêmes conditions thermodynamiques données précédemment et en considérant que l'épaisseur d'un tube GV est environ de 1 mm, que la vitesse à la brèche est d'environ 130 m.s^{-1} et en prenant comme coefficient de décharge $c_d = 0.7$ (valeur standard), nous remarquons que $F(\gamma) \rightarrow \frac{\sqrt{3}}{6}$. Dans ces conditions, la corrélation de Reitz et al [23] ne dépend plus que des caractéristiques géométriques de l'orifice et le demi-angle d'ouverture du jet est donné par la relation :

$$\tan(\theta) = \frac{4\pi}{A} \left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{\sqrt{3}}{6} \quad (6)$$

Nous obtenons alors un angle d'ouverture total d'environ $2\theta \approx 30^\circ$. On peut également citer la corrélation purement empirique de Arrègle et al. [25] obtenue à partir de données expérimentales :

$$\tan(\theta) = d_0^{0.508} P_{\text{inj}}^{0.00943} \rho_{\text{gaz}}^{0.335} \quad (7)$$

où d_0 est exprimé en m, P_{inj} en bar et ρ_{gaz} en kg.m^{-3} . Cette corrélation nous indique que la dépendance de θ en fonction de la pression d'injection est très faible. En considérant une pression d'injection $P_{\text{inj}} \approx 155 \text{ bar}$, nous obtenons un angle total d'ouverture du jet $\theta \approx 40^\circ$. Toutes les corrélations présentes dans la littérature dépendent de deux paramètres principaux qui sont la géométrie de l'orifice et les conditions thermodynamiques du gaz ambiant. Cette donnée nous a également permis de développer un modèle de relaxation des gouttes pour le calcul des coefficients d'échange moyen (chapitre 3).

2.1.3 L'expansion spatiale du jet : la pénétration

Le troisième paramètre caractérisant un spray liquide correspond à son expansion spatiale, c'est-à-dire sa pénétration. L'étude de ce paramètre est basée sur des études expérimentales permettant de caractériser l'évolution temporelle du spray et ainsi de mesurer des longueurs et des vitesses de pénétration. Les techniques expérimentales permettant d'effectuer ces mesures sont principalement la stroboscopie et l'ombroscopie. L'ombroscopie consiste à placer le spray

liquide entre une source de lumière (continue ou pulsée, lampe flash) et une caméra. Les zones du spray qui apparaissent sur l'image seront donc d'autant plus sombres qu'elles absorberont la lumière émise. Les clichés suivants ont été obtenus pour un spray de white-spirit à température ambiante (fluide aux caractéristiques proches de celle de l'essence). La pression d'injection est de 800 bar et la pression du milieu aval de 1 bar. Le diamètre de l'orifice utilisé est de 0.7 mm.

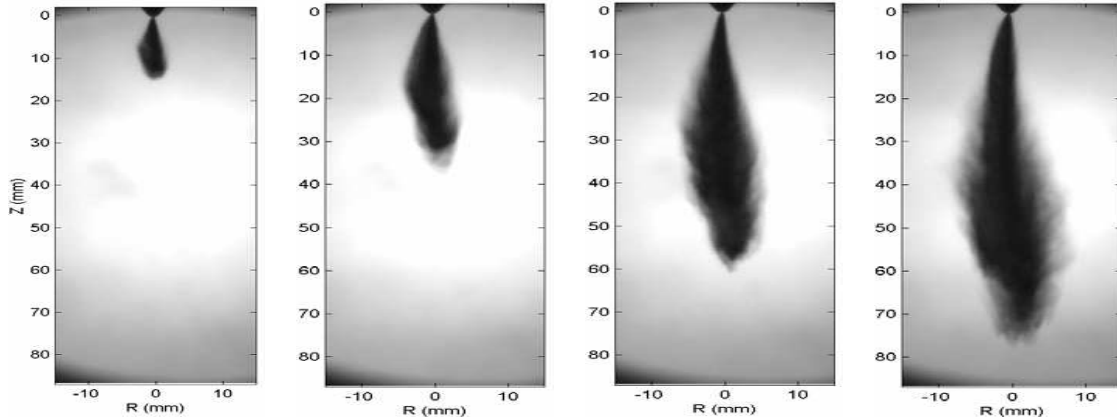


FIGURE 10 – Visualisation ombroscopique de l'évolution temporelle d'un spray [26]

Il ressort des travaux de Arbeau et al. [26] que l'augmentation de la vitesse d'injection conduit à une augmentation de la longueur et de la vitesse de pénétration accompagnée d'une expansion radiale du spray. La pression du milieu aval joue également un rôle très important au niveau de l'expansion radiale. La caractérisation de ce paramètre est primordiale pour l'étude de la quantité d'air entraînée et par conséquent sur le taux de mélange. Cette information est très importante pour l'optimisation d'une chambre de combustion (mélange carburant/comburant). Il existe dans la littérature des corrélations de nature empirique qui dépendent de la pression d'injection, du temps de développement caractéristique et des conditions thermodynamiques de la phase liquide et de la phase gaz.

2.1.4 La taille de gouttes générées : diamètre moyen

La déstabilisation d'un jet liquide dans une atmosphère gazeuse au repos conduit à la production de ligaments et de gouttes liquides de différentes tailles. En effet, un spray se caractérise par un très grand nombre de classes de tailles (distribution poly dispersée). Afin de suivre l'évolution de chacune de ces classes de tailles, nous avons recours à l'utilisation d'outils statistiques et plus particulièrement aux fonctions de densité de probabilité. Ces fonctions permettent de définir différentes formes de distributions, elles-mêmes caractérisées par différents paramètres. La plus connue et la plus utilisée pour étudier un spectre de gouttes est la distribution log-normale. Elle est définie par deux paramètres (r_g , le rayon géométrique et σ , l'écart type) et sa fonction de densité de probabilité est donnée par la relation (Annexe A) :

$$f(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\ln(\sigma)}r} e^{-\frac{(\ln(r)-\ln(r_g))^2}{2\ln^2\sigma}} \quad (8)$$

Cependant, il est possible de rencontrer d'autres distributions comme celle de Rosin-Rammler (Annexe A). Cette distribution fait également intervenir deux paramètres, \bar{r} , un rayon moyen caractéristique et k un facteur représentatif de la dispersion. La fonction de densité de probabilité prend alors la forme suivante :

$$f(r) = \frac{kr^{k-1}}{\bar{r}^k} e^{-\left(\frac{r}{\bar{r}}\right)^k} \quad (9)$$

Après avoir défini la notion de distribution granulométrique, il est possible d'introduire d'autres paramètres très utilisés pour étudier la granulométrie d'un spray, les indicateurs de position. Il existe un très grand nombre de rayons caractéristiques tous regroupés dans une relation générale :

$$r_{ij} = \left(\frac{\int_0^\infty r^i f(r) d(r)}{\int_0^\infty r^j f(r) d(r)} \right)^{\frac{1}{i-j}} \quad (10)$$

La somme $(i+j)$ s'appelle l'ordre du rayon moyen. En règle générale, on utilise le rayon moyen de Sauter, défini par le rapport entre la distribution volumique et la distribution surfacique. En effet, il caractérise le rapport entre la masse transportée par une distribution (inertie) et la surface développée par cette même distribution (échanges). Son expression est par conséquent donnée par la relation 10 pour $i=3$ et $j=2$:

$$r_{32} = \left(\frac{\int_0^\infty r^3 f(r) d(r)}{\int_0^\infty r^2 f(r) d(r)} \right) \quad (11)$$

Dans le cadre de ce travail, nous considérons que les différentes classes de tailles générées au niveau de la brèche suivent une distribution log-normale. Afin de remonter au rayon géométrique, paramètre d'entrée pour la distribution log-normale, nous utilisons la relation (Annexe A) :

$$r_{32} = r_g \cdot e^{\frac{5}{2} \ln^2 \sigma} \quad (12)$$

L'écart-type est fixé de manière arbitraire et fera l'objet d'une analyse de sensibilité. Dans ce qui suit, on propose une corrélation qui relie le rayon de Sauter aux paramètres du jet (diamètre de l'orifice, vitesse à la brèche, données thermodynamiques, ...)

2.2 Les différents régimes de fractionnement

Le fractionnement d'un jet liquide provenant d'un orifice, dans un gaz au repos dépend d'un très grand nombre de paramètres : la nature de l'écoulement à l'intérieur de l'orifice (phénomène de cavitation, turbulence à l'extrémité de l'orifice, vena contracta,...), des conditions thermo-hydrauliques du liquide et du gaz et de la géométrie de l'orifice. Actuellement, il reste un grand nombre d'interrogations quant à la nature et au degré d'implication de chacun des mécanismes présents lors du fractionnement d'un jet liquide. Cependant, des modèles basés sur la théorie des instabilités linéaires (Rayleigh-Taylor, Kelvin-Helmoltz) permettent de donner une description quantitative des différents modes de fractionnement du jet liquide à l'extérieur de l'orifice. En revanche, il n'existe pas de modèles physiques permettant de décrire les mécanismes se développant à l'intérieur de l'orifice. Seules des observations expérimentales permettent d'établir des corrélations de nature empirique. On distingue généralement deux modes de fractionnement : Le **fractionnement primaire** est caractérisé par une déstabilisation de l'interface liquide-gaz sur toute la longueur du cône potentiel. Ces instabilités conduisent au détachement de fragments liquides de différentes formes selon leurs tailles (ligaments, gouttes,...). Ces fragments peuvent subir ensuite, par le biais des forces aérodynamiques, des cassures et former un brouillard de fines gouttelettes. Il s'agit du mécanisme de **fractionnement secondaire**.

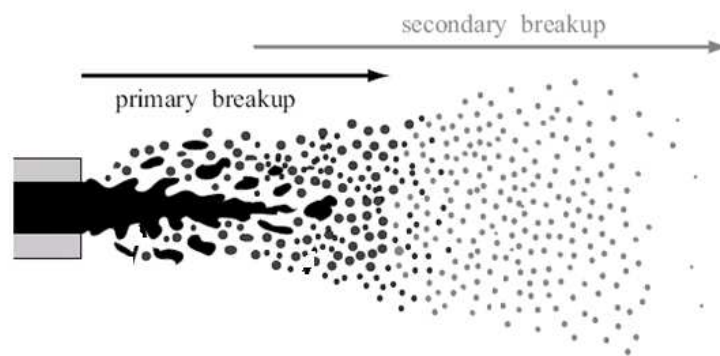


FIGURE 11 – Fractionnement primaire/fractionnement secondaire, d'après Hermann [27]

2.2.1 Fractionnement primaire

La désintégration partielle du coeur liquide est pilotée par la géométrie de l'orifice, la pression et la nature du fluide s'échappant au niveau de la brèche. Suivant la géométrie de l'orifice, le fractionnement primaire se développe sous la forme d'un jet cylindrique ou d'une nappe liquide. Pour une brèche générée spontanément dans une conduite, le fractionnement primaire est une combinaison plus ou moins chaotique de ces deux cas d'école.

Les différents régimes de désintégration d'un jet liquide dans un gaz au repos peuvent s'étudier à travers l'évolution de la longueur de rupture (L_c) en fonction de la vitesse du liquide au niveau de l'orifice. Pour des vitesses d'injection très faibles, le régime de fractionnement se nomme « dripping-flow ». Il s'agit d'un régime de goutte à goutte. Les forces de gravité pilotent le processus de rupture et la distance entre deux gouttes est du même ordre de grandeur que la longueur caractéristique du système liquide. La rupture s'effectue dès la sortie de la brèche.

Pour des vitesses plus élevées, Reitz et al [28] ont identifié quatre autres régimes de fractionnement

ment combinant les forces d'inertie, les forces de tension de surface et les forces aérodynamiques. Respectivement, et par ordre de vitesse d'injection croissante, nous avons le régime de Rayleigh, le premier et le second régime d'action aérodynamique et enfin le régime d'atomisation.

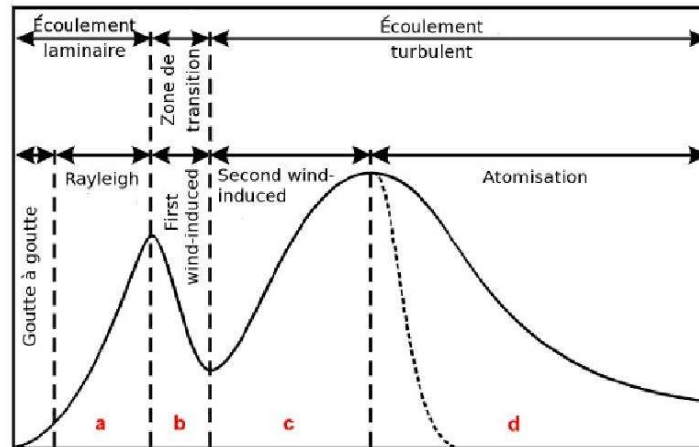


FIGURE 12 – Courbe de stabilité des jets liquides, d'après Leipertz [29] (Longueur du cône liquide en fonction de la vitesse d'injection)

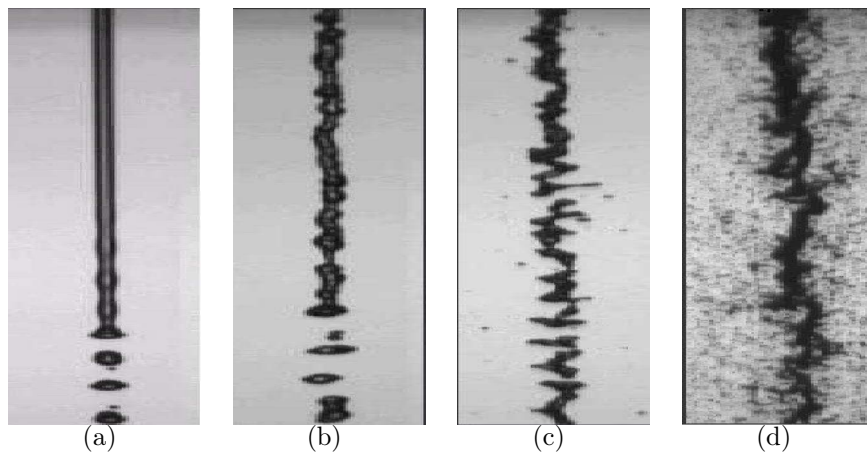


FIGURE 13 – Photos des différents régimes de rupture, d'après Leroux [30]

Le premier régime de fractionnement, le **régime de Rayleigh** (figure 13 (a)), correspond à un jet laminaire. La vitesse de la phase liquide augmente, et l'écoulement reste continu sur une certaine distance. Les forces de tension de surface gouvernent le processus de rupture. Des oscillations axisymétriques provoquées par les forces de capillarité se développent à la surface du cône liquide et sont responsables de la dislocation de fragments avec un diamètre moyen de l'ordre de deux fois celui du système liquide. La distance à laquelle apparaissent les premières gouttes augmente de manière quasi linéaire avec la vitesse.



FIGURE 14 – Régime de Rayleigh [31]

Pour le **premier régime d'action aérodynamique** (figure 13 (b)), la longueur de rupture diminue quand la vitesse du jet augmente. Le fractionnement s'opère à une distance plus faible et le diamètre des gouttes produites diminue. Ce régime est caractérisé par une opposition entre les forces de capillarité et l'effet du mouvement relatif au niveau de l'interface liquide-gaz. Des instabilités de cisaillement, de type Kelvin-Helmholtz, se développent au niveau de la surface du jet.

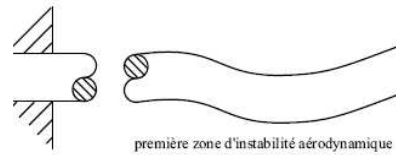


FIGURE 15 – Premier régime d'action aérodynamique [31]

Pour des vitesses plus élevées encore, **second régime d'action aérodynamique** (figure 13 (c)), le fractionnement se produit à une distance plus faible, bien que la longueur du cône liquide augmente (figure 4). De fortes amplifications des instabilités de surface se produisent pour des faibles longueurs d'onde, et donnent naissance à des gouttes de plus en plus petites. A ce stade, la structure du jet à proximité de la surface est complètement turbulente. Les gouttes formées ont un diamètre inférieur à la longueur caractéristique du système.

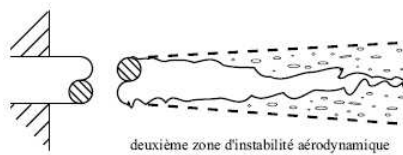


FIGURE 16 – Deuxième régime d'action aérodynamique [31]

Enfin, pour le dernier régime de fractionnement, le **régime d'atomisation** (figure 13 (d)), nous observons une décroissance de la longueur de rupture pour de très fortes vitesses en sortie. La turbulence ainsi que d'autres paramètres comme la forme de la brèche conditionnent la localisation et la taille des gouttelettes. Dès la sortie, un brouillard dense de fines gouttelettes est formé. On parle alors de régime d'atomisation pleinement développé.

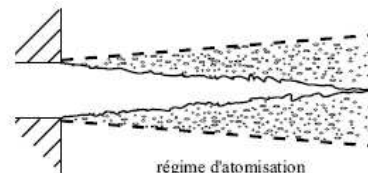


FIGURE 17 – Régime d'atomisation [31]

Théoriquement, ces différents régimes peuvent être reliés à deux nombres sans dimension : le nombre de Reynolds, Re et le nombre de Weber, We . Le nombre de Reynolds est défini par le rapport entre la vitesse de convection et la vitesse de diffusion visqueuse :

$$Re = \frac{UL}{\nu} = \frac{\rho UL}{\mu} \quad (1)$$

où ρ , ν et μ sont respectivement la masse volumique, la viscosité cinématique et dynamique. U correspond à la vitesse et L est la longueur caractéristique qui dépend du système étudié. Il est donc possible de définir différents nombres de Reynolds comme le nombre de Reynolds liquide à la brèche caractérisé par le diamètre de l'orifice d_0 , la vitesse au niveau de la brèche U_0 et les conditions thermodynamiques de la phase liquide (ρ_{liq} , ν_{liq} et μ_{liq}). Dans le cas d'un écoulement diphasique, liquide-vapeur, le nombre de Reynolds associé à une goutte en mouvement est donné par la relation :

$$\text{Re}_{\text{goutte}} = \frac{\rho_{\text{gaz}} |U_{\text{liq}} - U_{\text{gaz}}| d_{\text{goutte}}}{\mu_{\text{gaz}}}$$

où U_{liq} et U_{gaz} sont respectivement la vitesse de la phase liquide et la vitesse de la phase gaz dans la couche de mélange. En ce qui concerne le nombre de Weber, il est caractérisé par le rapport entre la pression dynamique et la pression hydrostatique :

$$\text{We} = \frac{\rho U^2 d}{\sigma} \quad (2)$$

De la même manière, il est possible d'attribuer un nombre de Weber à la brèche, en prenant comme longueur caractéristique le diamètre de l'orifice et la vitesse de la phase liquide. Il est également possible de définir un nombre de Weber gazeux, permettant d'évaluer la capacité d'une goutte liquide en mouvement dans un gaz à résister, grâce aux forces de tension de surface, aux forces aérodynamiques induites par celui-ci :

$$\text{We}_{\text{gaz}} = \frac{\rho_{\text{gaz}} |U_{\text{liq}} - U_{\text{gaz}}|^2 d_{\text{goutte}}}{\sigma_{\text{liq}}} \quad (3)$$

En utilisant ces deux nombres sans dimension, représentatifs de la nature de l'écoulement, Ohnesorge [32] est le premier à avoir proposé une classification des quatre régimes de fractionnement en introduisant un nouveau nombre sans dimension, le nombre d'Ohnesorge, donné par la relation :

$$\text{Oh} = \frac{\sqrt{\text{We}}}{\text{Re}} = \frac{\mu}{\sqrt{\rho \sigma d}} \quad (4)$$

Généralement, le nombre d'Ohnesorge est utilisé pour étudier la déformation d'une bulle ou d'une goutte dans un milieu. En régime stationnaire, différents auteurs (Reitz [33], Faeth [31], ...) proposent une classification des différents régimes de fractionnement en fonction des nombres sans dimension décrits précédemment :

Ces classifications proviennent d'observations expérimentales. La classification indiquée par Reitz [33] est fonction du nombre de Ohnesorge liquide et du nombre de Reynolds liquide calculés à la brèche. La classification proposée par Faeth [31] est fonction du nombre de Weber gazeux. Ce diagramme présente des zones hachurées traduisant un manque de données expérimentales. Ce diagramme nous indique également que, pour des grands nombres de Ohnesorge, le jet liquide se trouve toujours dans un état stable. En effet, un grand nombre d'Ohnesorge est typique d'un fluide très visqueux. Dans cette représentation des critères de transition, aucune séparation n'est faite entre les deux régimes d'action aérodynamique.

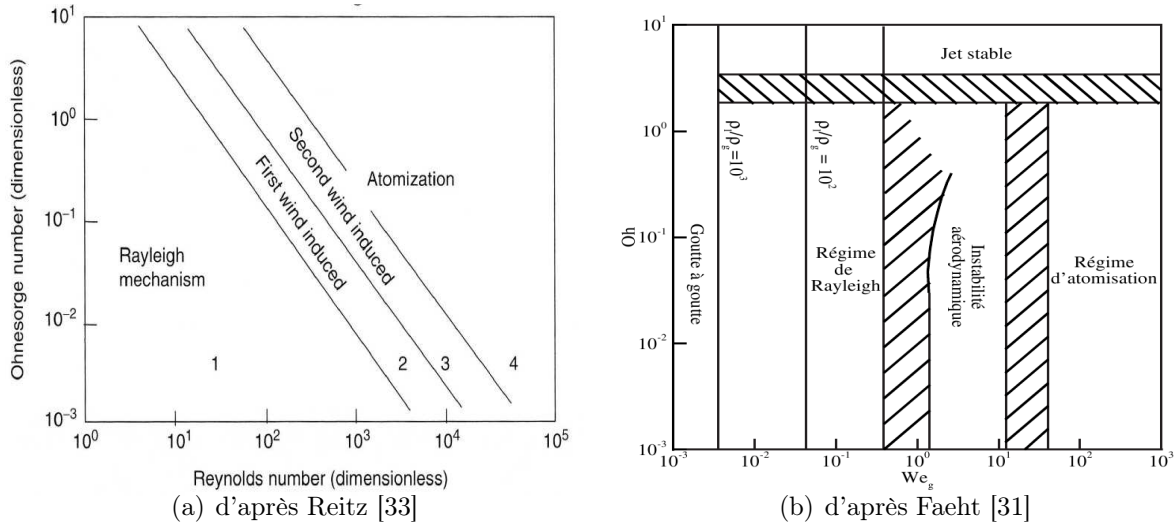


FIGURE 18 – Les critères de transitions des différents modes de fractionnement

D'autres critères de transition entre les régimes ont été synthétisés par Lin et Reitz [34] et sont présentés dans le tableau suivant :

Régimes	Conditions thermohydrauliques
Régime de Rayleigh	$We_{liq} > 8$ et $We_{gaz} < 0.4$
Premier régime d'action aérodynamique	$0.4 < We_{gaz} < 13$
Deuxième régime d'action aérodynamique	$13 < We_{gaz} < 40.3$
Régime d'atomisation	$We_{gaz} > 40.3$

TABLE 1 – Classification des différents régimes de fragmentation mécanique

Dans notre cas, au début d'un transitoire accidentel, la vitesse à la brèche est d'environ 130 m.s^{-1} . La température et la pression de la phase liquide ($T_{liq} \approx 570 \text{ K}$ et $P_{liq} \approx 155 \text{ bar}$) conduisent à une masse volumique $\rho_{liq} \approx 730 \text{ kg.m}^{-3}$, une viscosité cinématique $\nu_{liq} \approx 1 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ et une tension de surface $\sigma_{liq} \approx 1.5 \cdot 10^{-2} \text{ N.m}^{-1}$. La pression et la température du circuit secondaire ($P_2 \approx 60 \text{ bar}$ et $T_{sat}(P_2) \approx 546 \text{ K}$) conduisent à une masse volumique du gaz $\rho_{gaz} \approx 30 \text{ kg.m}^{-3}$. En considérant une brèche circulaire avec un diamètre $d_0 \approx 1.1 \cdot 10^{-2} \text{ m}$, nous pouvons donner une estimation de ces différents nombres sans dimension. Nous obtenons avec ces conditions, un nombre de Reynolds $Re_{liq} \approx 1 \cdot 10^7$, un nombre de Weber $We_{liq} \approx 8 \cdot 10^6$, et un nombre d'Ohnesorge $Oh_{liq} \approx 2.7 \cdot 10^{-4}$. En considérant uniquement la vitesse de la phase liquide, nous pouvons également donner une valeur supérieure du nombre de Weber gazeux, $We_{gaz} \approx 3.6 \cdot 10^5$.

D'autre part, la vitesse de transition entre le second régime d'action aérodynamique et le régime d'atomisation est, suivant le tableau précédent, $|U_{liq} - U_{gaz}| \approx 1.4 \text{ m.s}^{-1}$.

Suite à cette description qualitative des différents régimes de rupture d'un jet liquide dans une atmosphère au repos, nous sommes en mesure d'identifier le régime de fractionnement le plus probable dans le cas d'un accident de type RTGV : c'est le **régime d'atomisation**. Dans ces conditions, la fraction liquide transférée du circuit primaire vers le circuit secondaire est transformée en un brouillard de petites gouttelettes à proximité de la brèche.

La modélisation du fractionnement primaire est très délicate à traiter. C'est pourquoi on a recours, en règle générale, à une simplification qui consiste à traiter directement la fragmentation secondaire dès la sortie de l'orifice. Dans cette procédure, on considère des paquets ou des gouttes sphériques (blob models) dont la taille est du même ordre de grandeur que le diamètre de l'orifice. Ces gouttes primaires vont se fragmenter. L'étude des instabilités de type Rayleigh-Taylor et Kelvin-Helmholtz permet de définir des critères de rupture et ainsi de suivre l'évolution de la taille des gouttes au cours du temps.

2.2.2 Fractionnement secondaire

Le phénomène de fractionnement secondaire débute dès que les premiers fragments sont arrachés à la surface du cône liquide. Les gouttes et les ligaments produits par le fractionnement primaire peuvent subir, par le biais des forces aérodynamiques, une rupture. Pour une goutte liquide à l'équilibre en suspension dans un gaz au repos, la relation entre le différentiel de pression et le diamètre est, conformément à la formule de Laplace :

$$\Delta P = \frac{4\gamma}{d} \quad (5)$$

Si la pression du gaz environnant augmente, alors la pression à l'intérieur de la goutte doit augmenter pour conserver un équilibre stable. Si la pression du gaz augmente trop, alors la goutte liquide peut se fragmenter en plusieurs petites gouttes. Si la goutte est soumise à un écoulement gazeux, alors la rupture sera pilotée par les forces aérodynamiques et les forces de tensions de surface (nombre de Weber). Nous proposons, dans le cadre de ce travail de donner une description synthétique des résultats présentés par Pilch et Erdman [35]. Ce modèle nous permet de passer en revue les principaux régimes de fractionnement d'une goutte liquide et également d'introduire la notion de **Weber critique**, valeur seuil pour laquelle la goutte se fragmente (figure 19). Ce paramètre entrera en considération dans la démarche visant à établir un critère pour évaluer le nombre de fragments suite à l'éclatement d'une goutte surchauffée (chapitre 3 : fragmentation thermique, section 3.5 critères de rupture).

Des observations expérimentales ([36], [35]) ont conduit Pilch et al. [35] à proposer une corrélation reliant le nombre de Weber critique au nombre d'Ohnesorge :

$$We_c = 12 (1 + 1.077 Oh^{0.6}) \quad (6)$$

Pour des fluides à faible nombre d'Ohnesorge $Oh < 0.1$, c'est-à-dire pour des fluides présentant une très faible viscosité, le nombre de Weber critique est indépendant du nombre d'Ohnesorge. Dans cette gamme il est constant et égal à $We_c = 12$. Si le nombre de Weber associé à la goutte est supérieur à cette valeur critique $We_{gaz} > We_c$ alors la goutte se fragmente selon différents modes de cassure. Pilch et Erdman [35] proposent une classification de ces différents modes de rupture en fonction de ce nombre sans dimension en incluant un autre mode pour des nombres de Weber gaz inférieurs au nombre de Weber critique, l'atomisation simple. En effet, ce mode de fractionnement génère un nombre de fragments limités et par conséquent n'affecte que très faiblement la distribution granulométrique.

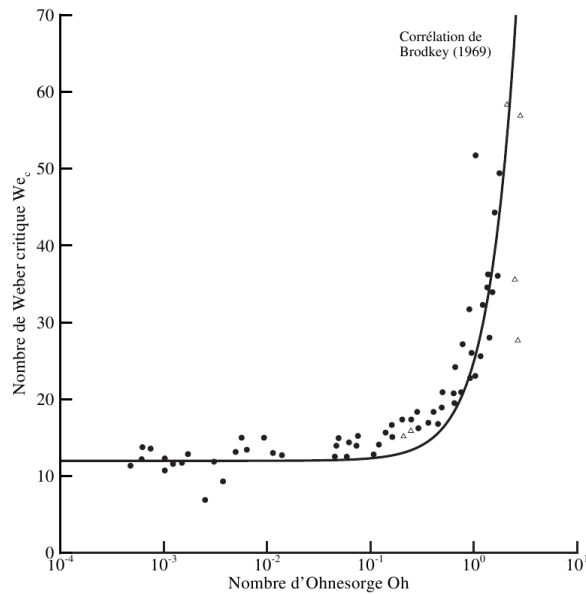


FIGURE 19 – Evolution du nombre de Weber critique en fonction du nombre d’Ohnesorge [35]

⇒ **Atomisation simple / Vibrational Break-up** ($We_{\text{gaz}} < We_c = 12$)

Pour un écoulement à très faible nombre de Weber (régime laminaire), deux gouttes se séparent de manière symétrique en formant au centre une gouttelette satellite de petite taille. Ce processus prend fin très rapidement car les forces de tension de surface l’emportent sur les forces inertielles pour des gouttes de petite taille. Ensuite, la goutte oscille suivant une fréquence propre avec une amplitude croissante, jusqu’à atteindre la désintégration en plusieurs gros fragments (le plus souvent 2, 4 et parfois 8 fragments).



FIGURE 20 – Atomisation simple

⇒ **Atomisation en sac / Bag Break-up** ($12 \leq We_{\text{gaz}} \leq 50$)

La goutte s’aplatit perpendiculairement à la direction de l’écoulement et forme un sac creux à bord épais. La rupture s’effectue dans un premier temps au niveau du fond et génère de petites gouttes, puis le bord se fragmente en plus gros fragments.



FIGURE 21 – Atomisation en sac

⇒ **Atomisation par arrachement / Stripping Break-up** ($50 \leq We_{\text{gaz}} \leq 350$)

La goutte initiale est écrasée en un disque et des lamelles liquides, formées à la périphérie, sont épluchées et se brisent en petites gouttelettes.

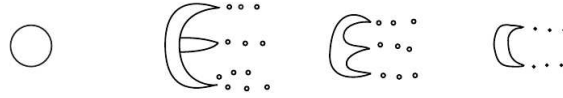


FIGURE 22 – Atomisation par arrachement

⇒ **Atomisation explosive / Explosive Break-up** ($We_{\text{gaz}} > 350$)

La goutte liquide se trouvant dans ce régime se désintègre quasi instantanément en un brouillard de très fines gouttelettes.

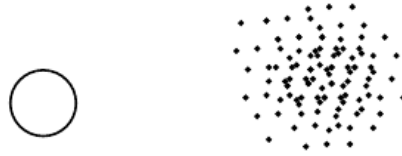


FIGURE 23 – Atomisation explosive

2.3 Modélisation de l'atomisation primaire : corrélations

L'étude bibliographique présentée dans la section précédente nous a permis de mettre en évidence deux régimes de fractionnement à l'origine de la formation des gouttelettes liquides : le régime de fractionnement primaire, se situant dès la sortie de l'orifice jusqu'à la disparition complète du coeur liquide, et le régime de fractionnement secondaire, affectant les gouttes liquides issues du premier mode de fragmentation.

Au début du transitoire accidentel, la vitesse très élevée au niveau de la brèche (environ 130 m.s^{-1}) conduit le jet liquide à se désagréger directement en un brouillard de fines gouttelettes (régime d'atomisation). Puis, la vitesse à la brèche diminue progressivement (équilibre des pressions entre le circuit primaire et secondaire) ce qui conduit le jet à être dans le second et le premier régime d'action aérodynamique puis le régime de Rayleigh. Ces trois régimes génèrent essentiellement des ligaments et des gouttes liquides de grosse taille qui vont par gravité tomber dans la phase immergée du générateur de vapeur. Les gouttes provenant du régime d'atomisation primaire peuvent subir à nouveau des ruptures (fragmentation secondaire).

En conséquence, il faut retenir que, étant donné notre objectif (évaluation du transfert direct au secondaire) nous considérerons uniquement les gouttes produites par le régime d'atomisation. D'autre part, étant donnée la difficulté théorique à décrire le cône liquide, la plupart des modèles considèrent uniquement la fragmentation de grosses gouttes ou de ligaments formés dès la sortie de l'orifice (fragmentation secondaire). Le problème est donc ramené à l'étude de la déstabilisation d'un ligament ou d'une goutte liquide dans un écoulement gazeux.

On distingue deux types d'approche : l'approche mécaniste et l'approche basée sur l'utilisation de corrélations expérimentales.

2.3.1 Approche mécaniste

Des modèles basés sur la théorie linéaire des instabilités permettent d'étudier les différents régimes de déformation de surface. Le modèle Wave [37] repose sur l'étude des instabilités de surface de type Kelvin-Helmholtz. En effet, dans ce modèle, l'origine de la fragmentation provient de la différence de vitesse entre la phase gaz et la phase liquide. La résolution d'une équation de dispersion permet de déterminer la longueur et la fréquence conduisant au plus fort taux d'accroissement, c'est-à-dire à l'onde la plus instable. Connaissant ces deux paramètres, il est possible de remonter au temps de rupture et à la taille du fragment généré.

Nous pouvons également citer les modèles TAB (Taylor Analogy Breakup)[38] et DDB (Droplet Deformation and Breakup) [39] qui supposent que la rupture de la goutte est engendrée par sa trop grande déformation. L'analogie de Taylor consiste à transposer l'étude de l'oscillation de la goutte à un cas classique d'oscillation (exemple du pendule). Dans ce contexte, les forces d'amortissement sont liées à la viscosité du liquide, les forces extérieures aux forces aérodynamiques et la force de rappel aux forces de tension de surface. L'analyse en mode de l'équation type oscillateur amorti permet de déterminer les différents modes de rupture (relation de dispersion).

Enfin, nous pouvons citer le modèle de Hug et Gosman [40], où le fractionnement est piloté par l'énergie cinétique turbulente du jet liquide et par l'inertie du gaz. La turbulence du jet liquide provoque une perturbation et les forces aérodynamiques l'amplifient jusqu'à atteindre la rupture. Cependant, la mise en place de ce type de modèle nécessite une description spatiale et temporelle de la turbulence ce qui sort du cadre de ce travail.

A l'heure actuelle, un grand nombre de données telles que les conditions de l'écoulement dans l'orifice (vena contracta, écoulement diphasique, ...), l'entraînement d'air (structure turbulente du jet), sont difficilement modélisables. L'amélioration de ces modèles repose également sur une meilleure compréhension du jet dans son ensemble, rendue possible par les différentes expériences utilisant des dispositifs de mesure de plus en plus performants.

2.3.2 Corrélations

Une autre approche permettant de modéliser l'atomisation primaire consiste à utiliser des corrélations de nature empirique. Nous trouvons dans la littérature de nombreuses corrélations permettant de calculer un diamètre représentatif de la population de gouttes générées au niveau de l'orifice en fonction des conditions thermohydrauliques initiales. Ces corrélations sont écrites en fonction de nombres sans dimension typiques de ce genre de problème.

En notant $\Delta U = |u_{liq} - U_{gaz}|$, le nombre de Reynolds :

$$Re_{gaz} = \frac{\Delta U d_{goutte}}{\nu_{gaz}} \quad (1)$$

$$Re_{liq} = \frac{U_{liq} d_0}{\nu_{liq}} \quad (2)$$

De même, le nombre de Weber :

$$We_{gaz} = \frac{\rho_{gaz} \Delta U^2 d_{goutte}}{\sigma_{liq}} \quad (3)$$

$$We_{liq} = \frac{\rho_{liq} U_{liq}^2 d_0}{\sigma_{liq}} \quad (4)$$

Le nombre de viscosité :

$$N_\mu = \frac{\mu_{liq}}{(\rho_{liq} \sigma_{liq} \Lambda)^{\frac{1}{2}}} \quad (5)$$

Avec :

$$\Lambda = \sqrt{\frac{\sigma}{g \rho_{liq}}} \quad (6)$$

où Λ est une longueur caractéristique des instabilités de Rayleigh-Taylor. On écrit aussi, dans certaines corrélations :

$$N_\mu = \frac{\mu_{liq}}{(\rho_{liq} \sigma_{liq} d_{goutte})^{\frac{1}{2}}} \quad (7)$$

Le nombre d'Ohnesorge est :

$$Oh = \frac{\sqrt{We}}{Re} \quad (8)$$

Par exemple en considérant le nombre de Weber gazeux et le nombre de Reynolds gazeux :

$$Oh_{gaz} = \frac{\sqrt{\frac{\rho_{gaz}\Delta U^2 d_{goutte}}{\sigma_{liq}}}}{\frac{\Delta U d_{goutte}}{\nu_{gaz}}} = \frac{\nu_{gaz}}{\nu_{liq}} \frac{\rho_{liq}\nu_{liq}}{\sqrt{\rho_{liq}\sigma_{liq}d_{goutte}}} \sqrt{\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}} = \frac{\nu_{gaz}}{\nu_{liq}} \sqrt{\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}} N_{\mu} \quad (9)$$

Ce nombre ne dépend que des propriétés du liquide et du gaz et est indépendant de la vitesse de l'écoulement.

Remarque : signification physique du nombre de viscosité.

On peut écrire :

$$N_{\mu} = \frac{\nu_{liq}}{\sqrt{\frac{\sigma}{\rho_{liq}}}} = \frac{\nu_{liq}}{\sqrt{g\Lambda}\sqrt{\frac{\sigma}{g\rho_{liq}}}} = \frac{\nu_{liq}}{\sqrt{g\Lambda}\Lambda} \quad (10)$$

Par conséquent, l'inverse du nombre de viscosité est le nombre de Reynolds liquide en prenant Λ comme longueur caractéristique et $\sqrt{g\Lambda}$ comme vitesse caractéristique.

En règle générale, les dispositifs expérimentaux utilisent des capteurs de pression et de température afin de contrôler les conditions thermodynamiques de stockage du liquide.

Ces données nous permettent de calculer théoriquement la vitesse d'injection qui apparaît dans la plupart des corrélations.

Calcul de la vitesse d'injection :

Dans un écoulement turbulent à travers un orifice, le fluide est accéléré au niveau de la brèche. On admet que l'écoulement est monophasique liquide en amont de la brèche, et donc incompressible. On peut exprimer la vitesse à la brèche pour le débit théorique maximal par deux méthodes. La première consiste à utiliser la relation de Bernoulli ($e_1 + \frac{P_1}{\rho_1} + \frac{1}{2}u_1^2 = e_2 + \frac{P_2}{\rho_2} + \frac{1}{2}u_2^2$). Pour un fluide incompressible et isotherme, et en considérant le fluide primaire au repos, on obtient la relation classique :

$$u_{liq} = c_d \sqrt{\frac{2\Delta P}{\rho_{liq}}} \quad (11)$$

La seconde méthode consiste à utiliser l'expression démontrée par Delhaye [41] pour une perte de charge singulière (élargissement brusque) :

$$P_1 - P_2 = \frac{1}{2}\rho_1 u_1^2 (1 - \sigma)^2 \quad (12)$$

où $\sigma = \frac{S_1}{S_2}$ où S_1 et S_2 sont respectivement les sections de l'écoulement en amont et en aval de la discontinuité. Quand σ tend vers 0, on retrouve bien la relation (11). En réalité, la vitesse à la brèche est toujours légèrement plus faible à cause de la perte d'énergie irréversible à l'orifice, qui se traduit par un coefficient de décharge c_d . Le débit massique réel est donc :

$$\dot{m} = c_d \rho_{\text{liq}} S \sqrt{\frac{2\Delta P}{\rho_{\text{liq}}}} \quad (13)$$

Pour une pression amont donnée, ce débit augmente quand la pression aval diminue, jusqu'au blocage sonique. En effet, la vitesse de l'écoulement dans le liquide ne peut pas dépasser la vitesse du son. Pour la confrontation du modèle avec les résultats expérimentaux, les données qui sont fournies par les expérimentateurs, pour les différents tests, sont la différence de pression et les conditions thermodynamiques du réservoir de stockage. On déduit la vitesse d'injection et le débit de la relation (13), sauf en cas de blocage sonique. La vitesse du son dans l'eau est donnée par la relation :

$$c^2 = \frac{c_p}{c_v} \frac{1}{\chi_s \rho_{\text{liq}}} = \frac{c_p}{c_v} \frac{P_{\text{liq}}}{\rho_{\text{liq}}} \frac{\beta_v}{\alpha_p} \quad (14)$$

où c_p et c_v sont respectivement les capacités thermiques à pression et à volume constant ($\text{J.kg}^{-1}\text{K}^{-1}$), χ_s est le coefficient de compressibilité isentropique (Pa^{-1}), P la pression du liquide, ρ_{liq} la masse volumique liquide et β_v et α_p le coefficient de compressibilité isochore (K^{-1}) et le coefficient d'expansion cubique (K^{-1}). Si la vitesse du liquide au niveau de la brèche calculée par (13) est supérieure à la vitesse du son, alors il faut se placer dans les conditions du régime critique, ce qui se traduit par un débit bloqué (sonique).

Connaissant la vitesse du liquide à la brèche, il est possible de calculer le nombre de Reynolds $Re_{\text{liq},0}$ et le nombre de Weber $We_{\text{liq},0}$, paramètres clés pour l'utilisation des corrélations permettant d'évaluer le diamètre moyen de Sauter des gouttes générées à proximité de l'orifice. Un grand nombre de corrélations de la littérature provient du domaine de la combustion. En effet, l'optimisation d'une chambre de combustion passe par une augmentation de la surface totale d'échange des gouttelettes de carburant produites au niveau de l'injecteur. Nous pouvons citer comme première référence, la corrélation d'Elkottb [42] qui considère que le fractionnement du jet s'effectue dès la sortie de l'injecteur. Le résultat donné par la corrélation est le diamètre de Sauter de la distribution expérimentale. Cette corrélation est obtenue en interpolant différents résultats expérimentaux en fonction d'un groupement de nombres sans dimension. Le groupement qui permet de corréler tous les résultats est :

$$X = Re_{\text{liq},0}^{-0.434} We_{\text{liq},0}^{-1.05} c_d^{-1.0} \left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \right)^{-0.12} \quad (15)$$

Avec ce groupement, on obtient :

$$\frac{d_{32}}{d_0} = 107 X^{0.422} \quad (16)$$

d_{32}	: diamètre de Sauter	(m)
d_0	: diamètre de l'orifice	(m)
$Re_{\text{liq},0}$: nombre de Reynolds liquide à la brèche	(-)
$We_{\text{liq},0}$: nombre de Weber liquide à la brèche	(-)
c_d	: coefficient de décharge	(-)
ρ_{liq}	: masse volumique de la phase liquide	(kg.m^{-3})
ρ_{gaz}	: masse volumique de la phase gaz	(kg.m^{-3})

Dans le cas d'un orifice idéal, le coefficient de décharge est égal à 1. Dans le cas contraire, il existe des abaques donnant sa valeur en fonction de la géométrie de l'orifice.

Cette corrélation a été obtenue pour des carburants de compositions différentes (gazole, kérosène,...) avec un diamètre interne d'injecteur égal à 0.55 mm. Les mesures expérimentales ont été réalisées sous des variations de pression maximum d'environ 118 bar. Le dispositif d'impaction permettant la mesure de la taille des gouttes générées est disposé à 60 cm de l'injecteur. Il s'agit d'une plaque recouverte d'un substrat permettant d'imprimer la marque de la goutte lorsqu'elle impacte le support. Une analyse à l'aide d'un microscope permet ensuite de mesurer la taille des cratères générés. Elkotb [42] donne une autre expression de cette corrélation donnant le diamètre moyen de Sauter en fonction de la différence de pression entre l'amont et l'aval de l'injecteur.

On peut citer la corrélation de Hiroyasu et al. [22] qui s'obtient en prenant le diamètre maximal des deux diamètres suivants :

$$\frac{d_{32}}{d_0} = \max \left\{ \begin{array}{l} 4, 12 Re_{liq0}^{0,12} We_{liq0}^{-0,75} \left(\frac{\mu_{liq}}{\mu_{gaz}} \right)^{0,54} \left(\frac{\rho_{liq}}{\rho_{gaz}} \right)^{0,18} \\ 0, 38 Re_{liq0}^{0,25} We_{liq0}^{-0,32} \left(\frac{\mu_{liq}}{\mu_{gaz}} \right)^{0,37} \left(\frac{\rho_{liq}}{\rho_{gaz}} \right)^{-0,47} \end{array} \right.$$

Les tailles de gouttes ont été mesurées par diffraction. Cette corrélation fait également intervenir les nombres de Reynolds et de Weber. De plus, elle prend en compte le rapport des masses volumiques et des viscosités dynamiques du liquide et du gaz.

Il existe beaucoup d'autres corrélations provenant de ce domaine de recherche faisant intervenir les mêmes paramètres physiques. Les deux corrélations décrites précédemment nous montrent que la taille des gouttes générées au niveau de la brèche dépend directement des conditions thermohydrauliques de l'écoulement liquide ($Re_{liq,0}$, $We_{liq,0}$, ρ_{liq} , μ_{liq} , ...) mais également des conditions thermohydrauliques du milieu ambiant (U_{gaz} , ρ_{gaz} , μ_{gaz} , ...).

On trouve également dans la littérature, des corrélations provenant d'un autre domaine de recherche portant sur la sûreté des installations industrielles. Depuis plusieurs années, différents centres (l'INERIS, l'Institut Von Karman,...) mènent conjointement des campagnes de mesures sur la formation de jets diphasiques résultant de la rupture de conduites sous pression ou de réservoirs de stockage. Ces études ont pour objectif de caractériser le spray (distribution granulométrique, vitesse des gouttes, ...), la fraction vaporisée à la brèche et également la fraction de liquide déposée au niveau du sol (rainout). Witlox et al. [43] ont proposé une corrélation qui prend également en compte la géométrie de l'orifice dans un terme exprimant le rapport entre la longueur et le diamètre de l'orifice :

$$\frac{d_{32}}{d_0} = 64, 73 We_{liq0}^{-0,533} Re_{liq0}^{-0,014} (X)^{0,114} \quad (17)$$

$$\text{avec, } \left\{ \begin{array}{ll} 2 \leq \frac{L}{d_0} \leq 50 & \text{alors } X = \frac{L}{d_0} \\ \frac{L}{d_0} \leq 2 & \text{alors } X = 2 \\ \frac{L}{d_0} \geq 50 & \text{alors } X = 50 \end{array} \right.$$

où L correspond à la longueur de la conduite ou à l'épaisseur de l'orifice. Les mesures ont été réalisées à 50 cm de l'orifice par une méthode optique, l'Anémométrie à Phase Doppler (PDA). La différence de pression entre le réservoir de stockage et le milieu ambiant est au maximum de 24 bar. Deux diamètres d'orifice ont été testés ($d_0 = 2$ mm et $d_0 = 5$ mm) ainsi que différents ratios longueur/diamètre ($\frac{L}{d_0} = 1.7 \rightarrow 50$) et le fluide utilisé est de l'eau. Les résultats obtenus avec cette corrélation ont été comparés par Witlox et al. [44] à différents résultats expérimentaux provenant de l'école des Mines de Saint-Etienne et de l'INERIS (pour l'eau) et de l'Institut Von Karman (pour le propane).

Le figure 24 donne la prédiction des trois corrélations présentées en fonction de la vitesse d'injection. La gamme de vitesse s'étend de 130 m.s^{-1} , vitesse typique au début du transitoire accidentel jusqu'à 10 m.s^{-1} . Les conditions thermodynamiques de la phase liquide sont : $P_{\text{liq}} \approx 155$ bar, $T_{\text{liq}} \approx 300$ °C et les conditions thermodynamiques du circuit secondaire sont : $P_2 \approx 60$ bar, $T_2 \approx 270$ °C. Le diamètre de la brèche est de 1 cm et l'épaisseur d'un tube GV étant de quelques mm, le ratio $\frac{L}{d_0} = 2$ pour la corrélation de Witlox et al [43].

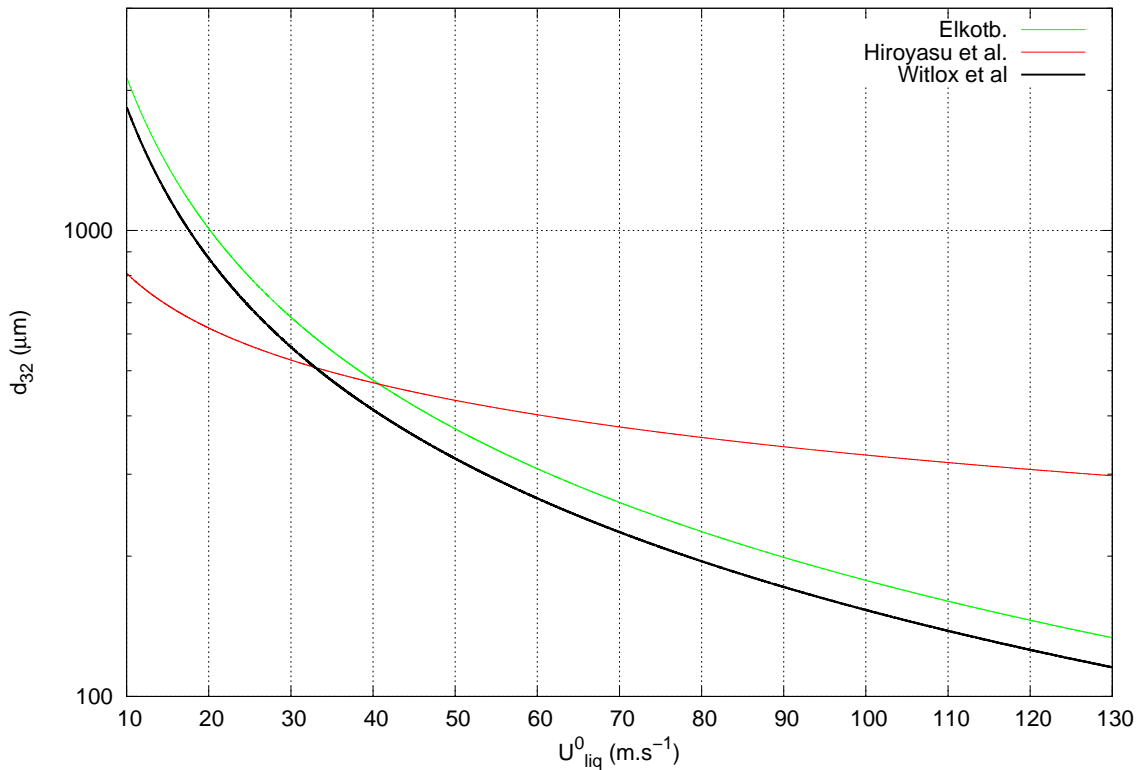


FIGURE 24 – Evolution du SMD en fonction de la vitesse à la brèche pour différentes corrélations

Sur la gamme de vitesse décrite, nous observons une tendance globale des différentes corré-

lations. En effet, plus la vitesse à la brèche est grande, plus le SMD est faible. De plus, en appliquant les conditions thermohydrauliques représentatives d'un accident de RTGV, nous constatons que le diamètre de Sauter le plus faible, correspondant à la vitesse maximale au début du transitoire ($U_{liq}^0 \approx 130 m.s^{-1}$), est de l'ordre de la centaine de μm .

Witlox et al. [44] ont proposé récemment une nouvelle corrélation faisant intervenir la viscosité dynamique, la tension de surface ainsi que la masse volumique de la phase liquide rapportées à leurs valeurs de référence respectives (0 °C et 1 bar) :

$$\frac{d_{32}}{d_0} = 74W e_{liq0}^{-0,85} Re_{liq0}^{0,44} (X)^{0,114} \left(\frac{\mu_{liq}}{\mu_{liq0}} \right)^{0,97} \left(\frac{\sigma_{liq}}{\sigma_{liq0}} \right)^{-0,37} \left(\frac{\rho_{liq}}{\rho_{liq0}} \right)^{-0,11} \quad (18)$$

$$avec, \left\{ \begin{array}{ll} 0.1 \leq \frac{L}{d_0} \leq 50 & \text{alors } X = \frac{L}{d_0} \\ \frac{L}{d_0} \leq 0.1 & \text{alors } X = 0.1 \\ \frac{L}{d_0} \geq 50 & \text{alors } X = 50 \end{array} \right.$$

La figure 25 donne l'évolution du diamètre moyen de Sauter pour les deux corrélations proposées par Witlox et al. [44] en considérant dans le cas de la seconde corrélation un ratio $\frac{L}{d_0} = 0.1$.

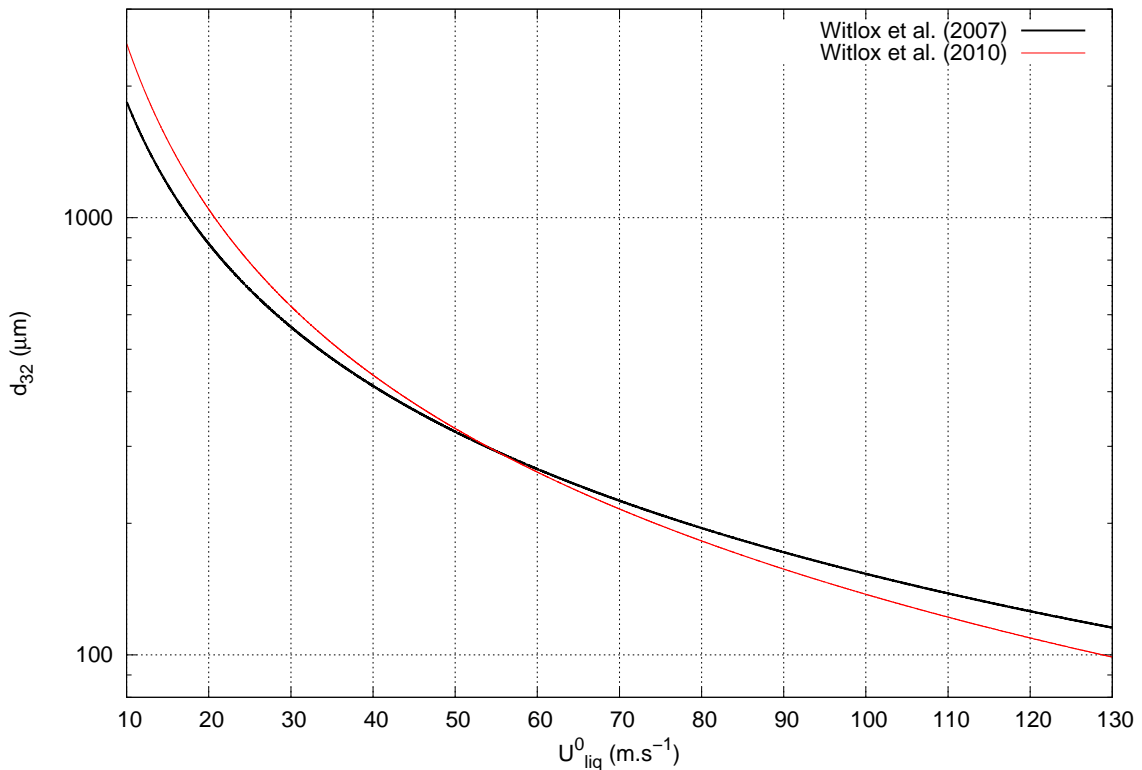


FIGURE 25 – Evolution du SMD en fonction de la vitesse à la brèche pour les deux corrélations proposées par Witlox et al. [44]

On peut conclure que, pour les conditions d'un accident de RTGV, l'ensemble de ces corrélations prédit un diamètre moyen de Sauter toujours au-dessus de 100 μm . Ce mode de fragmentation

produit donc des gouttes suffisamment grosses pour rendre possible la formation d'un grand nombre de germes de vapeur, susceptible de conduire à la fragmentation thermique. Cette information est primordiale pour le développement du modèle physique. Nous retiendrons la première corrélation de Witlox et al. [43] (17) pour calculer la distribution initiale des gouttes générées au niveau de la brèche, pour deux raisons essentielles : la première est que cette corrélation est établie pour de l'eau tout en donnant des résultats très comparables à ceux de Elkotb, qui sont considérés comme une référence et qui ont été validés sur une large gamme de pression. La deuxième raison est que la formulation (18) est difficile à justifier sur le plan théorique.

3 Fragmentation thermique

La séparation des phases liquide et vapeur (flashing) repose sur deux mécanismes : l'évaporation de surface et la nucléation pouvant conduire à l'éclatement des gouttes et donc à une production de petites gouttes secondaires. L'évaporation de surface est pilotée par les mécanismes d'échange de chaleur et de masse. Pour décrire ces mécanismes, il existe de nombreuses corrélations présentes dans la littérature ([45], [46],...). Ces corrélations reposent principalement sur une description théorique des transferts en phase gaz. Une limitation importante est le cas où la phase gaz est composée de vapeur pure. Dans ce cas, on est dans des conditions dites de « flashing pur ». Pour ces dernières, l'évaporation est uniquement pilotée par le transfert de chaleur en phase liquide. Le taux de flashing obtenu est le taux de flashing isenthalpique (section 3.1.2). C'est la cas des séquences RTGV.

Ces hypothèses ne sont pas applicables pour l'interprétation des essais de validation, ou pour d'autres types d'accidents de dépressurisation. Nous avons développé, en nous inspirant d'une idée proposée par Collier [11], un modèle complet capable de prendre en compte toutes les conditions aux limites. Etant donné que les hypothèses du flashing pur sont les hypothèses de référence d'une séquence RTGV, nous examinons d'abord ce cas.

Dans une deuxième partie, nous exposons le modèle standard de convection-diffusion en phase gaz, souvent référencé comme étant le « modèle de Spalding ». Ensuite, nous présentons notre modèle complet. Dans tous les cas, il est nécessaire de disposer d'une description théorique des coefficients de transfert de chaleur et de masse. Cette description est habituellement représentée par les nombres de Nusselt et de Sherwood qui sont eux-mêmes des fonctions de nombres sans dimension. Pour rendre compte de la variation rapide de ces nombres sans dimension pendant le temps de transit d'une goutte entre la brèche et l'extrémité du jet, nous avons développé une modélisation de la cinétique de relaxation des gouttes dans le jet. Ceci nous a conduit à proposer une corrélation pour les coefficients d'échange moyens.

Dans la deuxième section, nous examinerons les processus physiques mis en jeu pendant la détente adiabatique des gouttes, accompagnés éventuellement de la formation de germes de vapeur. Ces processus sont très rapides et se développent sur une échelle de temps de l'ordre de la μs , à la différence des phénomènes d'évaporation de surface pour lesquels l'échelle de temps est de l'ordre de la ms. L'objectif de la modélisation de la détente est de prédire le degré de surchauffe, le nombre de germes et le taux de vide dans les gouttes à la fin de cette phase.

Dans le cas où des germes sont formés, la phase d'évaporation de surface s'accompagne d'un phénomène de croissance des germes. La cinétique de croissance de ces germes est décrite dans la section 3.3. Cette croissance peut conduire dans certains cas à l'éclatement des gouttes. Dans la section 3.5, nous examinerons les critères de rupture reposant principalement sur le taux de vide et les règles de fragmentation (nombre de fragments produits pour chaque éclatement). Dans la dernière section, une synthèse des différentes équations du modèle est proposée.

Le nombre de germes présents à la fin de la phase de détente est un paramètre très important pour deux raisons : la première est que, suivant certaines études, le nombre de fragments produits par l'éclatement d'une goutte est directement lié au nombre de germes. La deuxième raison est que, dans la problématique de l'évolution du taux de vide qui conduit éventuellement à l'éclatement, la surface d'échange liquide-gaz dépend du nombre de germes présents.

3.1 Modèles d'évaporation hors nucléation

3.1.1 Flashing pur

On trouve, dans la littérature, une approche que l'on qualifie de « flashing pur ». Dans cette approche, la température de l'interface liquide-gaz est portée instantanément à $T_{\text{sat}}(P_{v\infty})$. Il n'y a pas de limitation due au transfert à travers la couche limite gazeuse autour de la goutte (plus exactement, il n'y a pas de limitation due aux gradients de température et de concentration de vapeur autour de la goutte). L'hypothèse sous-jacente de ce modèle est que le flux de chaleur à l'intérieur de la goutte vers l'interface sert à alimenter l'évaporation. Notons \dot{m}_{ev} , le débit d'évaporation compté positivement ($\dot{m}_{\text{liq}} = -\dot{m}_{\text{ev}}$). Si T_i est la température de l'interface pour une goutte de surface donnée S , nous avons :

$$S\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_i) + \dot{m}_{\text{ev}}h_l(T_i, P_{\text{sat}}(T_i)) = \dot{m}_{\text{ev}}h_g(T_i, P_{\text{sat}}(T_i)) \quad (1)$$

où h_l et h_g sont respectivement l'enthalpie spécifique du liquide et du gaz, S la surface de la goutte et \bar{h}_{liq} le coefficient de transfert de chaleur en phase liquide :

$$\bar{h}_{\text{liq}} = Nu_{\text{liq}} \frac{\lambda_{\text{liq}}}{d} \quad (2)$$

où Nu_{liq} est le nombre de Nusselt (qui contient la description théorique du transfert de chaleur), λ_{liq} la conductivité thermique de la phase liquide et d le diamètre de la goutte. La puissance extraite de l'intérieur de la goutte permet juste au flux de masse \dot{m}_{ev} de franchir le palier d'évaporation. Nous arrivons donc à l'expression classique du débit d'évaporation :

$$\dot{m}_{\text{ev}} = \frac{S\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_i)}{L_v(T_i, P_{\text{sat}}(T_i))} \quad (3)$$

où L_v est la chaleur latente de vaporisation. Soit, dans les conditions de flashing :

$$\dot{m}_{\text{ev}} = \frac{S\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v\infty}))}{L_v(T_{\text{sat}}(P_{v\infty}), P_{v\infty})} \quad (4)$$

Dans cette approche, la cinétique d'évaporation est entièrement contrôlée par le transfert de chaleur en phase liquide. Accessoirement, nous avons la cinétique de décroissance de la température (les gouttes à la brèche sont plus chaudes que le secondaire), qui est dans le cadre de ce modèle donnée par l'équation :

$$\frac{d}{dt} (m_{\text{liq}}h_l(T_{\text{liq}}, P_{\text{sat}}(T_{\text{liq}}))) = -\dot{m}_{\text{ev}}h_g(T_i, P_{\text{sat}}(T_i)) \quad (5)$$

Il n'y a pas d'extraction de chaleur autre que celle nécessaire à la vaporisation :

$$m_{\text{liq}}C_{p_{\text{liq}}}\frac{dT_{\text{liq}}}{dt} = -\underbrace{\dot{m}_{\text{ev}}L_v(T_i, P_{\text{sat}}(T_i))}_{\phi_{\text{vaporisation}}} \quad (6)$$

où $C_{p_{\text{liq}}}$ est la capacité thermique ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$). En toute rigueur, l'expression (5) à laquelle on ajoute, dans le membre de droite, le terme d'échange de chaleur avec le gaz, conduit à :

$$m_{\text{liq}} C_{p_{\text{liq}}} \frac{dT_{\text{liq}}}{dt} = -\dot{m}_{\text{ev}} L_v(T_i, P_{\text{sat}}(T_i)) + \dot{m}_{\text{ev}} C_{p_{\text{liq}}}(T_{\text{liq}} - T_i) - \bar{S}h_{\text{gaz}}(T_i - T_\infty) \quad (7)$$

Le débit enthalpique liquide correspondant au passage de T_{liq} à T_i est, dans cette approche, compensé exactement par un terme de convection en phase gaz.

3.1.2 Comparaison avec le taux de flashing dans CESAR (code de thermohydraulique de l'IRSN)

Si on éjecte à la brèche une masse de liquide δm_{liq} et que l'on produit une masse δm_{vap} dans les conditions du secondaire, on considère que (flashing isenthalpique) :

$$\delta m_{\text{liq}} h_l(T_1, P_{\text{sat}}(T_1)) = \delta m_{\text{vap}} h_g(T_2, P_{\text{sat}}(T_2)) + (\delta m_{\text{liq}} - \delta m_{\text{vap}}) h_l(T_2, P_{\text{sat}}(T_2)) \quad (8)$$

ce qui donne le taux de flashing théorique (par définition) :

$$\tau = \frac{\delta m_{\text{vap}}}{\delta m_{\text{liq}}} = \frac{h_l(T_1, P_{\text{sat}}(T_1)) - h_l(T_2, P_{\text{sat}}(T_2))}{L_v(T_2, P_{\text{sat}}(T_2))} \quad (9)$$

En écrivant le taux de flashing isenthalpique, on ne prend en compte ni l'échange de chaleur avec le milieu aval, ni l'énergie mécanique de fragmentation, ni l'énergie mécanique de nucléation. Il est difficile de dire si on surestime ou sous-estime le taux de flashing réel. Un des objectifs de ce travail est de répondre à cette question. On remarque que, pour les gouttes, l'équation de conservation de l'énergie,

$$\frac{d}{dt} (m_{\text{liq}} h_l(T_{\text{liq}}, P_{\text{sat}}(T_{\text{liq}}))) = -\dot{m}_{\text{ev}} h_g(T_2, P_{\text{sat}}(T_2)) \quad (10)$$

(qui suppose que, outre les hypothèses du modèle, la vapeur est à saturation dans le secondaire) conduit par intégration sur le temps de la détente à ($m_{\text{liq}0}$ étant la masse initiale de la goutte) :

$$(m_{\text{liq}0} - \delta m_{\text{liq}}) h_l(T_2, P_{\text{sat}}(T_2)) - m_{\text{liq}0} h_l(T_1, P_{\text{sat}}(T_1)) = -\delta m_{\text{vap}} h_g(T_2, P_{\text{sat}}(T_2)) \quad (11)$$

Par conséquent, pour une goutte donnée de masse initiale égale à $m_{\text{liq}0}$, la masse de vapeur produite pendant sa mise à l'équilibre est égale à :

$$\delta m_{\text{vap}} = m_{\text{liq}0} \frac{h_l(T_1, P_{\text{sat}}(T_1)) - h_l(T_2, P_{\text{sat}}(T_2))}{L_v(T_2, P_{\text{sat}}(T_2))} \quad (12)$$

La cinétique ne joue donc aucun rôle, ce qui est normal puisqu'on n'a aucun échange avec l'extérieur. Comme ceci est vrai pour n'importe quelle goutte, quelle que soit sa taille, on retrouve bien le taux de flashing de CESAR. Ce résultat est logique puisque on fait les mêmes hypothèses dans les deux cas.

Remarque : Ce résultat obtenu par l'intégration de l'équation (10), suppose que les enthalpies qui figurent dans cette intégration sont les enthalpies à l'équilibre. En réalité, on verra que la goutte se trouve dans un état métastable surchauffé pendant la phase d'évaporation.

3.1.3 Transfert dans un mélange air-vapeur

Si on veut sortir de ces hypothèses restrictives (en dehors des conditions RTGV, le secondaire n'est pas en vapeur pure), il faut prendre en compte les transferts de chaleur et de masse dans le mélange air-vapeur entourant la goutte. Pour le transfert d'énergie, nous écrivons le bilan au niveau de l'interface, en supposant la température homogène dans la goutte :

$$m_{\text{liq}} C_{p_{\text{liq}}} \frac{dT_{\text{liq}}}{dt} = - \underbrace{\dot{m}_{\text{ev}} L_v(T_{\text{liq}}, P_{\text{sat}}(T_{\text{liq}}))}_{\phi_{\text{vaporisation}}} - \underbrace{S \bar{h}_{\text{gaz}}(T_{\text{liq}} - T_{\infty})}_{\phi_{\text{convection}}} \quad (13)$$

où \bar{h}_{gaz} est le coefficient de transfert de chaleur en phase gaz. Il est relié au nombre de Nusselt par la relation suivante :

$$\bar{h}_{\text{gaz}} = \text{Nu}_{\text{gaz}} \frac{\lambda_{\text{gaz}}}{d} \quad (14)$$

où λ_{gaz} est la conductivité thermique du mélange air-vapeur. Contrairement au cas d'une goutte en évaporation dans une atmosphère plus chaude, il ne peut y avoir de régime d'évaporation isotherme puisque les deux termes dans le membre de droite sont négatifs. Dans l'approximation du flashing pur, la température d'interface est portée instantanément à la température du gaz et par conséquent il n'y a pas d'échange de chaleur par convection. L'équation de la conservation de l'énergie et du transfert de masse sont en réalité les mêmes. Dans le cas présent, on a besoin d'une description du transfert de masse. Elle est fournie par la modélisation classique de la convection-diffusion (souvent appelée modèle de Spalding) :

$$\dot{m}_{\text{ev}} = S k_{\text{gaz}} \bar{C} M L n \left(\frac{1 - x_{v\infty}}{1 - x_{vs}} \right) \quad (15)$$

où k_{gaz} est le coefficient de transfert de masse, M la masse molaire de la vapeur et \bar{C} la concentration molaire moyenne dans le mélange air-vapeur. x_{vs} et $x_{v\infty}$ sont respectivement la fraction molaire de vapeur saturante à l'interface et loin de la goutte. Le coefficient de transfert de masse en phase gaz est relié au nombre de Sherwood par la relation :

$$k_{\text{gaz}} = S h_{\text{gaz}} \frac{D_{\text{av}}}{d} \quad (16)$$

où Sh_{gaz} est le nombre de Sherwood, D_{av} le coefficient de diffusion air-vapeur. Le terme sous le logarithme est lié à l'écoulement de Stefan, un flux de dérive de l'ensemble des molécules (Annexe E). On peut écrire l'équation précédente sous la forme :

$$\dot{m}_{\text{ev}} = S k_{\text{gaz}} \bar{C} M L n \left(\frac{P_{a\infty}}{P_{as}} \right) \quad (17)$$

où $P_{a\infty}$ et P_{as} sont respectivement la pression de l'air dans le fluide environnant et à l'interface (cette écriture met en évidence le lien entre l'écoulement de Stefan et le gradient de pression dans l'air). Il est d'usage de faire apparaître dans cette équation le nombre de Spalding :

$$\dot{m}_{\text{ev}} = S k_{\text{gaz}} \bar{C} M L n \left(1 + \frac{x_{vs} - x_{v\infty}}{1 - x_{vs}} \right) = S k_{\text{gaz}} \bar{C} M L n (1 + B_m) \quad (18)$$

On écrit usuellement $\bar{C}M = \frac{P_2 M}{RT}$ (mélange de gaz parfait, M est la masse molaire de l'eau). Le coefficient de diffusion D_{av} est donné par la corrélation proposée par J.C Micaelli, cité dans la thèse de W.Plumecocq [47]. Pour une géométrie de l'écoulement donnée, le nombre de Spalding mesure l'intensité du transfert de masse. Si ce nombre est petit, nous avons l'approximation suivante :

$$\dot{m}_{ev} = S k_{gaz} \frac{\rho_{vs} - \rho_{v\infty}}{1 - x_{vs}} \quad (19)$$

Ce qui permet d'assimiler le coefficient de transfert de masse k_{gaz} à « une vitesse de transfert ». Les nombres de Nusselt et Sherwood contiennent la description théorique de l'écoulement.

En intégrant le système d'équations couplées (13) et (18), on obtient la variation en fonction du temps, de la taille, et de la température de la goutte. Ce modèle n'est évidemment valable que dans un mélange air-vapeur. Si on atteint les conditions de vapeur pure à l'interface, le terme dépendant du nombre de Spalding diverge, ce qui est logique puisque ce modèle repose sur la diffusion de la vapeur dans l'air (c'est comme si la vitesse de transfert devenait infinie). Nous proposons une description du problème qui permet de passer de façon continue du flashing pur à la convection-diffusion, et qui est physiquement acceptable dans tous les cas.

3.1.4 Un modèle adapté à toutes les conditions aux limites

La procédure est inspirée de celle proposée par Collier [11] pour la condensation en paroi. L'idée est que la température à l'interface n'est ni T_{liq} , ni $T_{sat}(P_{v\infty})$, mais une température intermédiaire qui dépend à la fois du transfert en phase liquide et en phase gaz.

On écrit le bilan d'énergie et l'équation de transfert à l'interface :

$$S \bar{h}_{liq}(T_{liq} - T_i) + \dot{m}_{ev} h_l(T_i, P_{sat}(T_i)) = \dot{m}_{ev} h_g(T_i, P_{sat}(T_i)) + S \bar{h}_{gaz}(T_i - T_\infty) \quad (20)$$

$$\dot{m}_{ev} = S k_{gaz} \bar{C} M L n \left(1 + \frac{x_{vs} - x_{v\infty}}{1 - x_{vs}} \right) \quad (21)$$

où x_{vs} est la fraction molaire de vapeur saturante à T_i (au niveau de la surface). On en déduit que :

$$\frac{\bar{h}_{liq}(T_{liq} - T_i) - \bar{h}_{gaz}(T_i - T_\infty)}{L_v(T_i, P_{sat}(T_i))} = k_{gaz} \bar{C} M L n \left(1 + \frac{x_{vs}(T_i) - x_{v\infty}}{1 - x_{vs}(T_i)} \right) \quad (22)$$

Cette équation peut être résolue par itérations pour trouver la température de l'interface. Une fois celle-ci obtenue, on obtient le débit d'évaporation par l'équation (21) et la cinétique de refroidissement de la goutte par :

$$m_{liq} C p_{liq} \frac{dT_{liq}}{dt} = -\dot{m}_{ev} L_v(T_i, P_{sat}(T_i)) - S \bar{h}_{gaz}(T_i - T_\infty) \quad (23)$$

Il existe une procédure approchée qui permet de s'affranchir des itérations sans altérer l'esprit du modèle. On peut écrire l'équation (22) sous la forme :

$$\frac{\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_i) - \bar{h}_{\text{gaz}}(T_i - T_\infty)}{L_v(T_i, P_{\text{sat}}(T_i))} = k_{\text{gaz}} \bar{C} M L n \left(\frac{P - P_{v,\infty}}{P - P_{\text{sat}}(T_i)} \right) \quad (24)$$

où P est la pression totale du mélange. On cherche une solution telle que $T_i = T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}) + \delta T$, et on suppose que δT est suffisamment petit pour que l'on puisse développer $P_{\text{sat}}(T_i)$ dans le second membre de l'équation (23). On admet également que la chaleur latente de vaporisation varie peu dans cet intervalle.

$$\frac{\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v,\infty})) - (\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}})\delta T + \bar{h}_{\text{gaz}}(T_\infty - T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}))}{L_v(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}), P_{v,\infty})} = k_{\text{gaz}} \bar{C} M L n \left(\frac{P - P_{v,\infty}}{P - P_{\text{sat}}(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}) + \delta T)} \right)$$

On développe ensuite $P_{\text{sat}}(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}) + \delta T)$ en se servant de la relation de Clapeyron (une idée classique utilisée par Mason [48] pour son équation de croissance des aérosols hygroscopiques).

$$\frac{d}{dT}(P_{\text{sat}}) \approx \frac{\rho_{\text{sat}}(T)L_v(T)}{T} \approx \frac{P_{\text{sat}}(T)ML_v(T)}{RT^2}$$

$$P_{\text{sat}}(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}) + \delta T) \approx P_{v,\infty} + \frac{P_{v,\infty}ML_v(T)}{RT^2}\delta T$$

$$\ln \left(\frac{P - P_{v,\infty}}{P - P_{\text{sat}}(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}) + \delta T)} \right) \approx -\ln \left(1 - \frac{P_{v,\infty}ML_v(T)}{P_{a,\infty}RT^2}\delta T \right)$$

Dans ces équations $T = T_{\text{sat}}(P_{v,\infty})$. Ce développement n'a de sens que si $\delta T \neq 0$, sinon il n'y aurait pas de transfert en phase gaz. Si $\frac{P_{v,\infty}}{P_{a,\infty}}$ n'est pas trop grand, on peut développer le terme sous le logarithme :

$$\frac{\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v,\infty})) - (\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}})\delta T}{L_v(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}), P_{v,\infty})} \approx k_{\text{gaz}} \bar{C} M \frac{P_{v,\infty}}{P_{a,\infty}} \frac{ML_v(T)}{RT^2} \delta T \quad (25)$$

Tenant compte de la relation suivante :

$$\bar{C} M \frac{P_{v,\infty}}{P_{a,\infty}} = \bar{C} M \frac{x_{v,\infty}}{1 - x_{v,\infty}} = \frac{c_{v,\infty} M}{1 - x_{v,\infty}} = \frac{\rho_{v,\infty}}{1 - x_{v,\infty}}$$

$$\frac{\bar{h}_{\text{liq}}(T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v,\infty})) - \bar{h}_{\text{gaz}}(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}) - T_\infty)}{L_v(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}), P_{v,\infty})} = \left(\frac{\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}}}{L_v(T_{\text{sat}}(P_{v,\infty}), P_{v,\infty})} + k_{\text{gaz}} \frac{\rho_{v,\infty}}{1 - x_{v,\infty}} \frac{ML_v(T)}{RT^2} \right) \delta T \quad (26)$$

En pratique, $T_{\text{sat}}(P_{v,\infty})$ est légèrement supérieur à T_∞ (vapeur légèrement sous-refroidie). Mais comme \bar{h}_{liq} est toujours supérieur à \bar{h}_{gaz} , δT est toujours positif. Donc $T_i \geq T_{\text{sat}}(P_{v,\infty})$

D'autre part, notant F (nombre sans dimension) :

$$F = \frac{k_{\text{gaz}}}{\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}}} \frac{\rho_{v\infty}}{1 - x_{v\infty}} \frac{ML_v(T)^2}{RT^2} \quad (27)$$

Nous obtenons :

$$\delta T = (T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v\infty})) \frac{\bar{h}_{\text{liq}} - \bar{h}_{\text{gaz}} \left(\frac{T_{\text{sat}}(P_{v\infty}) - T_{\infty}}{T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v\infty})} \right)}{\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}}} \frac{1}{1 + F} \quad (28)$$

On voit clairement que $T_{\text{sat}}(P_{v\infty}) \leq T_i \leq T_{\text{liq}}$. Cette approximation n'est en toute rigueur justifiée que si $\frac{P_{v\infty}}{P_{a\infty}}$ n'est pas trop grand. On constate que si $x_{v\infty}$ tend vers 1, δT tend vers zéro. Bien que dans ce cas on sorte du cadre de notre approximation, le résultat mathématique est correct sur le plan de la physique. Numériquement, il n'est pas possible d'aller jusqu'à cette limite. Il faut donc définir un critère de basculement vers le flashing pur pour $x_{v\infty}$ supérieur à une certaine limite. Dans le cas de la condensation en paroi (sur une paroi plus froide que l'atmosphère), on fait des itérations de Newton pour trouver la température d'interface, qui est voisine de la température de paroi. Le résultat est que pour des fractions de vapeur inférieures à 0.9, le débit de condensation est limité principalement par le transfert en phase gaz, la présence du film liquide ne jouant pratiquement aucun rôle. On peut alors considérer que $T_i \approx T_w$. Au-dessus de 0.9, la résistance thermique du film liquide prend de plus en plus d'importance, jusqu'à devenir l'unique limitation quand on passe en vapeur pure. Dans ce cas, c'est la dynamique du film (théorie de Nusselt) qui contrôle la condensation. Pour éviter la division par zéro, on bascule sur la théorie de Nusselt au-dessus de cette valeur. Dans notre cas, on montre que, pour $x_{v\infty} \approx 1$:

$$\frac{\delta T}{T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v\infty})} \approx \frac{Nu_{\text{liq}}}{Sh_{\text{gaz}}} \frac{\alpha_{\text{liq}}}{D_{\text{av}}} \frac{Cp_{\text{liq}}RT^2}{ML_v(T_{\text{sat}}(P_{v\infty}))^2} \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{v\infty}}$$

On montre ainsi que, pour toutes les situations thermodynamiques possibles, $\frac{\delta T}{T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{v\infty})} < 0.1$ pour $x_{v\infty} > 0.95$

En pratique on appliquera donc dans la procédure suivante :

Si $x_{v\infty} \leq 0.95$, on calcule δT par l'équation (27) et (28) et la cinétique d'évaporation par les équations (21) et (23).

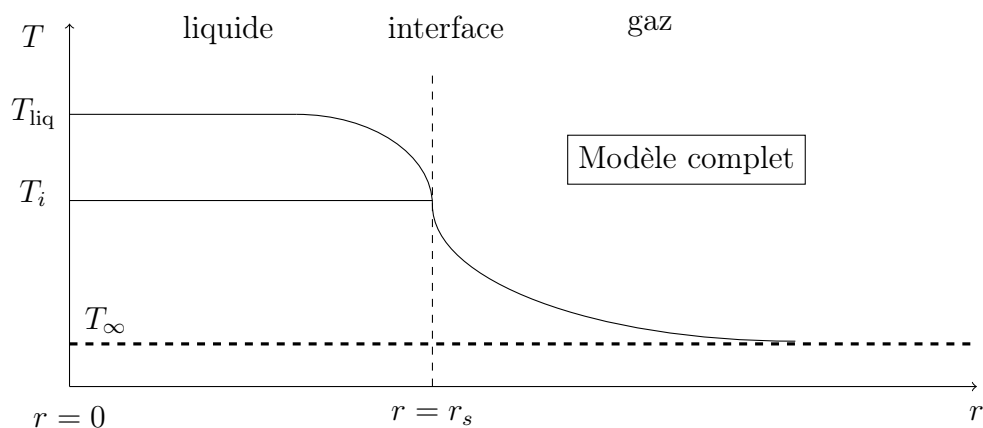
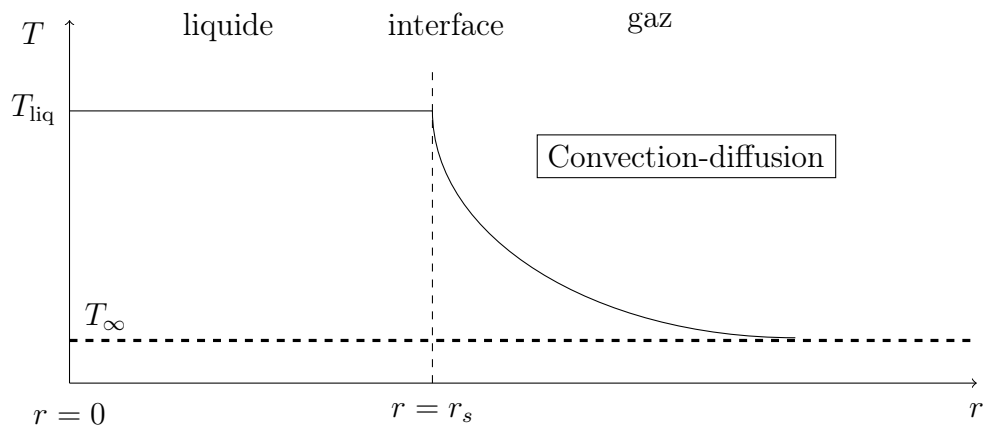
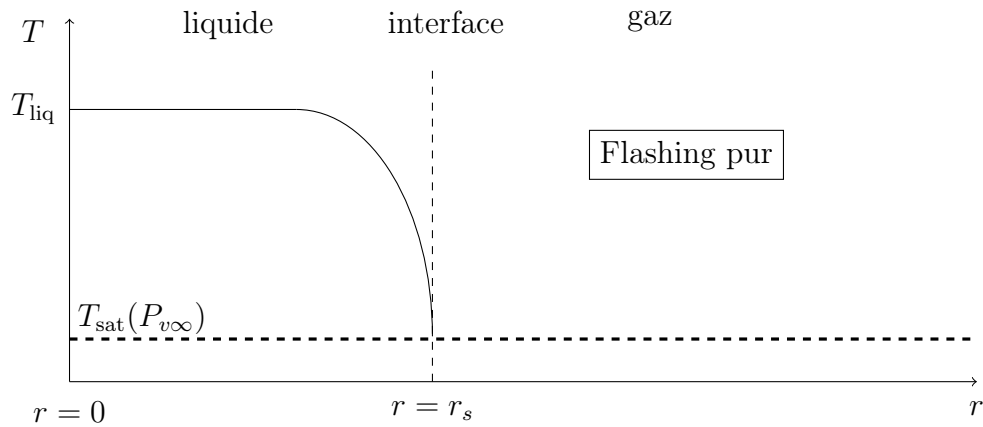
Si $x_{v\infty} > 0.95$, on impose $\delta T = 0$ et on applique le modèle de flashing pur (équations (3) et (6)).

Remarques complémentaires

Les rapports $\frac{\bar{h}_{\text{liq}}}{\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}}}$ et $\frac{k_{\text{gaz}}}{\bar{h}_{\text{liq}} + \bar{h}_{\text{gaz}}}$ dépendent très peu de la taille de la goutte (on suppose que les gouttes sont toujours assez grandes pour que l'on puisse négliger le déplacement de l'équilibre dû à l'effet Kelvin : modification de l'équilibre dû à la courbure de la goutte et à la tension de surface). Dans le cas de la condensation en paroi, la température de référence est T_w , car c'est elle qui est maintenue constante. Dans le cas qui nous intéresse, les gouttes sont plus chaudes que l'atmosphère du secondaire. On a pris comme température de référence $T_{\text{sat}}(P_{v\infty})$ car c'est elle qui est constante dans le modèle.

Dans certains cas d'applications (chapitre 4 : exemples de calculs et chapitre 5 : validation), la surchauffe initiale en fin de détente est très élevée. L'approximation (28) conduit alors à une

fraction molaire de vapeur calculée à l'interface supérieure à 1 ($P_{sat}(T_i) > P_\infty$). Ceci est dû à l'approximation utilisée pour linéariser le second membre de la relation (22). Dans ce cas, on bloque x_{vi} à la valeur limite $x_{vi} = 0.95$. Ceci garantit un taux de transfert fini mais très intense. La température d'interface est alors calculée en prenant cette limite.



En flashing pur, le débit d'évaporation est limité par la capacité de la goutte à fournir la chaleur nécessaire à l'évaporation grâce à un gradient de température dans la goutte. La chaleur nécessaire pour la vaporisation est puisée à l'intérieur de la goutte.

En régime de convection-diffusion, le débit d'évaporation est limité par la capacité de la vapeur à diffuser dans le mélange vapeur-incondensables. Le moteur est la différence de concentration

entre la vapeur saturée à l'interface et la vapeur loin de la goutte. Pour évaluer la concentration de vapeur saturée à l'interface, on suppose que la température est homogène dans la goutte.

Dans le modèle complet, on tient compte à la fois du gradient de température dans la goutte et du gradient de concentration de vapeur dans la phase gaz.

3.1.5 Coefficients de transfert

Les équations globales permettant d'étudier l'évaporation d'une goutte font apparaître des coefficients de transfert massique et thermique (équations (2), (14) et (16)). Il est d'usage de relier ces coefficients aux nombres sans dimension de Nusselt, Nu , représentant le transfert thermique et Sherwood, Sh , caractérisant le transfert de masse. Ces deux nombres sans dimension dépendent de la nature de l'écoulement autour de la goutte. Le nombre de Sherwood en phase liquide n'est utile que lorsque l'on étudie le transfert d'une espèce en solution.

■ Description théorique des coefficients de transfert

L'analyse des échanges de chaleur et de masse pour une goutte au repos est relativement simple car le problème est ramené à une dimension (radiale). Si la goutte est à la vitesse du jet, nous avons $Nu_{\text{gaz}} = Sh_{\text{gaz}} = 2$, (car symétrie sphérique). Ceci n'est pas vrai, comme nous le verrons plus loin, pour le Nusselt en phase liquide.

L'étude des échanges de chaleur et de masse pour une goutte en mouvement dans un gaz est relativement compliquée et se traite au minimum à deux dimensions. Cependant, il est possible de trouver, dans la littérature, des corrélations permettant d'estimer ces nombres en fonction de la différence de vitesse entre la goutte et la phase gaz. Ce paramètre figure dans le nombre de Reynolds associé à une goutte de diamètre, d :

$$Re = \frac{|v - u|d}{\nu_{\text{gaz}}} \quad (29)$$

où ν_{gaz} est la viscosité cinématique du gaz, v la vitesse de la goutte et u la vitesse locale du jet.

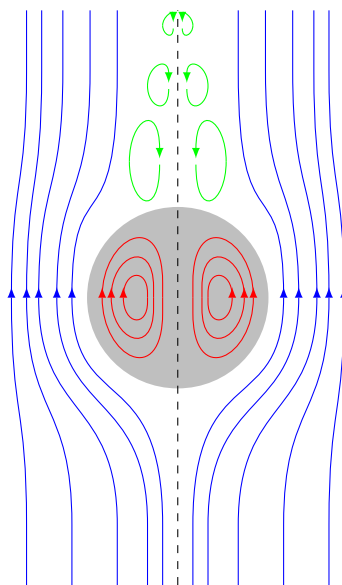


FIGURE 26 – Schéma d'une goutte dans un écoulement gazeux

⇒ Transferts en phase gaz

Toutes les corrélations que nous pouvons trouver dans la littérature reposent sur l'hypothèse que la température et la concentration au niveau de la surface sont homogènes. Nous supposons que le gaz englobant la goutte joue le rôle de thermostat, c'est-à-dire que la température loin de la goutte est constante. De plus, la vitesse de l'écoulement loin de la goutte est constante. Ces deux hypothèses permettent de considérer un régime stationnaire. Dans ces conditions, une analyse dimensionnelle montre que le nombre de Nusselt dépend uniquement du nombre de Reynolds et du nombre de Prandtl ($Nu_{\text{gaz}} = f(Re, Pr)$). Par analogie, le nombre de Sherwood a la même dépendance fonctionnelle en terme du nombre de Reynolds et du nombre de Schmidt ($Sh_{\text{gaz}} = f(Re, Sc)$). Cette analogie est souvent appelée, dans la littérature, l'analogie de Reynolds (Annexe E). Des analyses quantitatives, ainsi que des observations expérimentales, ont montré que pour une large gamme de Reynolds, le nombre de Sherwood varie en proportion de $Re^{\frac{1}{2}}Sc^{\frac{1}{3}}$. Une corrélation souvent utilisée en phase gaz pour caractériser le transfert de masse est celle de Ranz et Marshall [8] :

$$Sh_{\text{gaz}} = 2 + 0,6Re^{\frac{1}{2}}Sc_{\text{gaz}}^{\frac{1}{3}} \quad (30)$$

Sc est le nombre de Schmidt qui est une mesure du rapport entre l'intensité du transfert d'impulsion et l'intensité du transfert de masse :

$$Sc_{\text{gaz}} = \frac{\nu_{\text{gaz}}}{D_{\text{av}}} \quad (31)$$

où D_{av} est le coefficient de diffusion air-vapeur. Initialement, Ranz et Marshall [8] ont mesuré le transfert de masse d'une gouttelette en évaporation en régime stationnaire, c'est-à-dire quand la chaleur nécessaire à l'évaporation est exactement compensée par le flux d'échange convectif entre la goutte et l'atmosphère. La taille des gouttes est comprise entre 600 μm et 1100 μm . Dans cette expérience, la goutte est suspendue à l'extrémité d'un capillaire en verre disposé dans un écoulement gazeux pour des Reynolds variant de 0 à 200. Lorsque le rayon de la goutte est constant, le débit d'évaporation est directement égal au débit d'alimentation circulant dans le capillaire. Le nombre de Nusselt est déduit du nombre de Sherwood par analogie :

$$Nu_{\text{gaz}} = 2 + 0,6Re^{\frac{1}{2}}Pr_{\text{gaz}}^{\frac{1}{3}} \quad (32)$$

où Pr est le nombre de Prandtl qui compare l'intensité du transfert d'impulsion et l'intensité du transfert thermique :

$$Pr_{\text{gaz}} = \frac{\mu_{\text{gaz}}Cp_{\text{gaz}}}{\lambda_{\text{gaz}}} \quad (33)$$

Ces corrélations ont été validées avec succès sur les essais CARAIDAS (menés à l'IRSN, W.Plumecocq [47]) pour des Reynolds allant jusqu'à 2000. Yuen et Chen [49] ont effectué des expériences similaires sur des gouttes d'eau et de méthanol ($d \approx \text{mm}$) disposées dans un écoulement d'air chaud à pression atmosphérique pour des nombres de Reynolds compris entre 200 et 2000. Ils constatent un très bon accord avec la corrélation proposée par Ranz et Marshall [8]. Cependant, pour des gammes de Reynolds plus grandes, il apparaît de faibles déviations entre les résultats expérimentaux et cette corrélation. Il existe une littérature relativement abondante à ce sujet (revue de Sazhin et al. [50]). Dans le cadre de cette étude, le nombre de Nusselt gaz et le nombre de Sherwood gaz seront calculés par la corrélation de Ranz et Marshall [8].

Il faut noter que même pour de faibles nombres de Reynolds, l'établissement d'une loi théorique n'est pratiquement pas accessible. D'autre part, pour des nombres de Reynolds très élevés, le sillage joue un rôle très important dans les mécanismes de transfert. Ceci explique la difficulté de valider une telle corrélation sur une large gamme de nombres de Reynolds.

⇒ Transferts en phase liquide

L'étude du transfert en phase liquide est plus délicate. En effet, nous venons de voir que pour le cas du transfert en phase gaz, le système peut être traité en régime stationnaire. Pour le transfert de chaleur dans une goutte, on est toujours en régime transitoire, ce qui revient à considérer un nombre de Nusselt en fonction du temps ($Nu_{liq} = f(t, Re, Pr)$). Il est très important de souligner que dans ce cas, la définition du Nusselt ou du Sherwood est conforme aux équations :

$$Q = S Nu_{liq} \frac{\lambda_{liq}}{d} (\bar{T}_{liq} - T_i)$$

$$\dot{m} = S Sh_{liq} \frac{D_{liq}}{d} (\bar{C} - C_i)$$

C'est-à-dire que l'on considère les flux de chaleur ou de masse exprimés en fonction d'une température moyenne ou d'une concentration moyenne. Cette définition permet dans certains modèles, de faire apparaître une valeur limite des nombres de Nusselt et Sherwood lorsque $t \rightarrow \infty$ (Annexe D). Il existe dans la littérature deux modèles très simples : le modèle de conduction limitée et le modèle de conduction infinie.

Le modèle de conduction limitée suppose que le transfert de chaleur est uniquement piloté par la diffusion thermique. Ce modèle correspond donc au cas classique de la conduction monodimensionnelle en régime transitoire. Pour un écoulement à faible nombre de Reynolds, la convection dans la phase liquide est négligeable et la température ne dépend que du rayon et du temps. On fait référence dans la littérature (Carslaw et Jaeger [51]) au modèle de la « sphère rigide ».

Le modèle de conduction infinie repose sur l'hypothèse que le transfert de chaleur dans la goutte est infiniment rapide ce qui a pour conséquence l'homogénéisation de la température dans la phase liquide. En effet, pour de grands nombres de Reynolds, les forces de cisaillement dues à la viscosité au niveau de la surface de la goutte provoquent une forte circulation interne, souvent modélisée par un vortex de Hill [52].

Ces deux modèles représentent les deux cas limites. Dans une situation intermédiaire, à la limite des grands nombres de Peclet, Kronig et Brink [10] ont calculé une expression du nombre de Sherwood liquide qui repose sur l'hypothèse que les isolignes de concentration sont confondues avec les lignes de courant (vortex de Hill). Pour le modèle de la « sphère rigide » (Carslaw et Jaeger [51]) et le modèle de Kronig et Brink [10], nous disposons d'une description théorique de la dépendance en fonction du temps des nombres de Nusselt et Sherwood. En dehors de ces deux cas, on est obligé de se contenter de la limite pour « $t \rightarrow \infty$ » (Annexe D). Le modèle de la sphère rigide prédit pour $t \rightarrow \infty$, $Nu_{liq} = 6.58$. Pour une goutte de 1 mm de diamètre, le temps caractéristique d'établissement du profil est de $\frac{1}{120}$ de seconde environ. Dans la limite des grands nombres de Peclet, le modèle de Kronig et Brink [10] prédit, pour $t \rightarrow \infty$, $Sh_{liq} = Nu_{liq} = 17.9$. Pour une goutte de même diamètre, le temps caractéristique d'établissement du profil est d'environ $\frac{1}{500}$ de seconde.

Il est cependant important de remarquer que le modèle de Kronig et Brink, qui est présenté comme la limite des grands nombres de Peclet, repose en fait sur les équations des lignes de courant définies par Hadamard, qui ne sont en toute rigueur valables que dans la limite de l'écoulement de Stokes (faible nombre de Reynolds). C'est d'ailleurs le seul cas pour lequel on dispose d'une formulation algébrique des lignes de courant. Ceci est quelque peu contradictoire avec la « limite des grands nombres de Peclet ». C'est cependant le seul modèle théorique dont nous disposons.

Abramzon et Sirignano (**modèle de conduction effective**) [9] ont proposé une relation, permettant de relier les deux corrélations précédentes à la limite $t \rightarrow \infty$. Cette corrélation s'exprime en fonction du nombre de Peclet liquide :

$$Pe_{liq} = Re_{liq} Pr_{liq} \quad (34)$$

sous la forme :

$$Nu_{liq} = 6.58 \left(1.86 + 0.86 \cdot \tanh \left(2.245 \cdot \log_{10} \left(\frac{Pe_{liq}}{30} \right) \right) \right) \quad (35)$$

avec :

$$Pe_{liq} = 0.397 \left(\frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}} \right)^2 \left(\frac{\rho_{liq}}{\mu_{gaz}} \right) Re_{gaz}^{\frac{4}{3}} Pr_{liq} \quad (36)$$

Cette expression du nombre de Peclet liquide repose sur l'évaluation de la vitesse maximale de circulation au niveau de l'interface.

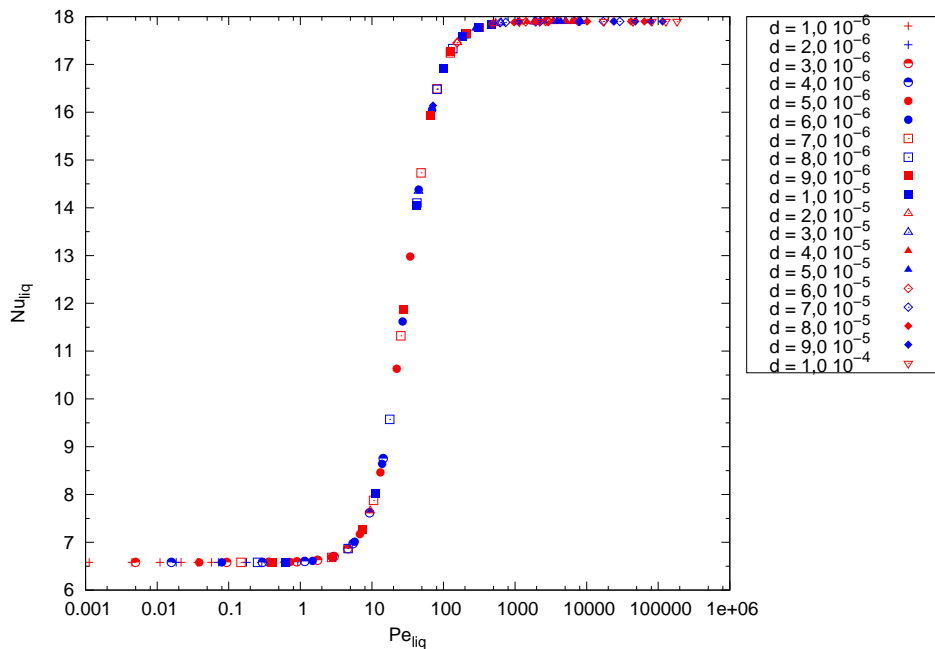


FIGURE 27 – Evolution du Nu_{liq} quand $t \rightarrow \infty$ en fonction du Pe_{liq} de Abramzon et Sirignano [9]

Cette courbe met en évidence le comportement particulier de la fonction tangente hyperbolique d'un logarithme qui permet une transition rapide entre les deux limites ($10 < Pe_{liq} < 100$).

■ Calcul des coefficients de transfert moyens

Compte tenu de l'étendue de la distribution granulométrique des gouttes (de 10^{-8} m à 10^{-3} m) et de la large variation de la vitesse à la brèche au cours du transitoire accidentel (de 10 m.s $^{-1}$ à 130 m.s $^{-1}$), ainsi que de la large variation des vitesses relatives gouttes-gaz, on est confronté à une large gamme de Reynolds. Ceci rend nécessaire le développement d'une méthode pour calculer les coefficients de transfert moyens. Il n'est cependant pas question d'entrer dans toute la complexité de la description du jet. Remarquons au passage que, dans tout ce qui précède, on a fait l'hypothèse très forte, que la pression de vapeur dans le fluide moyen (couche de mélange ou bulk fluid) est homogène. En réalité, si on tient compte de l'entraînement qui est un paramètre essentiel de la structure d'un jet, de la diffusion et de l'interaction avec les gouttes, on a un système d'une complexité qui sort du cadre de cette thèse.

Nous proposons une estimation qui est compatible avec le niveau de modélisation de la présente étude. Pour une goutte donnée, on se limite au problème monodimensionnel (on néglige en particulier la sédimentation). De plus, on se limite à la relaxation cinétique des gouttes sans tenir compte de l'évaporation (pour les raisons indiquées plus haut). Nous avons développé un modèle de jet reposant sur la modélisation proposée par Epstein [53], dans lequel on prend en compte le glissement entre phases. De plus, les deux hypothèses classiques pour l'étude d'un jet sont retenues : modèle d'entraînement de Ricou et Spalding [54] et conservation du flux d'impulsion. La description complète du modèle se trouve en Annexe B.

Avec les variables sans dimension, $u_{\text{gaz}}^* = \frac{u_{\text{gaz}}}{u_0}$, $u_{\text{liq}}^* = \frac{u_{\text{liq}}}{u_0}$, $R^* = \frac{R}{R_0}$ et $z^* = \frac{z}{R_0}$, ou R_0 est rayon initial du jet et u_0 la vitesse initiale à la brèche, on obtient le profil suivant :

$$u_{\text{liq}}^* = \frac{1}{1 + \gamma\beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1}} \quad (37)$$

$$u_{\text{gaz}}^* = \frac{\left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^n}{1 + \gamma\beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1}} \quad (38)$$

$$\alpha = \frac{\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \gamma\beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{1-n}}{1 + \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \gamma\beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{1-n}} \quad (39)$$

$$R^* = \sqrt{\left(1 + \gamma\beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1}\right) \left(1 + \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \gamma\beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{1-n}\right)} \quad (40)$$

où n et γ sont deux paramètres à ajuster de manière à obtenir une description physique du jet avec $\beta = \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}}\right)}$. Les évolutions du profil des phases gaz et liquide ainsi que celle du taux de vide sont représentées sur le figure 28 pour $u_0 = 130$ m.s $^{-1}$ et pour $n = \frac{1}{2}$:

On a l'équation du mouvement :

$$\frac{d}{dt}(mv) = -\frac{1}{2} S f(Re) \rho_{\text{gaz}} (v - u_{\text{gaz}}(z)) |v - u_{\text{gaz}}(z)| \quad (41)$$

où $f(Re)$ est le coefficient de friction. Il existe une littérature abondante sur l'expression de ce coefficient. Nous avons choisi celle préconisée par Ishii et Zuber [55] en introduisant la limite de Newton ($f(Re) = 0.44$) pour des nombres de Reynolds compris entre 1000 et 10000.

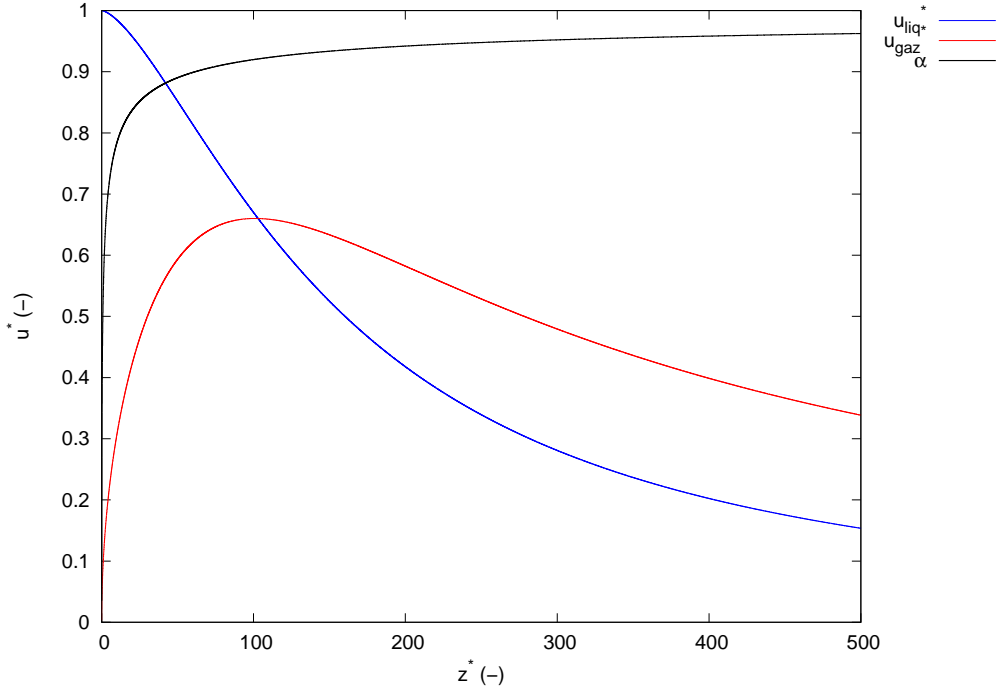


FIGURE 28 – Profils axiaux de la vitesse liquide, gaz et du taux de vide

Connaissant le profil de vitesse de la phase gaz u_{gaz}^* , l'équation de relaxation adimensionnée d'une goutte de diamètre d est donnée par l'équation :

$$v^* \frac{dv^*}{dz^*} = -\frac{3}{4} \frac{d_0}{d} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} f(Re) (v^* - u_{\text{gaz}}^*(z^*)) |v^* - u_{\text{gaz}}^*(z^*)| \quad (42)$$

où $v^* = \frac{v}{u_0}$ est la vitesse adimensionnée de la goutte (condition initiale : $v^*(0) = 1$). On montre sur la figure 29, pour une vitesse d'injection à la brèche de $u_0 = 130 \text{ m.s}^{-1}$ et un diamètre initial $d_0 = 1 \text{ cm}$, les profils de vitesse de la phase gaz et pour des gouttes de différents diamètres.

Nous observons que pour des gouttes de faible diamètre ($< 10 \mu \text{ m}$), le phénomène de relaxation est instantané. En revanche pour les plus grosses gouttes, le différentiel de vitesse liquide-gaz perdure sur une distance non négligeable par rapport à la longueur du jet.

Nous définissons le nombre de Nusselt moyen et le nombre de Sherwood moyen par la relation :

$$\bar{Nu} = \frac{\int_0^{z_{\text{max}}^*} \frac{Nu(z^*)}{v^*(z^*)} dz^*}{\int_0^{z_{\text{max}}^*} \frac{dz^*}{v^*(z^*)}} \quad \text{et} \quad \bar{Sh} = \frac{\int_0^{z_{\text{max}}^*} \frac{Sh(z^*)}{v^*(z^*)} dz^*}{\int_0^{z_{\text{max}}^*} \frac{dz^*}{v^*(z^*)}}$$

Cette approche revient à prendre la moyenne temporelle sur le temps de transit de la goutte. On définit le nombre de Reynolds à la brèche et le nombre de Reynolds à la brèche associé à une goutte de diamètre d , par respectivement :

$$Re_0 = \frac{u_0 R_0}{\nu_{\text{gaz}}} \quad \text{et} \quad Re_{d0} = Re_0 \frac{d}{d_0}$$

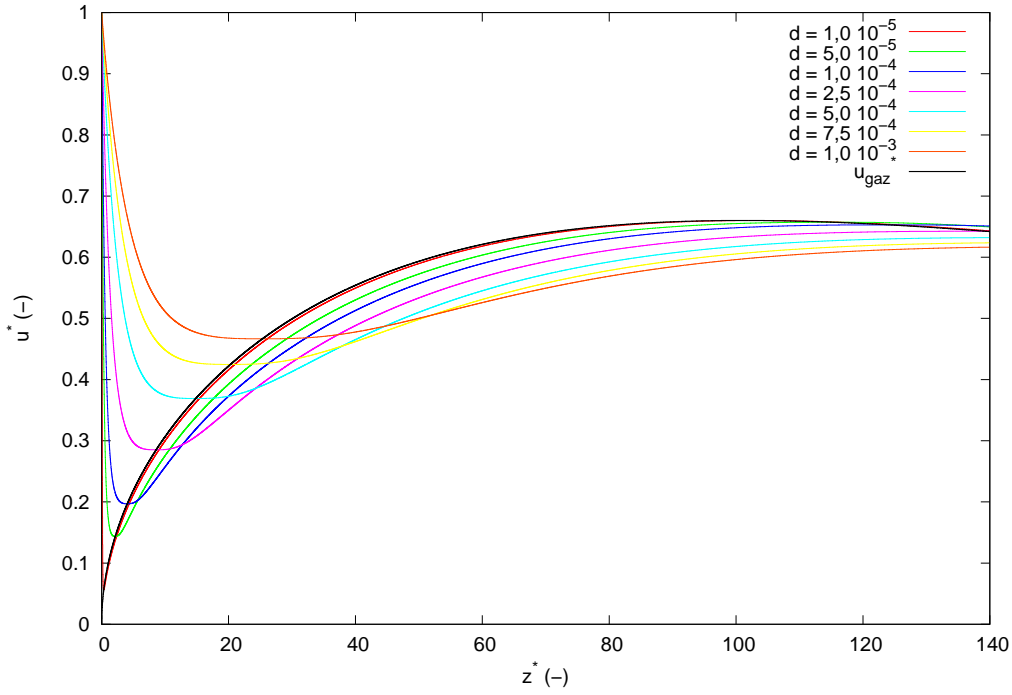


FIGURE 29 – Profils de relaxation pour différentes tailles de gouttes

En repartant de la forme générale de l'expression du coefficient d'échange proposée par Ranz et Marshall [8], nous pouvons reporter sur un même graphique, le paramètre $B = \frac{\bar{N}u-2}{Pr^{\frac{1}{3}}}$ en fonction de $Re_{d0} = \frac{u_0 d}{\nu_{\text{gaz}}}$, pour différentes tailles de gouttes et pour des vitesses initiales à la brèche différentes, l'objectif étant de voir s'il existe une tendance générale quant à la dispersion des résultats. Le graphique suivant donne la dispersion des résultats pour des tailles de gouttes allant de $1 \mu\text{m}$ à 1mm et pour des vitesses initiales à la brèche variant de 10m.s^{-1} à 130m.s^{-1} :

Ces résultats peuvent être approximés par une équation de la forme $y(x) = \alpha (1 - e^{-\lambda x})$. Pour le nombre de Nusselt moyen, nous obtenons :

$$\boxed{\bar{N}u_{\text{gaz}} = 2 + 88 \left(1 - e^{-1.10^{-5} Re_{d0}}\right) Pr_{\text{gaz}}^{\frac{1}{3}}} \quad (43)$$

Et par analogie, nous obtenons l'expression du nombre de Sherwood moyen :

$$\boxed{\bar{S}h_{\text{gaz}} = 2 + 88 \left(1 - e^{-1.10^{-5} Re_{d0}}\right) Sc_{\text{gaz}}^{\frac{1}{3}}} \quad (44)$$

Pour le transfert en phase liquide, nous appliquons la même méthode en utilisant comme paramètre d'ajustement le Pe_{ld0} défini par :

$$Pe_{ld0} = Re_{ld0} Pr_{\text{liq}} \quad (45)$$

Avec,

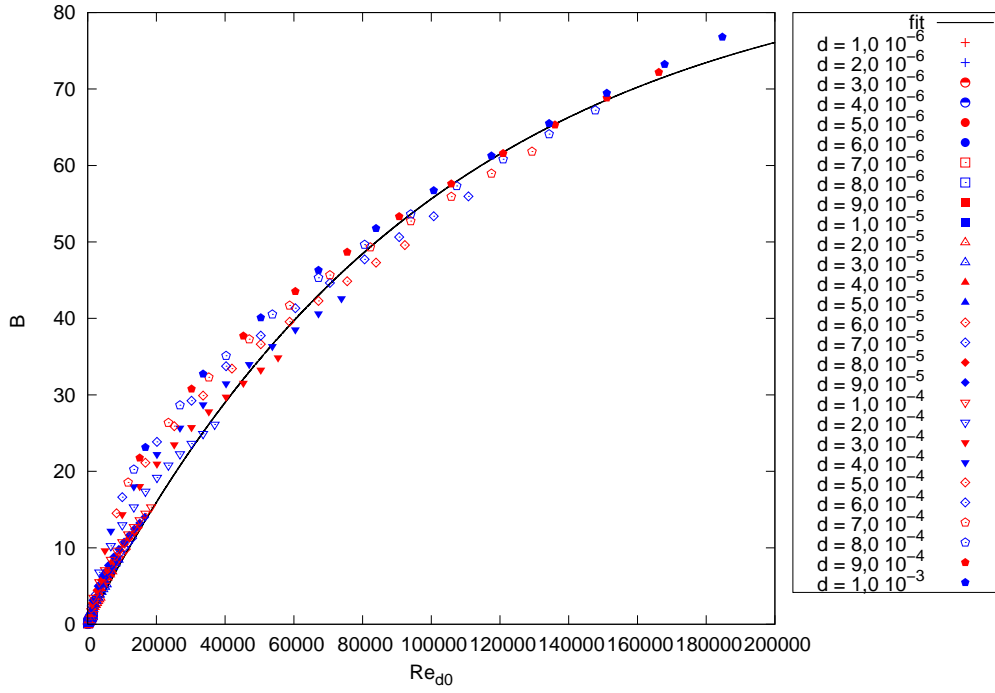


FIGURE 30 – Evolution du paramètre B en fonction du Re_{d0} pour le calcul de $\bar{N}u_{gaz}$

$$Re_{ld0} = 0.397 \left(\frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}} \right)^2 \left(\frac{\rho_{liq}}{\rho_{gaz}} \right) Re_{d0}^{\frac{4}{3}} \quad (46)$$

En toute rigueur, étant donné que le coefficient d'échange en phase liquide se calcule en régime transitoire, on devrait le coupler avec le coefficient en phase gaz par la relation classique :

$$\frac{1}{h_{tot}} = \frac{1}{h_{liq}} + \frac{1}{h_{gaz}} \quad (47)$$

Cependant, le fait de ne disposer que de la description théorique du nombre de Nusselt liquide pour $t \rightarrow \infty$ dans les deux cas limites, et non dans les situations intermédiaires, rend cette approche inadaptée. Aussi, nous nous limitons à la moyenne donnée comme précédemment, par :

$$\bar{N}u = \frac{\int_0^{z_{max}^*} \frac{Nu(z^*)}{v^*(z^*)} dz^*}{\int_0^{z_{max}^*} \frac{dz^*}{v^*(z^*)}}$$

Nous traçons sur un même graphique, pour des diamètres de goutte différents et pour des vitesses comprises entre 10 m.s^{-1} et 130 m.s^{-1} , et pour une température fixe d'environ 300°C , le nombre de Nusselt liquide moyen en fonction d'un coefficient B :

$$B = \left(\frac{Pe_{ld0}}{2 \cdot 10^6} \right)^{\alpha(d)} \quad (48)$$

Ces résultats peuvent être approximés par une expression du type :

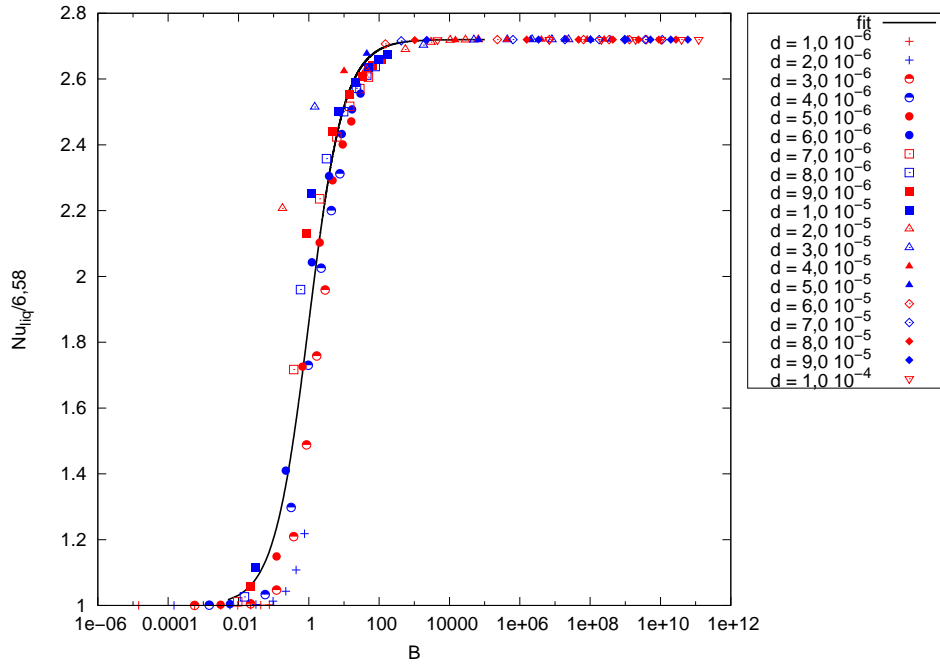


FIGURE 31 – Evolution du nombre de Nusselt liquide moyen en fonction du paramètre B

$$\boxed{\frac{\bar{N}u_{liq}}{6.58} = 1.86 + 0.86 \cdot \tanh \left(\log_{10} \left(\frac{Pe_{ld0}}{2 \cdot 10^6} \right)^{\alpha(d)} \right)} \quad (49)$$

Avec,

$$\alpha(d) = 3.75 + 1.25 \cdot \tanh \left(8 \cdot \log_{10} \left(\frac{d \cdot 10^6}{20} \right) \right) \quad (50)$$

Remarque : lorsque l'on fait varier la température de la goutte dans les limites attendues, nous observons un décalage des résultats (augmentation de la dispersion). Il serait donc souhaitable d'introduire le nombre de Prandtl liquide dans la corrélation.

3.2 Détente adiabatique et nucléation

Comme nous l'avons indiqué plus haut, on cherche à décrire l'état thermodynamique de la goutte à la fin de la détente adiabatique, c'est-à-dire lorsque la goutte est ramenée de la pression à la brèche à la pression du secondaire (au terme de tension de surface près). On veut caractériser le taux de vide (**nombre et rayon des germes**) et la température (**degré de surchauffe**) en fin de détente.

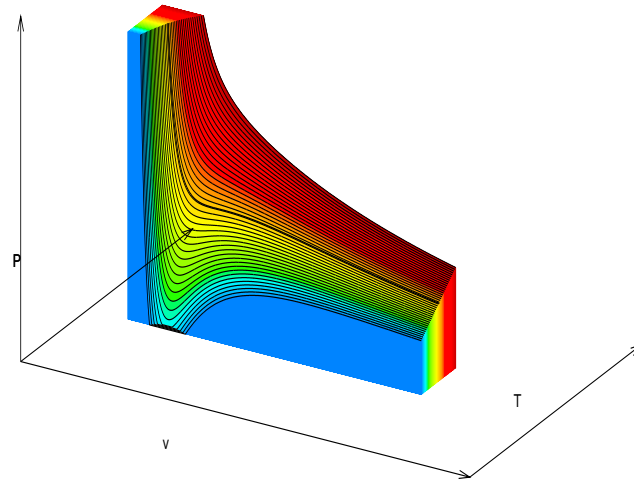


FIGURE 32 – Diagramme thermodynamique P-V-T

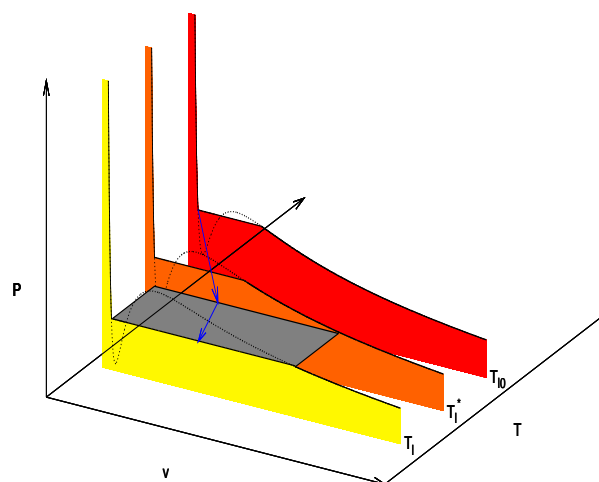


FIGURE 33 – Schéma d'une détente adiabatique : détente jusqu'à un état métastable (T_l^*) puis formation de germes à pression constante (T_l)

3.2.1 Les germes à l'équilibre

D'après la loi de Laplace, le rayon d'un germe de vapeur à l'équilibre hydrostatique satisfait la relation :

$$P_g - P_l = \frac{2\gamma}{r^*} \quad (1)$$

Cette relation exprime le fait que la variation d'énergie mécanique pour une variation élémentaire du volume dV_g autour de la position d'équilibre est un infiniment petit d'ordre 2 (autrement dit $\frac{dW}{dV_g} = 0$). Pour un germe sphérique, on a :

$$dW = (-P_g + P_l)dV_g + \gamma dS_g = (-P_g + P_l)dV_g + \frac{2\gamma}{r}dV_g$$

D'où la relation (1). On trouve dans la littérature une expression de l'énergie de formation d'un germe dans un bain surchauffé, Hewitt [11]. Pour comprendre cette relation, il suffit de se référer à l'énergie d'un germe.

L'énergie du germe est nulle lorsque le rayon vaut zéro. Elle doit passer par un maximum lorsque la relation (1) est satisfaite. On ne sait pas bien écrire le terme d'énergie de volume (il faudrait pour cela modéliser le transfert liquide-gaz) mais on sait que le terme d'énergie de surface est toujours égal à $4\pi\gamma r^2$. On écrit donc que l'énergie mécanique doit être de la forme $\Delta G(r) = -\alpha r^3 + 4\pi\gamma r^2$, car c'est la forme la plus simple envisageable (terme de volume et terme de surface). Le maximum est obtenu pour $r^* = \frac{8\pi\gamma}{3\alpha}$, ce qui donne :

$$\Delta G(r) = -\frac{8\pi\gamma}{3r^*}r^3 + 4\pi\gamma r^2$$

et donc, par conséquent,

$$\Delta G(r^*) = -\frac{8\pi\gamma}{3r^*}r^{*3} + 4\pi\gamma r^{*2} = \frac{4\pi\gamma}{3}r^{*2} \quad (2)$$

Il s'agit en fait d'un état d'équilibre instable, comme on le voit sur la figure 34. L'expression (2) de l'énergie de formation est souvent utilisée dans des formules basées sur la théorie statistique donnant le taux de création de germes, Hewitt [11]. On peut relier le rayon du germe à l'équilibre à la surchauffe par la procédure classique qui consiste à faire usage de la relation de Clausius-Clapeyron. On a alors :

$$\rho_g \frac{T_l - T_{sat}(P_l)}{T_l} Lv = \frac{2\gamma}{r^*} \quad (3)$$

Nous avons donc :

$$r^* = \frac{2\gamma T_l}{\rho_g Lv (T_l - T_{sat}(P_l))} \quad (4)$$

$$\Delta G(r^*) = \frac{4\pi\gamma}{3} \left(\frac{2\gamma T_l}{\rho_g Lv (T_l - T_{sat}(P_l))} \right)^2 \quad (5)$$

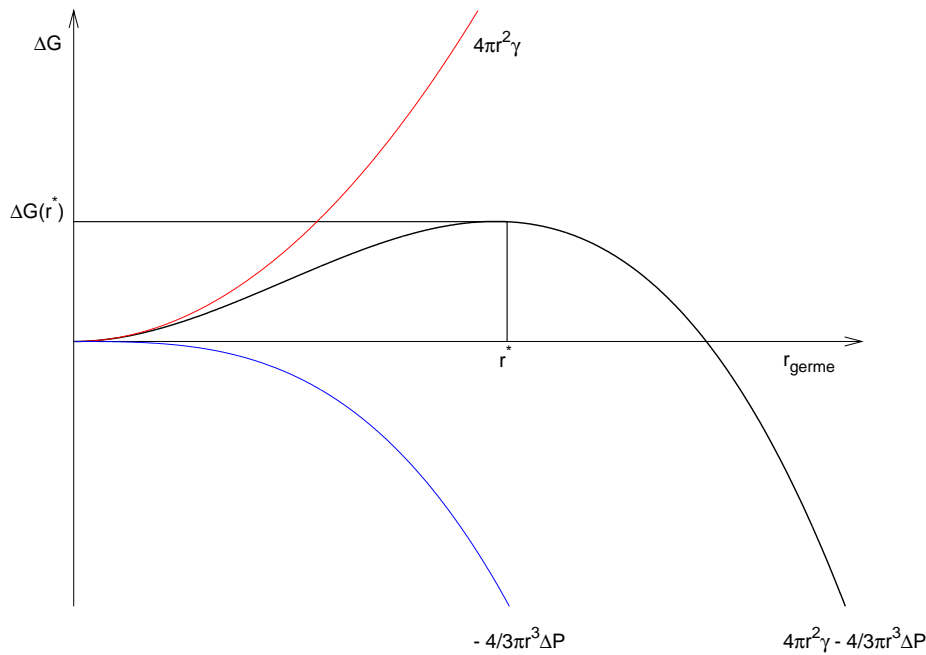


FIGURE 34 – Travail minimal à fournir pour créer un germe de rayon r^*

Plus le degré de surchauffe est faible, plus l'énergie nécessaire à la formation d'un germe à l'équilibre est élevée. Cette formule ne prend pas en compte la chaleur latente de vaporisation. En réalité, on devrait écrire plus précisément :

$$\Delta G(r^*) = \frac{4\pi\gamma}{3}r^{*2} + \frac{4\pi}{3}r^{*3}\rho_{sat}(T_l)Lv$$

Le second terme, qui représente la création d'enthalpie du gaz, n'est pas inclus dans l'énergie disponible des germes qui apparaît dans le bilan d'énergie conduisant à l'éclatement des gouttes (voir plus loin).

L'utilisation de la relation de Clapeyron qui conduit aux relations (4) et (5) n'est évidemment valable que pour des degrés de surchauffe modérés. Elle permet une écriture simple des équations de bilan et facilite la compréhension des mécanismes mis en jeu. Dans les cas de surchauffe élevée, il faut écrire la formule exacte ($\frac{2\gamma}{r^*} = P_{sat}(T_l) - P_l$) ce qui rend nécessaire une résolution numérique des équations de bilan.

Il faut souligner que ceci concerne des germes à « l'équilibre métastable ». En pratique, nous devons décrire une situation transitoire, P_l et T_l évoluant sur une échelle de temps comparable à celle de formation des germes. Pour résoudre ce problème, nous pouvons considérer deux méthodes relativement simples (voir 3.2.2). Il faut souligner que nombre d'études dans la littérature concernent des germes dans un bain surchauffé, alors que nous avons à traiter le problème d'une goutte soumise à une détente brutale.

3.2.2 Conditions (surchauffe et taux de vide) à la fin de la détente adiabatique

Pour une goutte de rayon initial donné (suivant la distribution produite par la fragmentation mécanique), il nous faut établir une relation entre la pression, le taux de vide et la

surchauffe à la fin de la détente. Comme nous l'avons indiqué plus haut, à partir de cet état, la goutte poursuit sa mise à l'équilibre sur une échelle de temps plus longue, ce qui conduit éventuellement à un éclatement.

Une première méthode consiste à créer les germes un par un, en raison de l'abaissement de la pression, en établissant un bilan d'énergie. On peut ainsi compter le nombre de germes produits. Cette méthode présente cependant trois inconvénients. Le premier est que l'on est obligé de supposer des germes à l'équilibre, alors qu'ils ne peuvent pas l'être puisque P_l et T_l varient rapidement. Le deuxième est que l'on produit ainsi des germes de rayons et de températures différents, car ils sont formés à différents niveaux de P_l et T_l . Le troisième inconvénient est que l'on introduit artificiellement une séquence de formation des germes alors que leur temps de formation est du même ordre de grandeur que le temps de mise à l'équilibre.

Une seconde méthode consiste à considérer un nombre de germes fixes, et à supposer, pour simplifier, qu'ils sont tous de même taille. Il faut donc trouver un critère qui nous permette de fixer le nombre de germes créés et leur taille initiale.

3.2.3 Equation de bilan de la détente

Sont présentées ci-dessous les différentes notations utilisées dans cette section :

N_g :	nombre de germes
r_g :	rayon d'un germe
V_g :	volume d'un germe
V_l :	volume du liquide
r_G :	rayon de la goutte
P_g :	pression de vapeur dans un germe
u_l et u_g :	énergies internes spécifiques liquide et gaz
h_l et h_g :	enthalpies spécifiques liquide et gaz
ϵ_0 :	taux de vide initial
T_{ref} et P_{ref} :	état de référence sur la courbe de saturation
T_l^* :	température du liquide métastable sans germes
T_l :	température du liquide métastable avec germes
P_2 :	pression du secondaire
T_{l0} :	température liquide initiale
P_{l0} :	pression liquide initiale

Le temps caractéristique des échanges de chaleur et de masse entre la goutte et l'atmosphère est grand, comparé au temps caractéristique de mise à l'équilibre de pression. On considère donc une détente adiabatique. Ensuite, chaque goutte, en équilibre de pression avec le secondaire, continue son évolution à travers la croissance des germes et les échanges de chaleur et de masse avec l'environnement du secondaire. A la fin de la détente, nous avons :

$$\begin{aligned}
 P_l &= P_2 + \frac{2\gamma}{r_G} \\
 P_g &= P_{\text{sat}}(T_l) \\
 T_g &\approx T_l \\
 P_{\text{sat}}(T_l) &= P_l + \frac{2\gamma}{r_g} \\
 V &= N_g V_g + V_l
 \end{aligned} \tag{6}$$

En général, pour des gouttes de rayon supérieur à $0.01 \mu m$, on peut négliger le terme de tension de surface de la goutte, donc $P_l \approx P_2$, ce qui n'est bien sûr pas le cas pour les germes.

On considère que les germes sont à l'équilibre hydrostatique à la fin de la détente, d'où la deuxième condition (6) et $r_g = r^*$, donné par la relation (4).

3.2.4 Un critère pour déterminer le nombre de germes et leur taille initiale

La description mécaniste de la formation des germes, en relation avec l'état de surchauffe de la goutte à la fin de la détente, est hors de portée d'une procédure simple et utilisable en pratique. C'est un problème épineux sur lequel les théoriciens ont du mal à obtenir des avancées claires et simples. On trouve le plus souvent dans la littérature des formules donnant une distribution en taille des germes de type :

$$N(r) = C e^{-\frac{\Delta G(r)}{kT}} \quad (7)$$

Ce genre de formulation repose sur l'analyse des fluctuations à l'échelle moléculaire (C est un coefficient proportionnel au nombre d'Avogadro). L'argument de l'exponentielle est gigantesque en valeur absolue, sauf pour des germes de la taille du nanomètre. Donc la distribution porte sur des germes extrêmement petits et avec une très grande densité numérique. Par conséquent, ce genre de modèle n'est utilisable que si on présuppose des germes extrêmement petits et donc un degré de surchauffe élevé. Il n'est d'ailleurs jamais utilisé dans des applications pratiques.

Nous préférons un critère qui repose sur la conservation de l'énergie et des choix simples. On ne peut pas, par un simple bilan d'énergie, déterminer à la fois le nombre de germes et la surchauffe. Pour obtenir un tel résultat, il faudrait une description dynamique. On choisit de fixer le taux de vide en fin de détente, à une valeur suffisamment petite devant le taux de vide qui conduit à la rupture. Typiquement, on prend $\epsilon_0 = 0.1$. On constatera par la suite que les résultats ne sont pas très sensibles à des variations autour de cette valeur.

3.2.5 Principe de calcul

La détente conduit l'eau liquide à un état métastable surchauffé, éventuellement contenant des germes de vapeur. Pour des raisons pratiques, on choisit de procéder en deux étapes. Dans un premier temps, on produit de l'eau dans un état métastable sans germes, à une température T_l^* . Ceci permet d'utiliser uniquement les coefficients thermodynamiques de la phase liquide. Dans un deuxième temps (figure 33), on réalise une transformation à pression constante (qui est la pression du secondaire au terme de tension de surface de la goutte près) qui aboutit à l'état de surchauffe final en présence de germes (T_l).

Dans la recherche de la température de l'eau dans un état métastable T_l^* , on doit introduire l'enthalpie hors équilibre $h_l(P_2, T_l^*)$ et la masse volumique hors équilibre $\rho_l(P_2, T_l^*)$. Comme ces grandeurs thermodynamiques ne sont pas fournies par les tables ou les bases de données, on les obtient à partir des coefficients thermodynamiques sur la courbe de saturation côté liquide. Si le fluide primaire est injecté à saturation, on part directement de ce point à P_{l0} et T_{l0} . Si le fluide primaire est initialement sous refroidi, on recherche l'interception de la courbe de détente adiabatique et de la courbe de saturation côté liquide (figure 33). Remarquons qu'il s'agit en fait de deux courbes en 3 dimensions mais qui ont une intersection. L'intérêt est que l'on peut utiliser pour cette première détente les coefficients thermodynamiques du liquide à l'équilibre qui sont tabulés. On obtient ainsi un état de référence P_{ref} et T_{ref} , sur la courbe de saturation à partir duquel on effectue la recherche de l'état P_2, T_l^* .

L'énergie mécanique fournie à la goutte est :

$$dU = -PdV + P_2dV \quad (8)$$

Soit :

$$dH = VdP + P_2dV \quad (9)$$

3.2.6 Cas du liquide primaire sous-refroidi : recherche de l'interception

$$\rho_0 V_0 dh = VdP + P_2dV \quad (10)$$

$$dh = \frac{VdP}{\rho_0 V_0} + \frac{P_2dV}{\rho_0 V_0} = \frac{dP}{\rho} - P_2 \frac{d\rho}{\rho^2} \quad (11)$$

En effet, puisqu'on reste toujours en phase liquide et que l'on n'a pas d'échange avec l'extérieur, on a la conservation de la masse de liquide $\rho_0 V_0 = \rho V$, donc :

$$\frac{P_2dV}{\rho_0 V_0} = -P_2 \frac{d\rho}{\rho^2} \quad (12)$$

On écrit que :

$$\frac{dP}{\rho} = \frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_S d\rho = \frac{c^2}{\rho} d\rho \quad (13)$$

On obtient par conséquent :

$$dh = \frac{c^2}{\rho} d\rho - P_2 \frac{d\rho}{\rho^2} \quad (14)$$

C'est l'équation de la détente adiabatique de l'eau liquide. La vitesse du son est donnée par la relation (Y. Rocard, Thermodynamique, Masson) :

$$c^2 = \frac{1}{\rho^2} \frac{c_p}{c_v} \left(\frac{\partial P}{\partial T} \right)_V = \frac{1}{\rho^2} \frac{c_p}{c_v} \frac{\beta_v}{\alpha_p} \quad (15)$$

où β_v et α_p sont respectivement le coefficient thermodynamique de compression isochore et le coefficient d'expansion cubique que l'on trouve dans les tables de l'eau ou dans les bases de données thermodynamiques.

Si on fait l'hypothèse simplificatrice que la vitesse du son varie peu dans la gamme de conditions qui nous intéresse, l'équation (14) a une solution très simple :

$$h_l - h_{l0} = c^2 L n \left(\frac{\rho_l}{\rho_{l0}} \right) + P_2 \left(\frac{1}{\rho_l} - \frac{1}{\rho_{l0}} \right) \quad (16)$$

La recherche de l'interception se traduit alors par :

$$h_l(P_{sat}(T_{ref}), T_{ref}) - h_{l0}(P_{l0}, T_{l0}) = c^2 L n \left(\frac{\rho_l(P_{sat}(T_{ref}), T_{ref})}{\rho_{l0}(T_{l0}, P_{l0})} \right) + P_2 \left(\frac{1}{\rho_l(P_{sat}(T_{ref}), T_{ref})} - \frac{1}{\rho_{l0}(T_{l0}, P_{l0})} \right)$$

Comme la recherche s'effectue sur la courbe de saturation, il ne reste qu'une seule inconnue T_{ref} . Cette équation est résolue numériquement. En pratique, on trouve que, même pour de fortes différences de pression primaire-secondaire, l'abaissement de température est faible. Ceci est dû au fait que, dans la plupart des cas, le second terme du membre de droite (négatif) est de l'ordre de 10^2 J.kg^{-1} , le premier terme du membre de droite (positif) est de l'ordre de 10^3 J.kg^{-1} , alors que l'enthalpie spécifique est de l'ordre de 10^5 J.kg^{-1} . Les termes d'énergie mécanique apportent une faible contribution à l'équation, et la détente est pratiquement à enthalpie constante.

3.2.7 Détente adiabatique sans nucléation et liquide dans un état métastable

Partant du point de référence P_{ref} et T_{ref} , on poursuit la détente jusqu' à P_2 et T_l^* . Si le liquide primaire n'est pas sous-refroidi, on part directement de P_{l0} , T_{l0} . L'équation de bilan de la détente adiabatique est identique à l'équation (14) (on admet que la vitesse du son ne varie pas). La différence est que l'on doit introduire dans le bilan (14) l'enthalpie hors équilibre $h_l(P_2, T_l^*)$ et la masse volumique hors équilibre $\rho_l(P_2, T_l^*)$.

On peut envisager d'évaluer ces quantités en faisant usage de relations thermodynamiques et des isothermes de Van der Waals (figure 32). Cependant, les relations thermodynamiques que l'on pourrait utiliser sont théoriquement valables pour des états d'équilibre. C'est pourquoi l'utilisation des isothermes de Van der Waals est périlleuse. La caractérisation rigoureuse des états hors équilibre fait appel aux méthodes de la physique statistique. D'autre part, on constate que, même pour de très fortes chutes de pression primaire-secondaire, l'abaissement de température est assez faible. On se contentera donc d'une évaluation obtenue en utilisant les coefficients thermodynamiques qui sont fournis sur la courbe de saturation côté liquide.

On admet que l'enthalpie hors équilibre à T_l^* , P_2 , est peu différente de l'enthalpie à T_l^* , $P_{sat}(T_l^*)$, quand on est près de la solution. On peut donc écrire :

$$h_l(P_2, T_l^*) = h_l((P_{sat}(T_l^*), T_l^*)) + \delta_T(P_{sat}(T_l^*), T_l^*) (P_2 - P_{sat}(T_l^*)) \quad (17)$$

De même :

$$\rho_l(P_2, T_l^*) = \rho_l((P_{sat}(T_l^*), T_l^*)) (1 + \chi_T(P_{sat}(T_l^*), T_l^*) (P_2 - P_{sat}(T_l^*))) \quad (18)$$

où δ_T et χ_T sont respectivement le coefficient isotherme de Joule-Thomson et le coefficient de compressibilité isotherme qui sont tabulés (Steam Tables, Springer-Verlag). Nous avons finalement la relation de conservation :

$$h_l(P_2, T_l^*) - h_l(P_{sat}(T_{ref}), T_{ref}) = c^2 L n \left(\frac{\rho_l(P_2, T_l^*)}{\rho_l(P_{sat}(T_{ref}), T_{ref})} \right) + P_2 \left(\frac{1}{\rho_l(P_2, T_l^*)} - \frac{1}{\rho_l(P_{sat}(T_{ref}), T_{ref})} \right) \quad (19)$$

En tenant compte des relations (17) et (18), il ne reste qu'une seule inconnue : T_l^* . L'équation est résolue numériquement. On fait les mêmes constatations que pour la première détente, à savoir que l'abaissement de température est faible.

3.2.8 Formation des germes

A partir de cet état métastable, on considère une transformation à pression constante (figure 33) avec formation de germes et donc abaissement de la température. Nous avons la relation de conservation :

$$dH = P_2 dV \quad (\text{transformation à pression constante}) \quad (20)$$

$$H = \rho_l V_l h_l + N_g V_g \rho_g h_g + N_g V_g \frac{\gamma}{r_g} \quad (21)$$

Le dernier terme représente l'énergie hydrostatique de formation des germes. Nous pouvons donc écrire :

$$H - \rho_l(P_2, T_l^*) V_l^* h_l(P_2, T_l^*) = P_2 (V - V_l^*) \quad (22)$$

A cette équation s'ajoute l'équation de conservation de la masse :

$$\rho_l V_l + N_g V_g \rho_g = \rho_l(P_2, T_l^*) V_l^* = \rho_{l0} V_{l0} \quad (23)$$

Par hypothèse, on fixe le taux de vide ϵ_0 . Nous avons donc les relations $N_g V_g = \epsilon_0 V$ et $V_l = (1 - \epsilon_0)V$. Nous pouvons donc écrire :

$$V = \frac{\rho_{l0} V_{l0}}{\epsilon_0 \rho_g + (1 - \epsilon_0) \rho_l} = \frac{\rho_{l0} V_{l0}}{\bar{\rho}} \quad (24)$$

$$P_2 (V - V_l^*) = \rho_{l0} V_{l0} P_2 \left(\frac{1}{\bar{\rho}} - \frac{1}{\rho_l(P_2, T_l^*)} \right) \quad (25)$$

$$\frac{\rho_l V_l}{\rho_{l0} V_{l0}} = (1 - \epsilon_0) \frac{\rho_l}{\bar{\rho}} \quad (26)$$

D'autre part, les germes sont formés à l'équilibre, donc $r_g = r_g^*$, $P_g = P_{sat}(T_l)$ et $T_g \approx T_l$. Nous obtenons finalement :

$$\frac{\rho_l}{\bar{\rho}} h_l(P_2, T_l) + \frac{\rho_g}{\bar{\rho}} \frac{\epsilon_0}{1 - \epsilon_0} h_g(T_l, P_{sat}(T_l)) + \frac{\epsilon_0}{1 - \epsilon_0} \frac{1}{\bar{\rho}} \frac{\gamma}{r_g^*} - \frac{1}{1 - \epsilon_0} h_l(P_2, T_l^*) = \frac{1}{1 - \epsilon_0} P_2 \left(\frac{1}{\bar{\rho}} - \frac{1}{\rho_l(P_2, T_l^*)} \right) \quad (27)$$

Cette équation rend compte de l'énergie mécanique produite par la détente, du transfert d'enthalpie de la phase liquide vers la phase vapeur, et de la production d'énergie interfaciale. Il faut noter que la fraction molaire de vapeur du secondaire n'apparaît pas dans ces équations, ce qui est normal puisque l'on traite la phase adiabatique. La seule hypothèse qui a été faite est de supposer que, en fin de détente, on a $T_g \approx T_l$.

En faisant l'approximation que $\bar{\rho} \approx (1 - \epsilon_0)\rho_l$, on a la forme simplifiée :

$$h_l(P_2, T_l) + \frac{\epsilon_0}{1 - \epsilon_0} \left(\frac{\rho_g}{\rho_l} h_g(T_l, P_{sat}(T_l)) + \frac{1}{\rho_l} \frac{\gamma}{r_g^*} \right) - \rho_l(P_2, T_l^*) = P_2 \left(\frac{1}{1 - \epsilon_0} \frac{1}{\rho_l} - \frac{1}{\rho_l(P_2, T_l^*)} \right) \quad (28)$$

Comme précédemment, on utilise les coefficients thermodynamiques sur la courbe de saturation :

$$h_l(P_2, T_l) = h_l((P_{sat}(T_l), T_l) + \delta_T(P_{sat}(T_l), T_l) (P_2 - P_{sat}(T_l))) \quad (29)$$

De même :

$$\rho_l(P_2, T_l) = \rho_l((P_{sat}(T_l), T_l) (1 + \chi_T(P_{sat}(T_l), T_l) (P_2 - P_{sat}(T_l)))) \quad (30)$$

Pour ce qui concerne le terme d'énergie de surface, si on utilise la relation de Clapeyron, on a :

$$\frac{\gamma}{r_g^*} = \frac{\rho_g L v (T_l - T_{sat}(P_l))}{2T_l} \quad (31)$$

En linéarisant la différence des enthalpies et le second membre dans (28), on obtient une équation du premier degré en fonction de la surchauffe ΔT_l . Cependant, dans certaines applications, ce calcul donne une surchauffe très élevée, supérieure à 100 °C et donc cette approximation est erronée. Il est donc préférable d'écrire ce terme sans approximation :

$$\frac{\gamma}{r_g^*} = \frac{P_{sat}(T_l) - P_2}{2} \quad (32)$$

et de résoudre numériquement l'équation (28). En pratique, on trouve un abaissement de la température de l'ordre de 1 °C par rapport à T_l^* . Ceci est dû au fait que la masse de liquide concernée par la nucléation est faible par rapport à la masse totale de liquide. On a donc finalement, au terme du processus de détente et de formation des germes, une surchauffe qui est de l'ordre de grandeur de la surchauffe de l'eau primaire par rapport aux conditions du secondaire, typiquement environ 15 °C dans des conditions de type RTGV, ce qui conduit à des germes de rayon égal à environ $2 \cdot 10^{-8}$ m.

Connaissant la température de l'état métastable T_l , on détermine le rayon des germes par l'équation (32). Le nombre de germes est alors calculé à partir de la valeur initiale fixée du taux de vide, ϵ_0 :

$$\epsilon_0 = N_g \left(\frac{r_g}{r_G} \right)^3$$

Remarque importante :

Ce résultat peut paraître surprenant. On constate que, même pour une chute de pression de 75 bar, l'abaissement de la température des gouttes est au maximum de 5 à 6 °C. Dans beaucoup d'applications, il est même inférieur au degré. Ceci peut se comprendre de la façon suivante : nous avons vu que l'enthalpie fournie aux germes est très faible par rapport à l'enthalpie initiale du liquide. Si on considère la détente de la phase liquide seule, et en admettant que l'on peut utiliser les coefficients thermodynamiques du liquide stable, nous avons (Y. Rocard, Thermodynamique, Masson) :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial P} \right)_s = \frac{T}{c_p} \frac{\alpha_p}{\rho} \quad (33)$$

Si dans la gamme considérée, le terme $\frac{\alpha_p}{\rho c_p}$ est à peu près constant, on obtient :

$$\frac{T_l^*}{T_{l0}} = \exp \left(- \frac{\alpha_p}{\rho c_p} (P_{l0} - P_2) \right) \quad (34)$$

Une valeur typique du terme $\frac{\alpha_p}{\rho c_p}$ est 10^{-8} Pa^{-1} , d'où le résultat $\frac{T_l^*}{T_{l0}} \approx 1$ même pour des forts ΔP . Ce raisonnement simplifié suppose que l'on peut utiliser les coefficients thermodynamiques du liquide à l'équilibre, alors qu'en réalité ce n'est pas le cas.

3.3 Croissance d'une bulle de vapeur

Suite à la chute de pression rapide, les gouttes sont donc amenées à la pression du milieu ambiant P_2 , dans un état métastable surchauffé ($T_{\text{liq}} > T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})$) avec des germes dans les conditions thermodynamiques suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} P_2 \leq P_v \\ T_2 \leq T_v = T_{\text{liq}} \end{array} \right.$$

P_v et T_v sont respectivement la pression et la température à l'intérieur de la bulle de vapeur. Ces conditions thermodynamiques traduisent un état de déséquilibre entre les germes de vapeur et la phase liquide. Durant la phase ultérieure de refroidissement, les germes vont se développer jusqu'à atteindre l'équilibre mécanique et thermique, sauf si la rupture de la goutte intervient au préalable. L'étude de la croissance de ces germes est primordiale, car c'est elle qui va piloter l'évolution du taux de vide présent à l'intérieur de la goutte, paramètre qui sera par la suite utilisé pour caractériser la rupture de celle-ci. Il est d'usage, dans la littérature, de considérer deux phases successives : une première phase contrôlée par les forces d'inertie du liquide durant laquelle la croissance est très rapide (**régime inertiel**), une seconde phase qui est pilotée par le transfert de chaleur dans la phase liquide durant laquelle la croissance est plus lente (**régime diffusif**).

3.3.1 Régime inertiel

Dans le régime inertiel, la croissance de la bulle de vapeur est pilotée par la différence de pression entre la phase vapeur et la phase liquide. Initialement, la pression de création du germe est supérieure à la pression de la phase liquide ($P_v \geq P_{\text{liq}}$) ce qui conduit à une expansion de la bulle de vapeur. Lors de cette détente, la température de la phase liquide est constante et il n'y a pas de transfert de chaleur à l'interface. Durant ce régime, la tension de surface n'intervient pas et c'est l'inertie du liquide qui guide le processus. La dynamique du régime inertiel est uniquement décrite par un bilan de quantité de mouvement au niveau de l'interface. C'est pour cela que l'équation de Rayleigh est généralement utilisée pour décrire ce régime (Annexe C) :

$$\ddot{R}R + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{P_{\text{liq}}(R) - P_{\text{liq}}}{\rho_{\text{liq}}} \quad (1)$$

où, R est le rayon de la bulle de vapeur et ρ_{liq} la masse volumique de la phase liquide et où $P_{\text{liq}}(R)$ et P_{liq} sont respectivement la pression au niveau de l'interface et la pression de la phase liquide à l'infini. Cette équation admet la solution suivante :

$$\dot{R}(t) = \left(\frac{2 \Delta P}{3 \rho_{\text{liq}}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2)$$

Il découle de cette équation que, à partir d'un déséquilibre initial ΔP , le temps de mise à l'équilibre du germe est inférieur à la μs pour une bulle de diamètre initial de $100\mu\text{m}$. En fait, le germe est alimenté en permanence par un flux de vapeur à l'interface.

3.3.2 Régime diffusif

Il existe un mécanisme de croissance des germes avec une cinétique beaucoup plus lente ($ms \rightarrow s$), il s'agit du régime diffusif. Le transfert de quantité de mouvement n'est plus le facteur limitant et la croissance de la bulle est alors contrôlée par les échanges de chaleur au niveau de l'interface. Ainsi, la chaleur apportée par conduction dans la phase liquide permet d'alimenter le flux de vaporisation à l'interface. Le bilan d'énergie au niveau de l'interface liquide-vapeur est donc donné par la relation :

$$\underbrace{S k_{liq} \left(\frac{\partial T_{liq}}{\partial r} \right)_{r=R(t)}}_{\Phi_{conduction}} = \underbrace{L_v \frac{d}{dt} \left(\frac{4}{3} \pi R^3 \rho_{gaz} \right)}_{\Phi_{vaporisation}} \quad (3)$$

Nous arrivons finalement à l'expression :

$$k_{liq} \left(\frac{\partial T_{liq}}{\partial r} \right)_{r=R(t)} = L_v \rho_{gaz} \frac{dR}{dt} \quad (4)$$

où k_{liq} et L_v sont respectivement la conductivité thermique du liquide et la chaleur latente de vaporisation. Nous supposons que la masse volumique de la vapeur varie faiblement ($\frac{d\rho_{gaz}}{dt} \approx 0$) et nous considérons également que la température loin de l'interface T_∞ est constante. Toute la difficulté réside dans la détermination de la température au niveau de l'interface.

Plesset et Zwick [56] et Forster et Zuber [57] en 1954, ont étudié ce régime en supposant l'existence d'une couche limite (mince) de transfert entourant l'interface, d'épaisseur très faible devant le rayon de la bulle ($\delta(t) \ll R(t)$).

En considérant le cas classique de la conduction à une dimension à travers une plaque plane semi-infinie, nous avons l'expression du flux de conduction au niveau de l'interface (Annexe D) :

$$\Phi_{r=R(t)}^{cond} = \frac{k_{liq}(T_\infty - T_i)}{\sqrt{\pi \alpha_{liq} t}} = \frac{k_{liq}(T_{liq} - T_i)}{\sqrt{\pi \alpha_{liq} t}} \quad (5)$$

où T_i est la température de l'interface. Nous pouvons donc, en combinant les équations (4) et (5), déterminer la vitesse de l'interface :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{k_{liq}}{L_v \rho_{gaz}} \frac{(T_\infty - T_i)}{\sqrt{\pi \alpha_{liq} t}} \quad (6)$$

Au final, nous arrivons à l'expression :

$$R(t) = \frac{k_{liq}}{L_v \rho_{gaz}} 2 \frac{(T_\infty - T_i)}{\sqrt{\pi \alpha_{liq}}} \sqrt{t} \quad (7)$$

Dans l'hypothèse où $T_i = T_{sat}(P_{liq})$, on obtient une expression classique en fonction du nombre de Jakob, Ja (Annexe D) :

$$R(t) = \frac{2\sqrt{\alpha_{liq}}}{\sqrt{\pi}} Ja \sqrt{t} \quad (8)$$

$$Ja = \frac{\rho_{liq} C p_{liq} (T_{liq} - T_{sat}(P_{liq}))}{\rho_{gaz} L_v} \quad (9)$$

Le nombre de Jakob permet de comparer le transfert de chaleur en phase liquide (chaleur sensible) à la chaleur de vaporisation au niveau de l'interface. Certains auteurs introduisent une constante représentative de la géométrie de l'interface :

$$R(t) = 2CJa \left(\frac{\alpha_{liq} t}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (10)$$

Pour Plesset et Zwick [56], $C = \sqrt{3}$, pour Foster et Zuber [57] $C = \frac{\pi}{2}$ et dans le cas général de la plaque plane, $C = 1$. Dergarabedian [58] a confronté des résultats expérimentaux, pour la croissance d'une bulle de vapeur dans de l'eau à pression atmosphérique présentant un degré de surchauffe maximum de 3.1 °C, à la solution de Plesset et Zwick et il observe une bonne concordance, mais il faut souligner que l'étude a été réalisée pour des bulles de taille relativement importante (0.1 cm), dans un bain liquide surchauffé, ce qui ne convient pas exactement à nos conditions.

Scriven [59] traite le même problème en supposant que le transfert de chaleur s'effectue uniquement par conduction en géométrie sphérique dans la phase liquide sans couche limite de transfert. Ces hypothèses conduisent à l'expression suivante (Annexe D) :

$$R(t) = \sqrt{2Ja\alpha_{liq}t} \quad (11)$$

Dans le cadre de ces hypothèses, nous obtenons la même dépendance en fonction du temps ($R \propto \sqrt{t}$). En revanche, la dépendance en fonction du nombre de Jakob, c'est-à-dire en fonction du degré de surchauffe initial du fluide est différente. En considérant une couche limite de transfert $R \propto Ja$ tandis que pour une géométrie sphérique nous arrivons à $R \propto \sqrt{Ja}$.

Remarque : nous pouvons, dans le cadre des hypothèses de Scriven [59], prendre en compte le phénomène de raidissement de gradient au niveau de l'interface. Ce phénomène nous conduit à l'expression suivante (Annexe D) :

$$R(t) = \frac{\sqrt{2Ja\alpha_{liq}}}{\sqrt{1 - \alpha_{liq} Ja \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}}} \sqrt{t} \quad (12)$$

Le fait de prendre en compte le terme de convection radiale dans l'établissement du profil de température à l'interface (raidissement de gradient) apporte une faible correction sur l'évolution du rayon de la bulle de vapeur.

3.3.3 Solution complète combinant les deux régimes (MRG)

Mikic et al. [12] ont regroupé les deux régimes de croissance en fonction du degré de surchauffe du liquide. Leur idée est d'écrire la continuité de la température à l'interface. Dans un premier temps, ils utilisent la relation de Clausius-Clapeyron pour transformer l'équation de Rayleigh. Cette relation permet d'écrire :

$$\frac{P_i - P_{\text{liq}}}{\rho_{\text{liq}}} = \frac{T_i - T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})}{\rho_{\text{liq}} T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})} \rho_{\text{gaz}} L_v \quad (13)$$

Nous pouvons donc réécrire la solution de Rayleigh sous la forme :

$$\left(\frac{dR}{dt}\right)_{\text{inertiel}}^2 = A^2 \frac{T_i - T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})}{\Delta T} \quad (14)$$

où $\Delta T = T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})$ est le degré de surchauffe du liquide. Le coefficient A (m.s^{-1}) est donné par la relation :

$$A = \left(\frac{2}{3} \frac{L_v \rho_{\text{gaz}} \Delta T}{\rho_{\text{liq}} T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (15)$$

D'un autre coté, l'expression du débit d'évaporation obtenue par Plesset et Zwick conduit à :

$$\left(\frac{dR}{dt}\right)_{\text{diffusif}} = \frac{1}{2} \frac{B}{\sqrt{t}} \left(1 - \frac{T_i - T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})}{\Delta T}\right) \quad (16)$$

avec,

$$B = \left(\frac{12}{\pi} \alpha_{\text{liq}}\right)^{\frac{1}{2}} Ja \quad (17)$$

avec B en $\text{m.s}^{\frac{1}{2}}$. Eliminant le terme $\left(\frac{T_i - T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})}{\Delta T}\right)$ entre les équations (14) et (16) (continuité de la température au niveau de l'interface), on arrive directement à l'équation :

$$\frac{1}{A^2} \left(\frac{dR}{dt}\right)^2 + \frac{2\sqrt{t}}{B} \frac{dR}{dt} - 1 = 0 \quad (18)$$

En introduisant les variables sans dimension :

$$\begin{cases} R^+ = \frac{A}{B^2} R \\ t^+ = \frac{A^2}{B^2} t \end{cases}$$

Et en considérant que la vitesse à l'interface est toujours positive ou nulle ($\frac{dR}{dt} \geq 0$), nous arrivons à l'équation suivante :

$$\frac{dR^+}{dt^+} = (t^+ + 1)^{\frac{1}{2}} - (t^+)^{\frac{1}{2}} \quad (19)$$

En intégrant cette équation et en considérant initialement un rayon nul, ($t^+ = 0 \rightarrow R^+ = 0$), nous obtenons au final la solution qui se nomme dans la littérature *MKG*, (Mikic, Rohensow et Griffith) :

La solution correspondant à un rayon initial nul est :

$$R^+ = \frac{2}{3} \left((t^+ + 1)^{\frac{3}{2}} - (t^+)^{\frac{3}{2}} - 1 \right) \quad (20)$$

Cette relation nous permet donc de prédire l'évolution du rayon d'un germe de vapeur sans avoir à séparer artificiellement les deux régimes de croissance. Des comparaisons entre ce modèle et diverses expériences ont été synthétisées par Lee et Merte [60]. La figure 35 présente les corrélations $R^+(t^+)$ obtenues pour différents nombres de Jakob et pour différents fluides : régime inertiel, régime diffusif et équation MRG (équation 9).

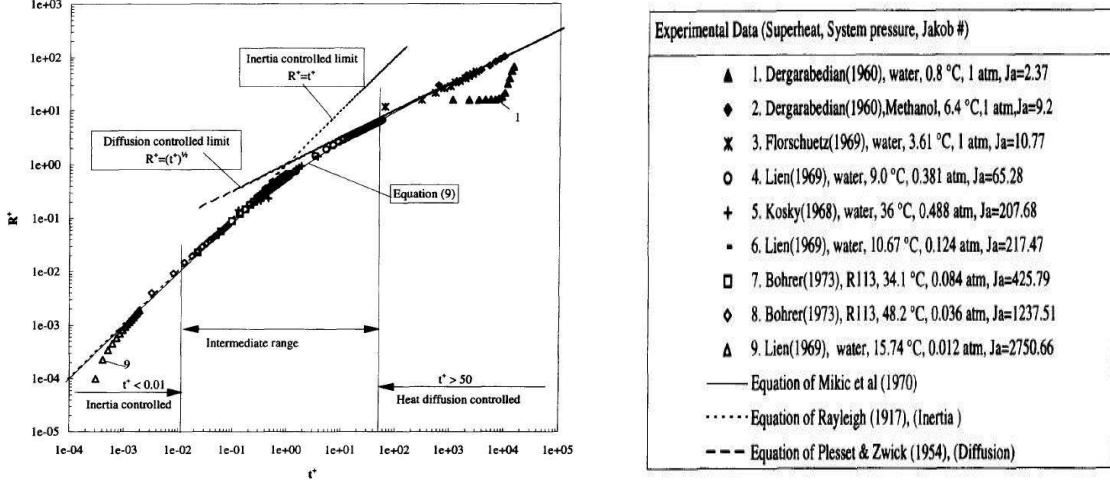


FIGURE 35 – Comparaisons de différentes mesures de croissance de bulles avec le modèle MRG et les deux cas limites [60]

La figure 35 montre que l'équation MRG reproduit les limites asymptotiques du régime inertiel et diffusif.

3.3.4 Notre approche : la solution complète en géométrie sphérique

Considérant que le rayon des germes est très petit devant le rayon de la goutte, une approche en géométrie sphérique nous semble plus appropriée. Dans ce cas, nous avons :

$$R \frac{dR}{dt} = \frac{k_{liq}}{L_v \rho_{gaz}} (T_{liq} - T_i) \quad (21)$$

par conséquent,

$$R \frac{dR}{dt} = \frac{\rho_{liq}}{\rho_{gaz} L_v} \alpha_{liq} C p_{liq} (T_{liq} - T_i) \quad (22)$$

$$R \frac{dR}{dt} = \alpha_{liq} Ja \frac{T_{liq} - T_i}{\Delta T} = \alpha_{liq} Ja \left(1 - \frac{T_i - T_{sat}(P_{liq})}{\Delta T} \right) \quad (23)$$

En appliquant la même procédure, nous arrivons à l'équation :

$$\frac{1}{A^2} \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 + \frac{R}{Ja \alpha_{liq}} \left(\frac{dR}{dt} \right) - 1 = 0 \quad (24)$$

Contrairement au modèle MRG qui conduit à une équation algébrique, nous obtenons une équation différentielle non linéaire. On peut néanmoins écrire :

$$\boxed{\frac{dR}{dt} = A \left(\sqrt{1 + \left(\frac{AR}{2Ja\alpha_{\text{liq}}}\right)^2} - \frac{AR}{2Ja\alpha_{\text{liq}}} \right)} \quad (25)$$

Sous cette forme, cette équation peut être intégrée numériquement en partant d'un rayon de germe quelconque. On démontre que lorsque $\Delta T \rightarrow 0$, $\frac{dR}{dt} \rightarrow 0$ ce qui est logique : la croissance des germes s'arrête quand le degré de surchauffe devient nul.

Cette équation est un apport original par rapport à ce qui existe dans la littérature. Il importe de bien comprendre sa signification. Elle permet de traiter les situations pour lesquelles on n'est ni en régime inertiel au sens strict, ni en régime diffusif au sens strict. On peut traiter par cette équation une situation pour laquelle on est en régime diffusif (la croissance des germes est pilotée principalement par la chaleur reçue de la phase liquide), mais les aspects inertiels sont pris en compte (croissance rapide des germes). En fin de détente adiabatique, les germes sont en surpression par rapport au liquide ce qui déclenche la phase inertielle. Très rapidement, les germes sont à une température inférieure à celle du liquide, ce qui déclenche la phase de diffusion. Cette équation est donc utilisable dans le système d'équations couplées qui décrit l'évolution d'une goutte en présence de germes (section 3.4).

3.4 Modèle d'évaporation avec croissance des bulles

On traite dans cette section la phase d'évaporation à pression constante des gouttes contenant des germes en phase de croissance. Les bilans de masse et d'énergie comportent par conséquent des termes d'échange avec l'environnement et des termes d'échange entre phases.

Il est primordial de caractériser la taille des germes et la température de surchauffe à l'instant où le critère de rupture est atteint (section 3.5). En effet, lorsque ce critère est atteint, la distribution des gouttes secondaires issues de la fragmentation thermique est en relation avec le rayon des germes à l'instant de la rupture. D'autre part, ces gouttes secondaires continuent à se refroidir et à s'évaporer jusqu'à atteindre l'équilibre. La température du liquide à l'instant de l'éclatement est donc un paramètre essentiel pour le calcul du taux de flashing final.

Par conséquent, les deux paramètres essentiels du modèle sont la température du liquide et le rayon des germes à l'instant de l'éclatement. Nous avons vu que la mise à l'équilibre de pression (détente adiabatique) produit un très grand nombre de germes de petite taille, qui développent une surface d'échange considérable. Le modèle développé au paragraphe 3.3 relie la vitesse de croissance des germes à la surchauffe. Il y a une compétition entre les termes d'échange avec l'environnement à la surface de la goutte et les termes d'échange interne liquide-vapeur.

Il est donc indispensable de traiter en mode couplé les transferts de chaleur et de masse à la surface de la goutte et les transferts de chaleur et de masse liquide-germes.

Les équations sont conditionnées de façon à se prêter facilement à une résolution implicite. Les variables conservatives sont l'enthalpie de la goutte, la masse de la goutte et le rayon des germes. Les variables d'état sont le rayon de la goutte, la température de la goutte, et le rayon des germes.

3.4.1 Equations générales

L'évolution des variables conservatives est décrite par les équations :

$$\frac{d}{dt}(H_{\text{goutte}}) = -\dot{m}_{\text{evap}} h_g(T_i, P_{\text{sat}}(T_i)) - S \bar{h}_{\text{gaz}}(T_i - T_\infty) \quad (1)$$

$$\frac{d}{dt}(M_{\text{goutte}}) = -\dot{m}_{\text{evap}} \quad (2)$$

$$\frac{d}{dt}(r_{\text{germe}}) = A \left(\sqrt{\left(1 + \left(\frac{A r_{\text{germe}}}{2\alpha_{\text{liq}} \text{Ja}}\right)^2\right)} - \left(\frac{A r_{\text{germe}}}{2\alpha_{\text{liq}} \text{Ja}}\right) \right) \quad (3)$$

Avec :

$S = 4\pi r_G^2$ (m ²)	:	surface d'échange extérieure
$\bar{h}_{\text{gaz}} = \text{Nu}_{\text{gaz}} \frac{\lambda_{\text{gaz}}}{2r_G}$ (W.m ⁻² .K ⁻¹)	:	coefficient d'échange de chaleur en phase gaz
$k_{\text{gaz}} = \text{Sh}_{\text{gaz}} \frac{D_{\text{av}}}{2r_G}$ (m.s ⁻¹)	:	coefficient de transfert de masse (2.1.30 et 2.1.44)
h_g (J.kg ⁻¹)	:	enthalpie spécifique du gaz
T_i (K)	:	température à l'interface (formule 2.1.28)
$x_{vi} = \frac{P_{\text{sat}}(T_i)}{P_2}$ (-)	:	fraction molaire de vapeur à l'interface (formule 2.1.28)

Le débit d'évaporation \dot{m}_{evap} est donné par la relation de Spalding :

$$\dot{m}_{\text{evap}} = S k_{\text{gaz}} \frac{P_2 M}{RT_\infty} \text{Ln} \left(\frac{1 - x_{v\infty}}{1 - x_{vi}} \right) \quad (4)$$

Rappel : par construction de la température d'interface (section 3.1), la théorie de Spalding ne pose pas de problème de divergence, le coefficient d'échange global restant toujours fini. En pratique, on bascule vers le flashing pur si $x_{v\infty} > 0.95$.

$\frac{d}{dt}(r_{\text{germe}})$ est donné par le modèle de croissance des germes développé dans la section 3.3.

Avec :

$$A = \left(\frac{2}{3} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \frac{L_v \Delta T}{T_{\text{sat}}(P_l)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (5)$$

où, $\Delta T = T_l - T_{\text{sat}}(P_l)$ est le degré de surchauffe et $\text{Ja} = \frac{\rho_{\text{liq}} c_{p\text{liq}} \Delta T}{\rho_{\text{gaz}} L_v}$ le nombre de Jakob et α_{liq} la diffusivité thermique du liquide.

Les variables d'état sont r_G , T_l et r_g (la connaissance de ces variables détermine complètement l'état du système et son évolution).

On fait l'approximation que, pendant la phase de croissance, les germes sont à la pression $P_l = P_2$ et à la température $T_g = T_{\text{sat}}(P_2)$. Ceci n'est pas en contradiction avec le fait que, à la fin de la détente adiabatique, ils sont formés à la pression $P_{\text{sat}}(T_l)$ et à la température T_l , donc en surpression. En fait, la première phase de croissance, très rapide (phase inertielle) et adiabatique, ramène les germes à une température légèrement inférieure à $T_{\text{sat}}(P_2)$. Ensuite, la surchauffe du liquide permet de les faire croître en régime diffusif. Si on ne faisait pas cette approximation, il faudrait ajouter au système une quatrième équation.

On peut donc écrire les variables conservatives :

$$H_{\text{goutte}} = \frac{4\pi}{3} (r_G^3 - N_g r_g^3) \rho_{\text{liq}} h_l(T_l, P_2) + \frac{4\pi}{3} N_g r_g^3 \left(\rho_{\text{gaz}} h_g(P_2, T_{\text{sat}}(P_2)) + \frac{3\gamma}{r_g} \right) \quad (6)$$

$$M_{\text{goutte}} = \frac{4\pi}{3} (r_G^3 - N_g r_g^3) \rho_{\text{liq}} + \frac{4\pi}{3} N_g r_g^3 \rho_{\text{gaz}} \quad (7)$$

On a tenu compte du fait que le nombre de germes est constant (c'est une des hypothèses du modèle). Le taux de vide est simplement :

$$\epsilon = N_g \frac{r_g^3}{r_G^3} \quad (8)$$

⇒ **Cas particulier du flashing pur**

En situation de flashing pur (pour des raisons pratiques, on a fixé la limite à $x_{v\infty} > 0.95$), les équations sont pratiquement identiques. Les seuls changements sont que l'expression (4) du débit d'évaporation est remplacée par

$$\dot{m}_{\text{evap}} = S \bar{h}_{\text{liq}} \frac{T_{\text{liq}} - T_{\text{sat}}(P_{\text{liq}})}{L_v} \quad (9)$$

Dans ces conditions, $T_i = T_{\text{sat}}(P_{v\infty})$ dans le second membre de l'équation (1). Le terme d'échange de chaleur est nul dans le second membre de (1)(section 3.1).

$$\bar{h}_{liq} = \text{Nu}_{liq} \frac{\lambda_{liq}}{2r_G} \quad (\text{section 3.1.5, corrélation 3.1.35 et 3.1.49})$$

⇒ **Schéma numérique**

On doit résoudre, pour chaque classe de taille, un système couplé de la forme

$$\frac{dY}{dt} = F(X) \quad (10)$$

Connaissant la matrice qui relie les variables conservatives aux variables d'état :

$$Y = G(X) \quad (11)$$

la résolution implicite est obtenue par le schéma de Newton suivant :

$$\left[\frac{dF(X)}{dX} - \frac{1}{\Delta t} \frac{dG(X)}{dX} \right] \delta X = \frac{Y - Y^n}{\Delta t} - F(X) \quad (12)$$

$$X + \delta_X \rightarrow X \quad G(X) \rightarrow Y \quad (13)$$

Le système (12) est inversé par la méthode de Gauss. Pour chaque classe de taille, on débute le calcul avec un pas de temps de 10^{-8} s. Ce pas de temps initial est petit à cause de la croissance très rapide des germes en phase inertielle. Ensuite, le pas de temps est automatiquement adapté en fonction de la convergence du schéma. Généralement, il augmente rapidement. Si le critère de rupture est atteint, pour chaque nouvelle classe de taille créée, on considère qu'il n'y a plus de germes et le calcul se poursuit en prenant en compte uniquement les échanges gouttes-atmosphère décrits au paragraphe 1 (deux équations). On redémarre avec un pas de temps de 10^{-6} s. Cette méthode nécessite, pour chaque itération, le calcul des matrices $\frac{\partial F_i}{\partial x_j}$ et $\frac{\partial G_i}{\partial x_j}$.

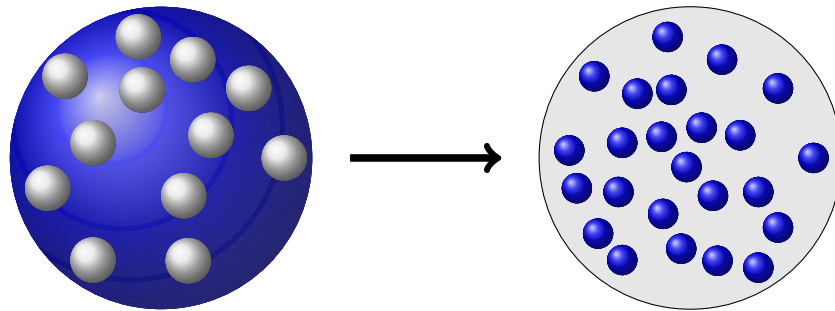
On peut effectuer les calculs en version stand-alone, avec des conditions aux limites fixées. En version couplée avec le code ASTEC, on suit chaque classe de taille ou nouvelle classe de taille individuellement comme décrit plus haut jusqu'à l'équilibre. La seule différence est que l'on réalise des rendez-vous pour chaque macro pas de temps, de façon à prendre en compte l'évolution des conditions aux limites au cours d'un transitoire. D'autre part, pour chaque macro pas de temps, on restitue au code ASTEC les informations dont il a besoin (principalement la source de liquide portée par chaque classe de taille et la source de vapeur) pour réaliser le calcul du dépôt sur les structures ou dans le bouchon d'eau et le calcul du transfert à l'environnement ou au circuit secondaire.

3.5 Critères de rupture

Du fait que les gouttes sont dans un état surchauffé à la fin de la phase de détente, la mise à l'équilibre de la goutte se réalise à la fois par la croissance des germes de vapeur et par l'évaporation de surface de la goutte. La combinaison de ces deux mécanismes conduit à une augmentation du taux de vide qui peut entraîner l'éclatement des gouttes au-dessus d'un certain seuil. On considère généralement (Senda et al. [61], Razzaghi [62], Zeng et al. [63], Moneeb et al. [64]) que cet éclatement se produit sous l'effet des instabilités de Rayleigh-Taylor (Plesset et Whipple [65]). En effet, dès que le taux de vide devient suffisamment élevé, les oscillations des germes de vapeur et celles induites à la surface de la goutte, laquelle est instable au sens de Rayleigh-Taylor, conduisent au développement de modes instables. Ces derniers entraînent l'éclatement de la goutte. Le problème théorique est donc d'une part, de déterminer le seuil de rupture et d'autre part, de déterminer le nombre de fragments produits. Ces deux valeurs ont une importance primordiale pour calculer la granulométrie de la phase liquide en fin de flashing. Malheureusement, il n'existe pas à notre connaissance une modélisation théorique convaincante. Moneeb et al. [64] proposent, sans justification, que le taux de vide seuil est égal à 0,55.

Condition de rupture de la goutte, d'après Monneeb et al.

$$\epsilon = \frac{V_{\text{vap}}}{(V_{\text{liq}} + V_{\text{vap}})} \geq \epsilon_{\text{max}} = 0,55$$



Senda et al. [61] font référence à un taux de vide seuil, mais sans fournir de valeur précise. En ce qui concerne le nombre de fragments, Razzaghi [62] considère une fragmentation en plusieurs étapes. Si les bulles primaires sont dans des conditions qui conduisent à l'éclatement, elles produisent chacune de un à dix fragments, de façon aléatoire. De la même façon, les gouttes secondaires peuvent aussi éclater si les conditions le permettent, en produisant de nouveau de un à dix fragments de façon aléatoire. A chaque étape, la rupture ne repose pas sur un taux de vide critique mais sur un taux de croissance du mode le plus instable calculé en fonction de l'épaisseur du film liquide. Il faut noter cependant que la formule proposée pour calculer le taux de croissance est avancée sans aucune justification. Il est fait référence aux travaux de Plesset et Whipple [65], qui sont cités par la plupart des auteurs (principalement des motoristes). Cependant, il n'y a aucun moyen de retrouver dans la publication de Plesset et Whipple [65] l'origine de la formule utilisée par Razzaghi [62]. Senda et al. [61] ainsi que Moneeb et al. [64], avancent sans aucune justification que le nombre de fragments produits par l'éclatement est égal à deux fois le nombre de germes. Zeng et al. [63] avancent comme critère de rupture le fait que l'amplitude des oscillations devient égale à cinq fois le rayon du film liquide. On verra par la suite que ce critère n'est pas adapté à la situation réelle.

Des efforts ont été faits en vue d'une approche plus mécaniste. La plupart des auteurs considèrent le cas d'une bulle unique entourée d'un film liquide. Dans cette configuration, une ap-

proche souvent utilisée dans la littérature repose sur l'évaluation du taux de croissance de l'instabilité de Rayleigh-Taylor induite par l'accélération du film liquide (calculé pour le mode le plus « dangereux », celui qui donne le taux de croissance le plus élevé). En effet, à l'interface entre la goutte et l'atmosphère, l'accélération est dirigée du milieu lourd vers le milieu léger, ce qui est un cas d'instabilité. On considère que l'éclatement se produit quand l'amplitude de la perturbation atteint cinq fois l'épaisseur du film liquide (Senda et al. [61], Zeng et al. [63], Shen et al. [66]). Il n'est pas question ici de rentrer dans la complexité mathématique des instabilités de Rayleigh-Taylor. Le taux de croissance est fourni par une relation de dispersion, c'est-à-dire une relation $\omega = f(k)$ qui est en général très difficile à obtenir. Razzaghi [62] considère une relation de dispersion classique pour un film liquide plan au-dessus d'un volume de vapeur, ce qui n'a rien à voir avec notre problème. Pour Zeng et Lee [63], le taux de croissance du mode d'oscillation sphérique (unique mode considéré) est solution d'une équation du troisième degré dont les coefficients dépendent essentiellement du taux de vide et de la vitesse de croissance de l'unique bulle (thèse de Zeng). D'une part, le critère de rupture et l'amplitude initiale des oscillations sont incompatibles avec une analyse des instabilités en phase linéaire. D'autre part, nous sommes plutôt confrontés à une situation avec un très grand nombre de petits germes. Nous avons donc recherché une approche qui repose sur un critère énergétique, à l'instar de celle proposée par Shen et al. [66].

Le bilan énergétique peut s'écrire sous la forme :

$$\underbrace{E_{cb}}_{\textcircled{1}} + \underbrace{3\gamma N_g \frac{V_g}{r_g}}_{\textcircled{2}} + \underbrace{3\gamma \frac{V_0}{R_0}}_{\textcircled{3}} = \underbrace{E_{cf}}_{\textcircled{4}} + \underbrace{3\gamma N_f \frac{V_f}{R_f}}_{\textcircled{5}} \quad (1)$$

où :

- ① est l'énergie cinétique de la phase liquide dans la goutte juste avant l'éclatement
- ② est l'énergie de surface des bulles juste avant l'éclatement
- ③ est l'énergie de surface de la goutte juste avant l'éclatement
- ④ est l'énergie cinétique des fragments
- ⑤ est l'énergie de surface des fragments

Considérons de plus la conservation de la masse de liquide, donc du volume liquide :

$$N_f V_f = (1 - \epsilon) V_0 \quad (\epsilon \text{ est le taux de vide et } V_0 \text{ le volume de la goutte juste avant l'éclatement})$$

Nous avons donc :

$$E_{cb} + 3\gamma \frac{\epsilon V_0}{r_g} + 3\gamma \frac{V_0}{R_0} = \frac{1}{2} \rho_{liq} (1 - \epsilon) V_0 v_f^2 + 3\gamma \frac{(1 - \epsilon) V_0}{R_f} \quad (2)$$

où r_g , R_0 et v_f sont respectivement le rayon des germes, le rayon de la goutte avant éclatement, et la vitesse des fragments (gouttes secondaires). En pratique, le terme correspondant à l'énergie de surface de la goutte est négligeable. En principe, tous les termes de cette équation sont déduits du calcul, sauf le rayon des fragments R_f . Donc, si on fixe des conditions pour la rupture, on aura accès au rayon des fragments. On peut sortir de l'équation (1) l'énergie disponible pour la création des gouttes secondaires :

$$\Delta E = E_{cb} + 3\gamma \frac{\epsilon V_0}{r_g} + 3\gamma \frac{V_0}{R_0} - \frac{1}{2} \rho_l (1 - \epsilon) V_0 v_f^2 \quad (3)$$

D'où :

$$\frac{1}{R_f} = \frac{\Delta E}{3\gamma(1 - \epsilon)V_0} \quad (4)$$

Nous verrons par la suite que ce type de relation est en pratique inapplicable pour un grand nombre de germes par unité de volume car dans ce cas, il n'existe pas de formulation claire des deux termes d'énergie cinétique.

3.5.1 Critère énergétique : cas d'une bulle unique

Zeng et al [63] considèrent une bulle unique dont le rayon juste avant l'éclatement est R_i . Ils obtiennent :

$$v_f = \frac{3R_i^2(R_0 - R_i)}{R_0^3 - R_i^3} \frac{dR_i}{dt} \quad (5)$$

et,

$$\frac{1}{R_{32}} = \frac{R_0^2 + R_i^2}{R_0^3 - R_i^3} + \left[\frac{3}{2} \frac{R_i^3 \left(1 - \frac{R_i}{R_0}\right)}{R_0^3 - R_i^3} \left(\frac{dR_i}{dt}\right)^2 - \frac{1}{2} v_f^2 \right] \frac{\rho_l}{3\gamma} \quad (6)$$

R_{32} est le rayon de Sauter de la distribution des fragments. Pour comprendre les hypothèses qui sont à l'origine des expressions (5) et (6), et montrer que ces équations sont une conséquence directe des équations (2) et (3), nous proposons la démonstration suivante.

En tenant compte de l'incompressibilité du liquide ($u(r)r^2 = cte = \frac{dR_i}{dt} R_i^2$), l'énergie cinétique du film liquide est

$$\begin{aligned} E_{cb} &= \frac{1}{2} \rho_l 4\pi \left(\frac{dR_i}{dt}\right)^2 R_i^4 \int_{R_i}^{R_0} \frac{dr}{r^2} = \frac{3}{2} \rho_l \frac{4\pi}{3} \left(\frac{dR_i}{dt}\right)^2 R_i^4 \left(\frac{1}{R_i} - \frac{1}{R_0}\right) \\ &= \frac{3}{2} \rho_l \left(\frac{dR_i}{dt}\right)^2 V_i \left(1 - \frac{R_i}{R_0}\right) \end{aligned}$$

D'autre part, la vitesse des fragments est obtenue en écrivant la conservation de l'impulsion. Considérant que les fragments sont émis avec une symétrie sphérique (dans le référentiel du centre de masse), pour un secteur angulaire $d\Omega$, l'impulsion contenue dans ce secteur est, en module :

$$\rho_l d\Omega \int_{R_i}^{R_0} u(r) r^2 dr = \rho_l d\Omega \int_{R_i}^{R_0} \frac{dR_i}{dt} R_i^2 dr = \rho_l d\Omega \frac{dR_i}{dt} R_i^2 (R_0 - R_i)$$

L'impulsion emportée par les fragments est $\rho_l d\Omega \int_{R_i}^{R_0} r^2 dr v_f = \rho_l d\Omega \frac{R_0^3 - R_i^3}{3} v_f$.

D'où l'expression (5). Remarquons que dans le modèle de Zeng et Lee [63], la vitesse des fragments est assimilée à la vitesse de la surface de la goutte au moment de la rupture, laquelle est directement liée à $\frac{dR_i}{dt}$. En introduisant le nombre de Weber :

$$We_i = \frac{R_0 \rho_l \left(\frac{dR_i}{dt}\right)^2}{\gamma} \quad (7)$$

On peut écrire l'équation (6) sous la forme :

$$\frac{R_0}{R_{32}} = R_0 \frac{R_0^2 + R_i^2}{R_0^3 - R_i^3} + \left[\frac{3 R_i^3 \left(1 - \frac{R_i}{R_0}\right)}{2 R_0^3 - R_i^3} - \frac{9}{2} \left(\frac{R_i^2 (R_0 - R_i)}{R_0^3 - R_i^3}\right)^2 \right] \frac{We_i}{3} \quad (8)$$

On fait l'approximation que toutes les gouttes secondaires ont la même taille et on assimile R_f à R_{32} .

$$\frac{R_0}{R_f} = R_0 \frac{R_0^2 + R_i^2}{R_0^3 - R_i^3} + \left[\frac{3 R_i^3 \left(1 - \frac{R_i}{R_0}\right)}{2 R_0^3 - R_i^3} - \frac{9}{2} \left(\frac{R_i^2 (R_0 - R_i)}{R_0^3 - R_i^3}\right)^2 \right] \frac{We_i}{3}$$

Le nombre de fragments est égal à $\left(\frac{R_0}{R_f}\right)^3$. On voit que le nombre de fragments dépend du taux de vide et de l'énergie cinétique d'expansion à travers le nombre de Weber.

$$\frac{R_0}{R_f} = \frac{1 + \epsilon^{\frac{2}{3}}}{1 - \epsilon} + \epsilon \left(\frac{1 - \epsilon^{\frac{1}{3}}}{1 + \epsilon^{\frac{1}{3}} + \epsilon^{\frac{2}{3}}} \right)^2 \frac{We_i}{2} \quad (9)$$

Le premier terme ne dépend que du taux de vide. Le second terme dépend du taux de vide et du nombre de Weber, donc du rayon de la goutte et du taux de croissance de la bulle.

Pour résumer, la procédure établie par Zeng et Lee [63] consiste à calculer à chaque pas de temps le taux de croissance et l'amplitude de l'instabilité. Ils considèrent qu'il y a rupture si l'amplitude de l'instabilité est égale à cinq fois l'épaisseur du film liquide. Le nombre de fragments est donné par l'équation (9).

Shen et al [66] ont fait une tentative pour établir un critère de rupture en évitant le calcul du taux de croissance. Ce critère repose sur la minimisation d'une fonction qui représente l'énergie disponible, analogue au deuxième membre de l'équation (3). Malheureusement, leur démonstration est assez confuse, et sujette à caution. De toute façon, elle n'est pas applicable dans le cas qui nous intéresse.

3.5.2 Cas d'un grand nombre de germes

Nous avons vu dans ce qui précède que, pour le degré de surchauffe attendu en fin de détente, le rayon des germes initial est très petit (de l'ordre de $10^{-8}m$), donc on a un très grand nombre de germes par unité de volume. Si les termes d'énergie cinétique sont négligeables dans l'équation (2), on a immédiatement le résultat : $\frac{1}{R_f} \approx \frac{\epsilon}{(1-\epsilon)r_g}$ donc $\frac{R_0}{R_f} \approx \frac{\epsilon R_0}{(1-\epsilon)r_g}$, $\left(\frac{R_0}{R_f}\right)^3 \approx \left(\frac{\epsilon}{1-\epsilon}\right)^3 \frac{V_0}{V_g} \approx N_g \left(\frac{\epsilon}{1-\epsilon}\right)^3 \frac{V_0}{N_g V_g}$, donc :

$$\left(\frac{R_0}{R_f}\right)^3 \approx N_g \frac{\epsilon^2}{(1-\epsilon)^3}$$

Nous obtenons donc le résultat avancé dans la littérature que, pour $\epsilon \approx 0.5$, le nombre de fragments est égal à deux fois le nombre de germes. En réalité, les termes faisant intervenir l'énergie cinétique ne sont pas négligeables et les termes d'énergie de surface sont considérables, s'agissant de germes et de fragments très petits. Utiliser un bilan énergétique de type (2) revient à équilibrer des termes très grands sur lesquels on a une grosse incertitude, ce qui n'est pas satisfaisant sur le plan théorique. De plus, si on essaie de ramener le problème à la méthode de Zeng et Lee [63], il faut convertir les germes en une bulle unique de volume équivalent. Ceci conduit à une vitesse de croissance de la bulle $\frac{dR_i}{dt} = \frac{R_i}{r_g} \frac{dr_g}{dt}$ considérable et par conséquent, en appliquant (5) et (6), à une vitesse des fragments (supersonique) et à une taille de fragments non physiques. En fait, dans ce cas, c'est le modèle du film liquide qui est erroné car non adapté à la situation d'une très grande densité de petits germes.

Montrons que le critère de rupture pour un taux de vide de 50 % est judicieux

Utilisant de nouveau l'équation de Rayleigh, on trouve que le profil de pression dans le liquide entourant le germe en expansion est :

$$P(r) = P_g - \rho_l \dot{r}_g^2 \left(\frac{1}{2} \left(\frac{r_g}{r} \right)^4 - 2 \frac{r_g}{r} + \frac{3}{2} \right)$$

Soit :

$$P(r) = P_g - \frac{2}{3} (P_g - P_l) \left(\frac{1}{2} \left(\frac{r_g}{r} \right)^4 - 2 \frac{r_g}{r} + \frac{3}{2} \right) \quad (10)$$

La distance moyenne entre germes est $d \approx \left(\frac{V_0}{N_g} \right)^{\frac{1}{3}}$. Il ressort de l'équation (10) que $P(r) = P_g - \frac{1}{3} (P_g - P_l)$ pour $\frac{r_g}{r} \approx \frac{1}{2}$. On peut donc considérer que la limite de l'interaction entre bulles est atteinte si $d \leq 2r_g$. Ceci correspond à $\left(\frac{V_0}{N_g} \right)^{\frac{1}{3}} \leq 2r_g$, $V_0 \leq N_g 8r_g^3 = 8 \frac{3}{4\pi} N_g V_g \approx 2N_g V_g$.

Ce qui donne bien la limite classique $\epsilon \geq 0.5$.

Dans ce modèle, l'éclatement de la goutte est lié à l'interaction entre les germes plutôt qu'à l'instabilité du film liquide (qui n'existe pas). Le recouvrement des ondes de pression empêche les nombreuses petites bulles de croître comme l'exigerait le degré de surchauffe, ce qui conduit à l'éclatement.

3.5.3 Critère de fragmentation lié à un nombre de Weber critique

On est donc conduit à mettre en place un modèle très simple qui prend néanmoins en compte les paramètres essentiels du problème. L'idée est que, au-delà du taux de vide critique, la coalescence suivie de l'effondrement rapide des germes fait éclater la goutte. Pour définir un ordre de grandeur de la taille des fragments, on considère que l'énergie hydrostatique contenue dans les germes est transformée en énergie cinétique des fragments (dans le repère du centre de masse).

On fixe comme critère que la relation entre le rayon des fragments et leur vitesse correspond au nombre de Weber critique (limite de stabilité d'une goutte). On trouve dans la littérature des valeurs du nombre de Weber critique comprises entre 10 et 20. Nous avons par conséquent :

$$We_{crit} = \frac{2\rho_{g\infty}R_f v_f^2}{\gamma} \quad (11)$$

Dans cette relation, v_f est la vitesse d'un fragment dans le repère du centre de masse de la goutte, $\rho_{g\infty}$ est la densité du gaz dans les conditions du secondaire. Si tous les fragments avaient la même vitesse, nous aurions simplement :

$$\frac{1}{2}\rho_{liq}V_{liq}v_f^2 = N_g\Delta W_g \quad (12)$$

où ρ_{liq} et V_{liq} sont respectivement la densité du liquide et le volume du liquide au moment de l'éclatement, ΔW_g est l'énergie contenue dans les germes au même instant. Considérant que la rupture a lieu pour un taux de vide de 50 %, on a : $V_{liq} = N_g V_g$. Si ce n'est pas le cas, on aura :

$$V_{liq} = \frac{1 - \epsilon_{crit}}{\epsilon_{crit}} N_g V_g \quad (13)$$

$$\frac{1}{2}v_f^2 = \frac{\epsilon_{crit}}{1 - \epsilon_{crit}} \frac{\Delta W_g}{\rho_{liq} V_g} \quad (14)$$

Pour le critère de rupture choisi, on a :

$$\frac{1}{2}v_f^2 = \frac{\Delta W_g}{\rho_l V_g} \quad (15)$$

Par conséquent, avec ces hypothèses, on obtient un rayon de fragment unique, quelle que soit la taille de la goutte à l'instant de l'éclatement :

$$R_f = \frac{\gamma \rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{We_{crit}}{4} \frac{V_g}{\Delta W_g} \quad (16)$$

Si on prend en compte uniquement l'énergie interfaciale, $\frac{\Delta W_g}{V_g} = \frac{3\gamma}{r_g}$ et on obtient la relation simple :

$$\frac{R_f}{r_g} = \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{We_{crit}}{12} \quad (17)$$

Cette formule permet, connaissant le volume liquide d'une goutte et le rayon des germes au moment de l'éclatement, de calculer le nombre de fragments produits. Typiquement, quand le critère de rupture est atteint, le rayon des germes est de l'ordre de 50 à 60 nanomètres, relativement indépendant de la taille des gouttes produites par la fragmentation mécanique, et les relations (16) ou (17) prédisent des fragments de rayon égal à quelques microns, ce qui est petit comparé aux données expérimentales, comme nous le verrons dans le chapitre de validation. De plus, comme ce résultat ne dépend pratiquement pas de la taille initiale des gouttes (mise à part des différences mineures liées à la taille des germes à l'instant de l'éclatement), on obtient une population monodispersée, qui ne correspond pas à la réalité.

3.5.4 Une formulation plus réaliste de l'énergie disponible

Nous avons vu dans le chapitre 3 section 3.2 que l'énergie hydrostatique de formation d'un germe de rayon r_g peut s'écrire :

$$\Delta W = -\frac{8\pi\gamma}{3r_g^*}r_g^3 + 4\pi\gamma r_g^2 = 4\pi\gamma r^2 \left(1 - \frac{2r_g}{3r_g^*}\right) \quad (18)$$

Cette énergie est maximale si r_g est égal au rayon d'équilibre r_g^* et vaut alors $\frac{4\pi}{3}\gamma r_g^{*2}$, de sorte que $\frac{\Delta W_g}{V_g} = \frac{\gamma}{r_g}$. En prenant $\frac{\Delta W_g}{V_g} = \frac{3\gamma}{r_g}$, on surestime l'énergie disponible et donc on sous-estime la taille des fragments. Il est donc plus réaliste de considérer, de par l'expression précédente, pour des germes de rayon r_g au moment de l'éclatement :

$$\frac{\Delta W_g}{V_g} = \frac{3\gamma}{r_g} \left(1 - \frac{2r_g}{3r_g^*}\right) = \frac{3\gamma}{r_g} \left(1 - \frac{1}{3} \frac{r_g \rho_g L v \Delta T}{\gamma T_l}\right) \quad (19)$$

où $\Delta T = T_l - T_{sat}(P_2)$ est le degré de surchauffe au moment de l'éclatement. Nous avons donc finalement, avec ces hypothèses :

$$\frac{R_f}{r_g} = \frac{\rho_l}{\rho_{g,\infty}} \frac{W_{e_{crit}}}{12} \frac{1}{1 - \frac{1}{3} \frac{r_g \rho_g L v \Delta T}{\gamma T_l}} \quad (20)$$

En pratique, on trouve que le terme correctif est toujours proche de 1.

⇒ Commentaires sur cette formule

La taille et le nombre de fragments (gouttes secondaires) produits lors de l'éclatement d'une goutte dépendent principalement du rayon des germes à l'instant de l'éclatement. Ils dépendent aussi, directement ou indirectement, du degré de surchauffe. Ce résultat est physiquement satisfaisant, et rend compte de plusieurs aspects importants de la modélisation. Il n'est pas uniquement lié au nombre de germes, comme l'affirment certaines publications. En effet, le rayon des germes et la surchauffe, quand on atteint un taux de vide de 50%, dépendent du nombre de germes créés lors de la détente adiabatique, principalement via la surface d'échange avec le liquide, de la taille initiale de la goutte, des coefficients de transfert en phase liquide et en phase gaz, et du taux de croissance des germes.

On voit par conséquent que tous les aspects de la modélisation qui ont été développés dans ce chapitre sont déterminants. Le seul aspect qui reste à examiner est la prise en compte de l'inertie de la goutte dans la répartition de vitesse des gouttes secondaires. Comme le montrent les calculs, le rayon des germes et le degré de surchauffe à l'instant de l'éclatement sont relativement peu dépendants de la taille initiale de la goutte. Ceci est lié à la surface d'échange développée par les germes qui contrôlent le refroidissement de façon prépondérante par rapport aux termes d'échange de surface. En conséquence, la relation (17) prédit une taille de gouttes secondaires à peu près identique pour toutes les gouttes primaires, ce qui conduit à une population de gouttes secondaires pratiquement monodispersée. Si on veut obtenir une distribution des fragments qui dépende du rayon de la goutte initiale, il faut prendre en compte l'inertie de la goutte. En effet, il paraît logique de trouver de plus gros fragments secondaires présents dans la distribution pour une plus grosse goutte primaire.

3.5.5 Prise en compte de la distribution en taille des fragments

En réalité, il n'y a pas une taille de fragments mais une distribution en taille, du fait que tous les fragments ne sont pas produits avec la même vitesse initiale. Dans la littérature concernant les micro-explosions, on trouve essentiellement des descriptions qualitatives. Une description mécaniste de la micro-explosion sort du cadre et des objectifs de cette étude.

Une approche simple est de considérer une loi quadratique pour la vitesse $v_f = Ar^2$, de sorte que la vitesse soit pratiquement nulle au centre (les plus gros fragments). Les fragments qui sont produits en périphérie ont la plus grande vitesse, et sont donc les plus petits. On trouve dans la littérature (Zel'dovich, Sédov), une variation linéaire de la vitesse ($v_f = Ar$) pour un fluide en explosion sphérique. Cependant, il faut souligner que cette loi n'est pas obtenue pour le type de situation qui nous concerne.

Le bilan d'énergie (12) devient :

$$\frac{1}{2}\rho_l \int_0^{R_0} \frac{1}{2}4\pi r^2 v_f^2 dr = \frac{1}{2}\rho_l \int_0^{R_0} \frac{1}{2}4\pi r^2 (Ar^2)^2 dr = N_g \Delta W_g \quad (21)$$

Le coefficient $\frac{1}{2}$ devant l'intégrale vient du fait que l'on suppose que la rupture se produit pour un taux de vide égal à 50%. Dans ce cas, $\frac{1}{2}\frac{4\pi}{3}R_0^3 = N_g V_g$, nous avons donc :

$$A^2 \frac{3}{7} R_0^4 = \frac{2\Delta W_g}{\rho_l V_g} \quad \text{soit} \quad A^2 R_0^4 = \frac{14}{3} \frac{\Delta W_g}{\rho_l V_g} \quad (22)$$

Si la rupture n'a pas lieu pour un taux de vide juste égal à 50%, on aura :

$$A^2 R_0^4 = \frac{\epsilon_{\text{crit}}}{1 - \epsilon_{\text{crit}}} \frac{14}{3} \frac{\Delta W_g}{\rho_l V_g} \quad (23)$$

Pour ne pas confondre rayon des fragments et position dans la goutte à laquelle ils sont produits, nous désignons celle-ci par t (pris comme un paramètre). Nous avons, pour un fragment produit à la position t :

$$v_f^2(t) = \frac{\epsilon_{\text{crit}}}{1 - \epsilon_{\text{crit}}} \frac{14}{3} \frac{\Delta W_g}{\rho_l V_g} \frac{t^4}{R_0^4} \quad (24)$$

$$R_f(t) = \frac{1 - \epsilon_{\text{crit}}}{\epsilon_{\text{crit}}} \frac{3We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{\gamma V_g}{\Delta W_g} \frac{R_0^4}{t^4} \quad (25)$$

Pour une rupture à 50%, on aura :

$$R_f(t) = \frac{3We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{\gamma V_g}{\Delta W_g} \frac{R_0^4}{t^4} \quad (26)$$

Dans la suite, nous nous limiterons à cette hypothèse qui, comme nous l'avons montré, semble très raisonnable. On tombe alors sur une autre limitation liée à l'application d'un critère en termes de nombre de Weber : pour des vitesses très faibles, la taille des fragments est indéterminée car la stricte application du critère donnerait des fragments de taille supérieure à celle de la goutte initiale. On introduit donc une limitation à la taille des plus gros fragments. On

considère que l'on produit au centre un gros fragment de rayon R_{fmax} et des fragments de plus en plus petits quand t augmente, suivant la loi (26). La taille des plus petits fragments est obtenue pour $t = R_0$ dans (26) soit :

$$R_{\text{fmin}} = \frac{3We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{\gamma V_g}{\Delta W_g} \quad (27)$$

En comparant à la formulation (16), on voit que le rayon des plus petits fragments est du même ordre de grandeur que celui obtenu dans le cas monodispersé.

Pour obtenir la taille des plus gros fragments, on écrit d'une part la conservation de la masse de liquide, d'autre part la condition de continuité de la taille des fragments en fonction du paramètre t (qui indique la position dans la goutte lors de la création). On fait l'hypothèse que l'on a un gros fragment au centre, à vitesse nulle dans le centre de masse. On recherche, autour de ce fragment central, une distribution entre t_{min} , une valeur à préciser et R_0 ce qui conduit à (pour un critère de rupture à 50%) :

$$\frac{4\pi}{3} R_{\text{fmax}}^3 + \frac{1}{2} \int_{t_{\text{min}}}^{R_0} 4\pi t^2 dt = \frac{1}{2} \frac{4\pi}{3} R_0^3 \quad (28)$$

Le premier terme est le volume du gros fragment au centre.

Ce qui donne : $R_{\text{fmax}}^3 = \frac{1}{2} t_{\text{min}}^3$ donc $t_{\text{min}} = 2^{\frac{1}{3}} R_{\text{fmax}}$

Par continuité, $R_{\text{fmax}} = R_f(t_{\text{min}}) = R_{\text{fmin}} \frac{R_0^4}{2^{\frac{4}{3}} R_{\text{fmax}}^4}$

Nous avons donc la condition :

$$R_{\text{fmax}} = \frac{R_{\text{fmin}}^{\frac{1}{5}} R_0^{\frac{4}{5}}}{2^{\frac{4}{15}}} \quad (29)$$

$$R_{\text{fmax}} = \frac{1}{2^{\frac{4}{15}}} \left(\frac{3We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{\gamma V_g}{r_g \Delta W_g} \right)^{\frac{1}{5}} R_0^{\frac{4}{5}} \quad (30)$$

Sous forme adimensionnée :

$$\frac{R_{\text{fmax}}}{r_g} = \frac{1}{2^{\frac{4}{15}}} \left(\frac{3We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{\gamma V_g}{r_g \Delta W_g} \right)^{\frac{1}{5}} \left(\frac{R_0}{r_g} \right)^{\frac{4}{5}} \quad (31)$$

Si on ne tient compte que de l'énergie inter faciale, on obtient :

$$\frac{R_{\text{fmax}}}{r_g} = \frac{1}{2^{\frac{4}{15}}} \left(\frac{We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \right)^{\frac{1}{5}} \left(\frac{R_0}{r_g} \right)^{\frac{4}{5}} \quad (32)$$

$$\frac{R_{\text{fmin}}}{r_g} = \frac{We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \quad (33)$$

De ce qui précède, l'expression complète, prenant en compte un taux de vide critique éventuellement différent de 50% et une évaluation plus physique de l'énergie disponible est :

$$\frac{R_{f\max}}{r_g} = \frac{1}{2^{\frac{4}{15}}} \left(\frac{We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{1 - \epsilon_{\text{crit}}}{\epsilon_{\text{crit}}} \frac{1}{1 - \frac{1}{3} \frac{r_g \rho_g L_v \Delta T}{\gamma T_l}} \right)^{\frac{1}{5}} \left(\frac{R_0}{r_g} \right)^{\frac{4}{5}} \quad (34)$$

$$\frac{R_{f\min}}{r_g} = \frac{We_{\text{crit}}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{1 - \epsilon_{\text{crit}}}{\epsilon_{\text{crit}}} \frac{1}{1 - \frac{1}{3} \frac{r_g \rho_g L_v \Delta T}{\gamma T_l}} \quad (35)$$

On constate que, si la taille des plus petits fragments ne dépend pas directement du rayon de la goutte, celle des plus gros fragments en dépend, ce qui donne une distribution finale qui n'est plus mono dispersée. D'autre part, à $R_{f\min}$ fixé, on constate que la taille des plus gros fragments est peu dépendante du taux de vide à l'instant de la rupture (variation en $(1 - \epsilon_{\text{crit}})^{\frac{1}{5}}$). Nous avons donc une distribution en taille des gouttes secondaires, de rayon compris entre $R_{f\min}$ et $R_{f\max}$, pour une goutte de rayon R_0 à l'instant de l'éclatement.

3.5.6 Prise en compte de la distribution en taille des fragments : un autre profil de vitesse

Si on fait l'hypothèse (Sédov) que le champ de vitesse dans la goutte à l'instant de l'éclatement suit une loi en $v_f = At$, un raisonnement identique à ce qui précède conduit aux valeurs des rayons extrêmes de la distribution :

$$\frac{R_{f\min}}{r_g} = \frac{We_{\text{crit}}}{20} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}} \frac{1 - \epsilon_{\text{crit}}}{\epsilon_{\text{crit}}} \frac{1}{1 - \frac{1}{3} \frac{r_g \rho_g L_v \Delta T}{\gamma T_l}} \quad (36)$$

$$R_{f\max} = \frac{(R_{f\min})^{\frac{1}{3}} R_0^{\frac{2}{3}}}{(2)^{\frac{2}{9}}} \quad (37)$$

Et la distribution :

$$R_f(t) = R_{f\min} \frac{R_0^2}{t^2} \quad (38)$$

3.5.7 Caractérisation des gouttes secondaires

On a obtenu que, lors de l'éclatement d'une goutte de rayon avant éclatement R_0 donné, on produit une distribution continue de gouttes secondaires en fonction du paramètre t , entre deux rayons extrêmes. Dans la gestion des calculs, on décrit la distribution des gouttes par un nombre de classes de taille fixe, initialement entre 20 et 50. Chaque classe de taille est identifiée dans les calculs à une goutte représentative, mais en réalité contient un très grand nombre de gouttes identiques. Elle porte une masse liquide égale à $\delta m_{\text{liq}}(i)$, i étant le numéro de la classe. Si, au cours du calcul, on connaît toutes les valeurs des $\delta m_{\text{liq}}(i)$, on peut alors construire la courbe de masse cumulée des fragments liquides. La courbe de masse cumulée est définie comme suit : Si r_i est le plus grand rayon de la classe i ,

$$M_c(r_i) = \frac{\sum_{j < i} \delta m_{\text{liq}}(j)}{\sum \delta m_{\text{liq}}(j)} \quad (39)$$

C'est le rapport à la masse totale transportée de la masse transportée par les gouttes de rayon inférieur ou égal à r_i . Les résultats expérimentaux, en ce qui concerne la granulométrie, sont pratiquement toujours présentés sous forme de masse cumulée, qui est en général présentée en %.

De façon à rendre compte au mieux de la distribution (26), pour une goutte de la classe i avant éclatement, tout en conservant un nombre raisonnable de classes de taille, on procède de la façon suivante :

On cherche le rayon médian en masse (R_{50}) de la distribution (26). On définit deux classes de tailles bornées respectivement par $[R_{fmin}, R_{50}]$ et $[R_{50}, R_{fmax}]$. Les rayons représentatifs de chacune de ces deux classes sont choisis comme étant leurs rayons médians en masse R_1 et R_2 . Elles portent chacune la masse $\frac{\delta m_{liq}(i)}{2}$. On peut ensuite découper en quatre parties $[R_{fmin}, R_1]$, $[R_1, R_{50}]$, $[R_{50}, R_2]$ et $[R_2, R_{fmax}]$ portant chacune la masse $\frac{\delta m_{liq}(i)}{4}$.

Pour chaque éclatement dans une classe de taille, celle-ci est remplacée par 2, 4, 8, 16 nouvelles classes. On obtient ainsi une construction de plus en plus lissée de la courbe de masse cumulée tout en conservant un nombre de classes de taille raisonnable. Pour chaque nouvelle classe, on poursuit le calcul de l'évaporation et du refroidissement jusqu'à la mise à l'équilibre avec l'environnement du secondaire.

⇒ Calcul pratique du rayon médian en masse

Pour établir la fonction de distribution, on écrit que le nombre de fragments produits dans la zone t et $t + dt$ est proportionnel à $4\pi t^2 dt$. Cette hypothèse n'est pas justifiée pour les plus gros fragments au centre. Cependant, comme il ne s'agit que de définir une répartition à peu près représentative, et que les petits fragments portent une fraction importante de la masse totale, on peut s'en contenter. En utilisant la loi (26), on trouve la loi de distribution :

$$dn_f = C \frac{dR_f}{(R_f)^{\frac{7}{4}}} \quad (40)$$

Donc, en appliquant la définition :

$$\int_{R_{fmin}}^{R_{50}} R_f^3 dn_f = \frac{1}{2} \int_{R_{fmin}}^{R_{fmax}} R_f^3 dn_f \quad (41)$$

On obtient :

$$R_{50} = \left(\frac{R_{fmin}^{\frac{9}{4}} + R_{fmax}^{\frac{9}{4}}}{2} \right)^{\frac{4}{9}} \quad (42)$$

On aura ensuite :

$$R_1 = \left(\frac{R_{fmin}^{\frac{9}{4}} + R_{50}^{\frac{9}{4}}}{2} \right)^{\frac{4}{9}} \quad \text{et} \quad R_2 = \left(\frac{R_{50}^{\frac{9}{4}} + R_{fmax}^{\frac{9}{4}}}{2} \right)^{\frac{4}{9}} \quad (43)$$

$$R'_1 = \left(\frac{R_{fmin}^{\frac{9}{4}} + R_1^{\frac{9}{4}}}{2} \right)^{\frac{4}{9}} \quad \text{et ainsi de suite ...} \quad (44)$$

Les calculs sont répétitifs et très rapides. Pour le cas du profil de vitesse linéaire, en utilisant la loi (38), on trouve, avec la même hypothèse que précédemment, une distribution de la forme :

$$dn_f = C \frac{dR_f}{(R_f)^{\frac{5}{2}}} \quad (45)$$

Ce qui donne :

$$R_{50} = \left(\frac{R_{fmin}^{\frac{3}{2}} + R_{fmax}^{\frac{3}{2}}}{2} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (46)$$

⇒ Cas particuliers : rayon de fragments unique

Dans certaines applications, le rayon des germes au moment de l'éclatement est relativement élevé. Dans ces conditions, on obtient un résultat en désaccord avec le traitement précédent, qui suppose que le rayon des plus petits fragments est très inférieur au rayon des plus gros fragments. En fait, cette situation correspond à des conditions de très faibles surchauffes en fin de détente adiabatique. Dans ces conditions, on devrait, à la limite ne pas avoir de germes, donc pas d'éclatement de goutte. On trouve une continuité satisfaisante avec l'approche proposée précédemment en écrivant que la taille des fragments produits correspond à la limite $R_{fmin} = R_{fmax}$. Avec ce critère, on trouve une taille de fragments unique qui est,

Pour le profil de vitesse quadratique :

$$\boxed{R_f = \frac{R_0}{2^{\frac{4}{3}}}} \quad (47)$$

Pour le profil de vitesse linéaire :

$$\boxed{R_f = \frac{R_0}{2^{\frac{2}{3}}}} \quad (48)$$

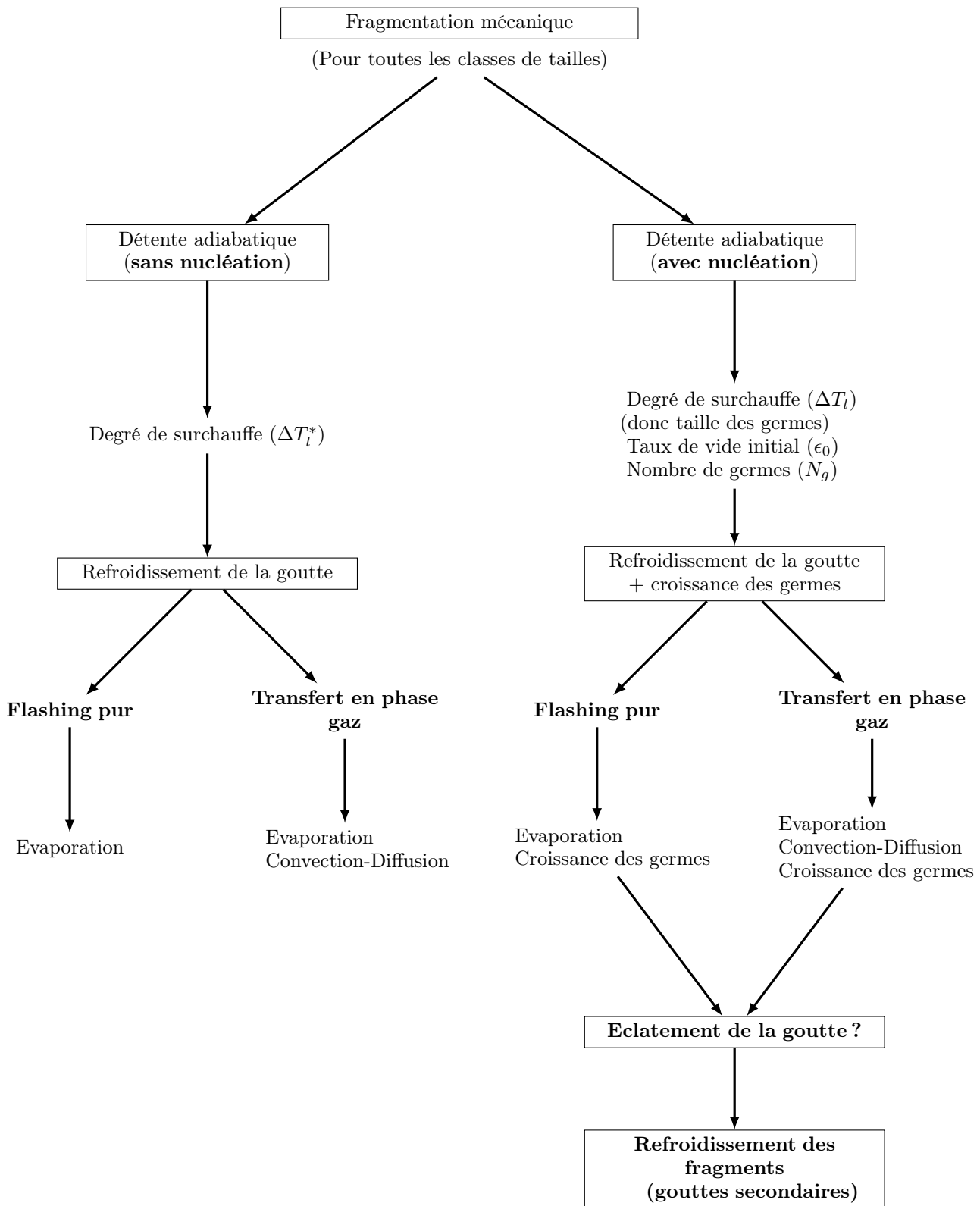
On obtient ainsi un très bon raccordement avec les situations de surchauffe très faibles ou nulles car même si on a éclatement, on produit de gros fragments. En pratique, pour des raisons de traitement numérique, on introduit une petite dispersion arbitraire autour de ces valeurs. De ce qui précède, on voit que le critère de passage à une taille de fragment unique est respectivement :

$$\frac{r_g}{R_0} \geq \frac{1}{2^{\frac{1}{3}} \frac{W_{crit}}{28} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}}} \quad (49)$$

est typiquement $\sim \frac{1}{16}$ pour le profil quadratique et pour le profil linéaire :

$$\frac{r_g}{R_0} \geq \frac{1}{2^{\frac{1}{3}} \frac{W_{crit}}{20} \frac{\rho_l}{\rho_{g\infty}}} \sim \frac{1}{22} \quad (50)$$

3.6 Résumé des équations et principales hypothèses



- Flashing pur
- Transfert en phase gaz

Principales hypothèses du modèle :

- On passe à la pression ambiante par une détente adiabatique (détermination du degré de surchauffe ΔT_l^* (sans germes) ou ΔT_l (avec germes)),
- Les germes sont créés à l'équilibre hydrostatique ($r^* = f(\Delta T)$) à la température du liquide et à la pression de saturation correspondante ($T_g \approx T_l$ et $P_g = P_{sat}(T_l)$),
- Un taux de vide initial est fixé (paramètre). Le nombre de germes découle de cette valeur et de l'équation de bilan d'énergie,
- Pendant la phase d'évaporation et de croissance des germes, la température et la pression des germes sont respectivement $T_{sat}(P_l)$ et P_l . Ceci permet de ne pas avoir à introduire une quatrième équation,
- La vitesse de croissance des germes est donnée par une relation qui prend en compte à la fois le régime diffusif et l'aspect inertiel,
- Le coefficient de transfert goutte-atmosphère est déduit par une moyenne sur le temps de transit des gouttes dans le jet,
- Le critère de rupture est basé sur le taux de vide dans la goutte ($\epsilon > \epsilon_{crit}$),
- La distribution des fragments produits par l'éclatement d'une goutte est donnée par un modèle théorique qui repose sur un nombre de Weber critique et une hypothèse sur le profil de vitesse dans la phase liquide au moment de l'éclatement.

4 Caractérisation du modèle : exemples de calculs

L'objectif de ce chapitre est de passer en revue la phénoménologie pour les différentes situations que l'on est susceptible de rencontrer soit dans le calcul de séquences, soit dans les tests de validation, en relation avec la description du modèle qui a été présentée dans les chapitres précédents. Comme mentionné plus haut, la première étape du calcul consiste à déterminer une distribution initiale de gouttes due à la fragmentation mécanique, cette distribution étant donnée par une corrélation empirique. En pratique, on décrit cette distribution par un nombre de classes de taille fixe ($N_c = 50$) distribuées entre un rayon minimum et un rayon maximum ($10^{-8} \rightarrow 10^{-3}$ m). Dans ce qui suit, on s'intéresse à la phénoménologie de la fragmentation thermique (dépressurisation des gouttes et production de germes, échanges de chaleur et de masse goutte-atmosphère, éclatement et production de fragments). Avant d'étudier le comportement global de la distribution, on suit l'évolution d'une goutte isolée de taille initiale fixée.

Dans un premier temps, une goutte est amenée à la pression du circuit secondaire par une détente adiabatique éventuellement accompagnée de la production de germes de vapeur (section 3.2, détente adiabatique et nucléation). Le résultat est un état caractérisé par un degré de surchauffe et une population de germes.

Lorsque les gouttes sont à pression du secondaire, les échanges thermiques avec l'extérieur (section 2.1, évaporation de surface, convection) et la croissance des germes (section 2.3, régime diffusif) contrôlent l'évolution des gouttes vers l'équilibre thermodynamique du circuit secondaire (section 3.4 modèle d'évaporation avec croissance des bulles). Au cours de cette évolution, l'état de la goutte peut conduire à un éclatement (section 3.5, critère de rupture).

Nous proposons dans ce chapitre de suivre, pour des cas représentatifs des différentes expériences présentées dans le chapitre suivant (chapitre 5 : Validation : comparaisons modèle/mesures), l'évolution au cours du temps du rayon et de la température d'une goutte ainsi que le taux de croissance d'un germe. Nous pouvons également étudier l'impact de la croissance des germes sur la cinétique de mise à l'équilibre d'une goutte et sur la taille des fragments produits lors de la rupture.

4.1 Détente adiabatique d'une goutte liquide

La détermination de la température de surchauffe de la goutte (T_l) en fin de détente se décompose en plusieurs étapes qui sont illustrées dans les tableaux suivants.

Dans le cas où le fluide est initialement sous-refroidi (essais INERIS [1]), un premier bilan thermodynamique permet de déterminer un état de référence sur la courbe de saturation côté liquide (T_{ref} et P_{ref}). Un second bilan nous permet ensuite de calculer la température de la goutte dans un état métastable sans germes (T_l^*) (section 3.2.5 principe du calcul). Une transformation à pression constante accompagnée de la production de germes conduit à l'état métastable en fin de détente (T_l). Dans le cas où le fluide est directement à la saturation (essais NRC [2]), la première étape (recherche de l'état de référence) n'a pas lieu d'être, et le calcul de la température de surchauffe sans germe s'effectue directement à partir de la courbe de saturation.

Les tableaux suivants regroupent les résultats obtenus pour le calcul des températures de surchauffe sans germes (T_l^*) et en présence de germes (T_l) pour différentes conditions thermodynamiques représentatives de certains essais INERIS [1] et NRC [2]. Les essais INERIS concernent le développement d'un jet diphasique à pression atmosphérique. En ce qui concerne les essais NRC, ils sont représentatifs d'un accident type RTGV. On a sélectionné parmi tous les essais

ceux qui englobent la plus large gamme de situations. Figurent également dans ces tableaux le degré de surchauffe obtenu sans germes (ΔT_l^*) et avec germes (ΔT_l). Pour la gamme de tailles de gouttes rencontrées (entre $1 \mu m$ et $500 \mu m$), ces résultats sont indépendants de la taille initiale de la goutte. Ceci est dû au fait que, d'une part l'effet de courbure de la goutte est négligeable pour cette gamme de taille et d'autre part, de par la modélisation choisie, on considère une taille unique de germes avec une répartition homogène des germes.

		P_{l0} (bar)	T_{l0} (°C)	P_2 (bar)	T_{ref} (°C)	T_l^* (°C)	ΔT_l^* (°C)	T_l (°C)	ΔT_l (°C)
INERIS	1	10.3	80	1.01	80	80	$0 <$	80	$0 <$
	2	10.4	104	1.01	103.85	103.85	3.85	103.80	3.80
	3	8.2	163.4	1.01	162.76	162	62.76	161.5	61.5

TABLE 2 – Synthèse des résultats du calcul du degré de surchauffe en fin de détente adiabatique pour trois cas INERIS [1]

		P_{l0} (bar)	T_{l0} (°C)	P_2 (bar)	T_{ref} (°C)	T_l^* (°C)	ΔT_l^* (°C)	T_l (°C)	ΔT_l (°C)
NRC	1	82.7	296.7	62.1		295.2	17.35	292.7	14.85
	2	96.6	308	62.1		305.3	27.45	303	25.15
	3	82.7	296.7	1.01		285.6	185.6	283.8	183.8

TABLE 3 – Synthèse des résultats du calcul du degré de surchauffe en fin de détente adiabatique pour trois cas NRC [2]

Le premier cas INERIS est un cas particulier pour lequel le liquide primaire est à une température inférieure à $T_{sat}(P_\infty)$. Dans les cas NRC, on ne tient pas compte du sous-refroidissement initial car cette donnée n'est pas fournie dans le rapport expérimental [2].

Une fois la température de surchauffe connue, il est possible de calculer le rayon des germes (section 3.2.1). Le nombre de germes présent dans une goutte de rayon initial r_{G0} est obtenu en fixant un taux de vide initial ($\epsilon_0 = 10\%$ par exemple). Le tableau suivant donne, pour des essais représentatifs de cas extrêmes de surchauffe, le degré de surchauffe, la taille ainsi que le nombre de germes présents dans deux gouttes de rayons initiaux différents :

		N_{germes}			
		ΔT_l (°C)	r_{germe} (m)	$r_{G0} = 10$ (μm)	$r_{G0} = 500$ (μm)
INERIS	2	3.8	$7.8 \cdot 10^{-6}$	0	$2.6 \cdot 10^4$
	3	61.5	$9.4 \cdot 10^{-8}$	$1.2 \cdot 10^5$	$1.5 \cdot 10^{10}$
NRC	1	15	$2.0 \cdot 10^{-8}$	$1.2 \cdot 10^7$	$1.5 \cdot 10^{12}$
	3	184	$2.0 \cdot 10^{-9}$	$1.2 \cdot 10^{10}$	$1.45 \cdot 10^{15}$

TABLE 4 – Synthèse des résultats de calculs du rayon et du nombre de germes pour deux tailles de gouttes (deux cas INERIS et deux cas NRC)

En général, on observe une très grande densité de germes. Le deuxième cas INERIS est un cas particulier car la surchauffe obtenue est très faible et donc, le nombre de germes par unité de volume étant très petit, il n'y a pas de germes en dessous d'une certaine taille initiale de gouttes.

De manière générale, nous observons que la diminution de la température suite à la détente en phase liquide (calcul de T_l^*) est toujours très faible. Nous remarquons également que le fait de

créer des germes de vapeur ne modifie que très légèrement la température de la goutte. En effet, l'enthalpie mise en jeu pour former les germes à un taux de vide de 10% est très faible devant l'enthalpie liquide de la goutte, et l'énergie de surface des germes est pour ce cas relativement négligeable.

Dans le premier cas de l'INERIS, l'eau liquide s'échappant par la brèche ne se trouve pas dans un état de surchauffe. Nous n'avons donc pas de formation de germes de vapeur. Ce cas est cependant très important car il nous permettra de valider la corrélation utilisée pour caractériser la fragmentation mécanique.

Le cas numéro trois de la NRC est également un cas très particulier. En effet, la différence de pression primaire-secondaire très élevée conduit à un degré de surchauffe très important (pour les raisons expliquées précédemment) et donc à une production de germes très petits avec une densité numérique très élevée.

Pour les cas typiques des conditions représentatives d'une séquence RTGV (essais NRC 1 et 2), degré de surchauffe compris entre 15 et 40 °C, le calcul conduit à des germes initiaux d'environ 20 nanomètres.

La détente d'une goutte liquide, même pour de très fortes variations de pression, peut être assimilée à une détente isotherme ($T_l \approx T_{l0}$). Un degré de surchauffe élevé conduit à la formation d'un très grand nombre de petits germes.

4.2 Evaporation d'une goutte sans germe

Cette section a pour objectif d'étudier l'évaporation de surface et le refroidissement d'une goutte surchauffée (taux de flashing et cinétique de mise à l'équilibre) sans germe. Cette situation se produit pour des gouttes qui ne contiennent pas de germe à la fin de la détente, et pour les fragments, issus de l'éclatement de la goutte, pour lesquels on considère qu'il n'y a plus de germe. C'est une des hypothèses du modèle. Certains auteurs comme Razzaghi [62], considèrent la présence de germes après éclatement, ce qui conduit à de nouvelles fragmentations. On considèrera deux types de conditions aux limites : le cas particulier du flashing pur ($x_{v\infty} = 1$) et le cas général de transfert en phase gaz ($x_{v\infty} < 1$).

⇒ Cas particulier du flashing pur ($x_{v\infty} = 1$)

Le premier test consiste à vérifier que dans le cas du flashing pur, le taux de flashing massique calculé par le système d'équations couplées présenté dans la section 3.4 est bien conforme au taux de flashing massique (**taux de flashing isenthalpique**) qui est l'hypothèse de base du code de thermohydraulique CESAR. Ce taux de flashing est obtenu par un bilan enthalpique entre l'état initial (T_{l0} et $P_{sat}(T_{l0})$) et l'état final qui correspond à l'état d'équilibre thermodynamique du circuit secondaire (P_2 et $T_{sat}(P_2)$) (formule (9) de la section 3.3.1). En effet, nous avons montré dans cette section que, avec les hypothèses du flashing pur, on retrouve bien en théorie le taux de flashing isenthalpique à condition de considérer l'enthalpie à l'équilibre $h_l(T_l, P_{sat}(T_l))$ pour un liquide dans un état thermodynamique stable. Prenons comme exemple un cas représentatif des conditions thermodynamiques d'un accident de RTGV, c'est-à-dire un essai de la NRC (essai n°2). Le tableau 5 regroupe les résultats obtenus :

Conditions thermodynamiques	τ_{flashing} (CESAR)	τ_{flashing} (calculé)	
		$r_{G0} = 1.10^{-8}$	$r_{G0} = 1.10^{-3}$
$T_{\text{liq}} = 310 \text{ °C} / P_{\text{sat}}(T_{\text{liq}}) = 96 \text{ bar}$ $P_2 = 62.1 \text{ bar} / T_{\text{sat}}(P_2) = 278 \text{ °C}$	10.6 %	10.6 %	10.6 %

TABLE 5 – Comparaison entre le taux de flashing de CESAR et le taux de flashing calculé sans germe

Ces résultats indiquent que les équations développées dans le cadre de l'évaporation d'une goutte en condition de flashing pur sans germe conduisent bien au taux de flashing isenthalpique obtenu par CESAR. Nous observons également que la taille de la goutte initiale n'intervient pas dans la fraction de liquide vaporisée.

Regardons à présent l'influence du coefficient de transfert en phase liquide, Nu_{liq} . Les graphiques suivants (figure 36) font apparaître l'évolution du rayon et de la température d'une goutte à $T_{\text{liq}} = 296 \text{ °C}$ avec un rayon initial $r_{G0} = 100 \text{ }\mu\text{m}$ pour les deux valeurs extrêmes du nombre de Nusselt liquide ($Nu_{\text{liq}}^{\text{min}} = 6.58$ et $Nu_{\text{liq}}^{\text{max}} = 17.9$) :

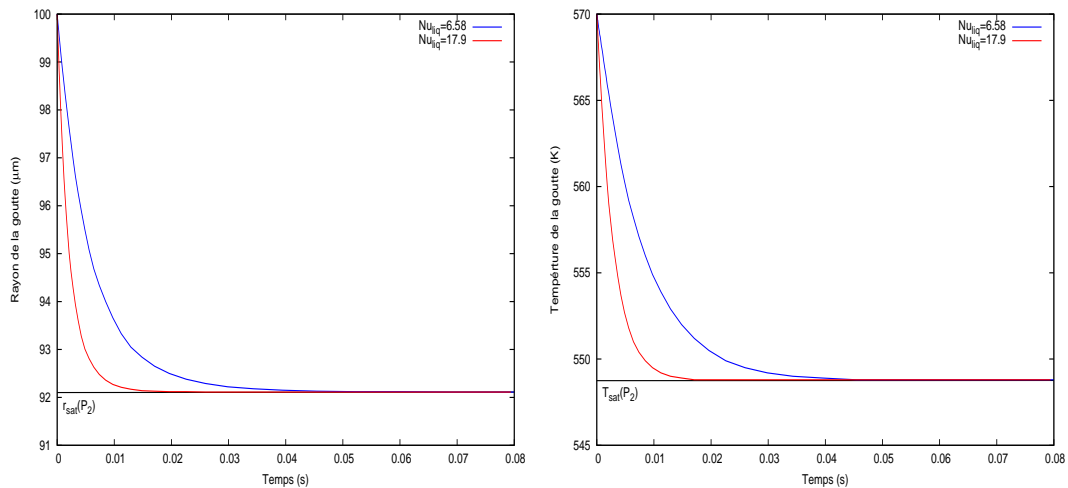


FIGURE 36 – Evolution du rayon et de la température d'une goutte en évaporation au cours du temps pour deux nombres de Nusselt ($Nu_{\text{liq}} = 6.58$ et $Nu_{\text{liq}} = 17.9$)

Nous remarquons que le rayon d'équilibre noté $r_{\text{sat}}(P_2)$ sur le premier graphique, rayon de la goutte quand elle a atteint l'équilibre thermodynamique, est indépendant du nombre de Nusselt liquide. Ce paramètre ne modifie donc pas le taux de flashing. En revanche, ces graphiques nous indiquent que ce paramètre joue un rôle sur la cinétique de mise à l'équilibre de la goutte. En effet, une goutte en mouvement ($Nu_{\text{liq}} > 6.58$) atteint plus vite la température d'équilibre du circuit secondaire. Ceci confirme ce qui est mentionné dans la section 3.1.1, à savoir que, en conditions de flashing pur, le coefficient de transfert influence la cinétique de refroidissement mais ne joue aucun rôle sur l'état final de la goutte.

Dans le cas où nous prenons en compte la détente adiabatique initiale, la température de surchauffe de la goutte en fin de détente T_l^* est légèrement plus faible que la température initiale de la goutte T_{l0} . Par conséquent, on trouve un taux de flashing un peu plus faible.

⇒ **Cas du transfert en phase gaz ($x_{v\infty} < 1$) et continuité du modèle**

	Conditions thermodynamiques	Taux de flashing
Flashing isenthalpique (uniquement)	$T_{\text{goutte}} = T_{\text{liq0}} = 310 \text{ }^\circ\text{C}$	10.6 %
Détente adiabatique initiale et flashing isenthalpique	$T_{\text{goutte}} = T_l^* = 303 \text{ }^\circ\text{C}$	8.7 %

TABLE 6 – Comparaison entre le taux de flashing calculé à T_{liq0} et à T_l en fin de détente adiabatique

Dans tous les cas, en pratique, la fraction molaire de vapeur du milieu ambiant est inférieure à 1. Par conséquent, les équations du transfert de chaleur et de masse sont différentes de celles du cas particulier du flashing pur. On se trouve alors dans le cas où il faut prendre en compte les transferts de chaleur et de masse en phase gaz. La figure 37 présente l'évolution du taux de flashing calculé pour des conditions aux limites fixées, sauf en ce qui concerne la fraction molaire de vapeur dans le secondaire (paramètre). On constate que dans l'approximation du flashing pur, le taux de flashing est évidemment indépendant de la fraction molaire de vapeur.

La courbe noire correspond au modèle complet de transfert en phase gaz développé dans la section 3.1.4, avec la procédure de basculement en flashing pur pour $x_{v\infty} > 0.95$. La courbe en rouge est une extension du même calcul quand le critère de basculement est poussé à 0.99. On a choisi avec prudence un critère de basculement à 0.95. Cependant, on observe que le modèle permet de s'approcher d'une fraction molaire de vapeur très proche de 1 sans entraîner de divergence.

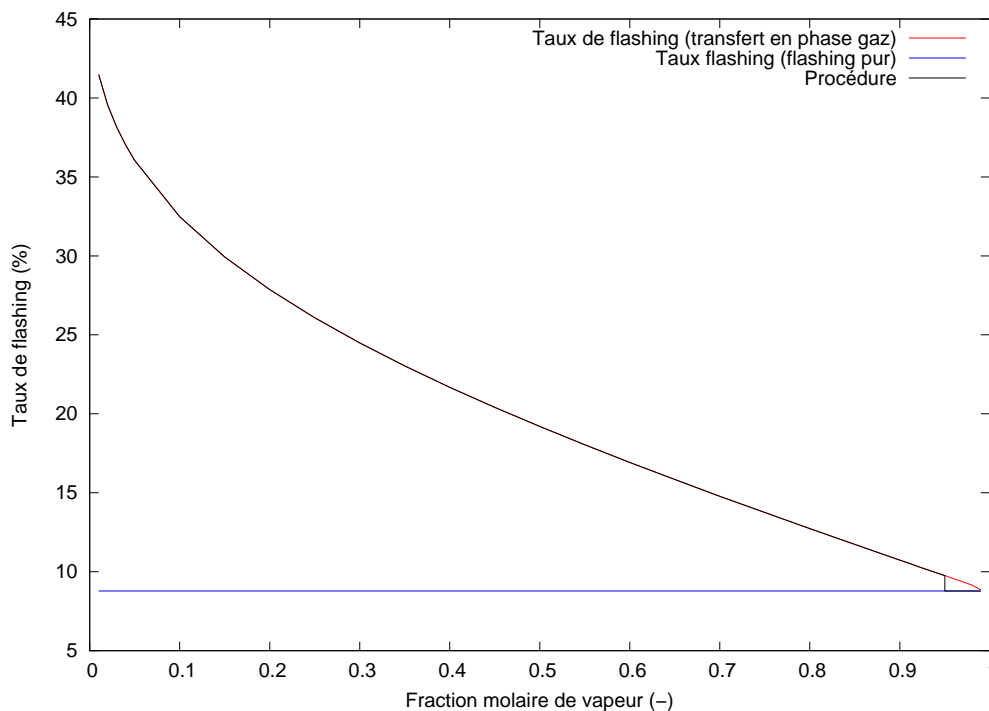


FIGURE 37 – Evolution du taux de flashing obtenu avec le modèle de transfert en phase gaz pour différentes fractions molaires

Ce graphique montre que plus la fraction molaire de vapeur dans le volume aval est faible, et plus le taux de flashing massique calculé est grand. Dans le cas du transfert en phase gaz, la valeur des coefficients d'échange modifie légèrement la masse vaporisée, de même que la taille

initiale de la goutte. Ceci justifie l'étude approfondie des coefficients de transfert présentée dans la section 3.1.

Dans les conditions de flashing pur, le taux de flashing calculé est identique au taux de flashing de CESAR (flashing isenthalpique). De plus, les coefficients de transfert ne modifient pas la fraction vaporisée. Ils modifient la cinétique de mise à l'équilibre des gouttes. La température en fin de détente adiabatique est légèrement plus faible que la température initiale ce qui conduit à un taux de flashing légèrement plus faible que le taux de flashing isenthalpique. Les masses vaporisées dans le cas du transfert en phase gaz sont plus importantes et la taille de la goutte ainsi que les coefficients d'échange modifient faiblement la masse vaporisée.

4.3 Evaporation et fragmentation d'une goutte en présence de germes

On considère à présent le cas où la chute brutale de pression conduit à la formation de germes de vapeur dans la goutte. C'est ce qui se produit, d'après le modèle, pour la majorité des configurations expérimentales étudiées. Nous montrerons que la grande densité de germes produits fait que l'évolution de la température de la goutte est contrôlée principalement par la présence de ces germes (section 3.3.4). Afin d'étudier séparément la croissance des germes prédite par l'équation différentielle développée dans la section 3.3.4, qui associe la vitesse de croissance au degré de surchauffe du liquide, on étudie dans un premier temps la croissance d'un germe dans un bain liquide surchauffé. Ainsi, on fixe la température du bain liquide.

⇒ Croissance d'un germe dans un bain liquide surchauffé

Le figure 38 présente l'évolution du rayon de différents germes de vapeur pour différents degrés de surchauffe.

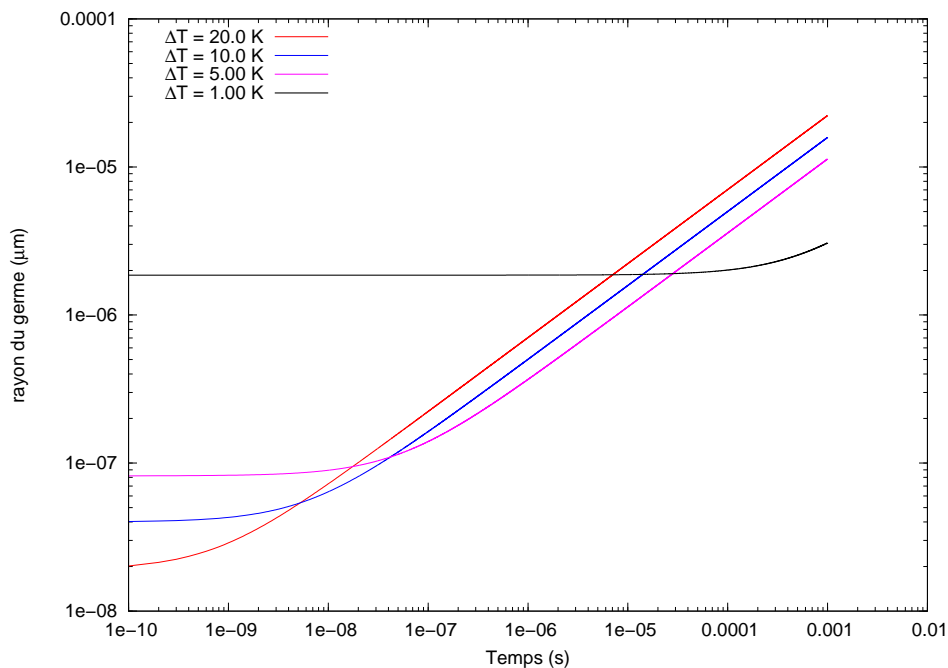


FIGURE 38 – Evolution du rayon d'un germe en fonction du degré de surchauffe

On part de rayons de germes initiaux en adéquation avec les valeurs présentées dans la section 4.1 de ce chapitre. Le cas $\Delta T = 1$ K (courbe noire) montre qu'il existe un seuil de surchauffe en-dessous duquel le mécanisme de croissance des germes est quasi inexistant. Pour des degrés de surchauffe élevés, on part de rayons de germes initiaux très faibles, mais leur croissance est beaucoup plus rapide. En réalité, la température du liquide décroît rapidement en même temps que les germes croissent. C'est la combinaison de ces deux mécanismes qui pilote l'évolution du taux de vide et par conséquent la rupture éventuelle de la goutte.

⇒ Evaporation, croissance des germes et rupture d'une goutte dans un cas représentatif des essais NRC

Dans ce cas, le refroidissement de la goutte est piloté à la fois par l'évaporation de surface et par la croissance des germes. Le premier cas étudié est représentatif des conditions thermodynamiques d'une séquence accidentelle type RTGV. Pour ce calcul, nous avons pris une fraction molaire de vapeur égale à 1 (conditions de flashing pur). La température de la goutte est $T_{liq} = T_l = 566$ K, la pression dans le secondaire est $P_2 = 62$ bar et le rayon initial de la goutte est $r_{G0} = 10^{-3}$ m. La température d'équilibre du circuit secondaire est $T_{sat}(P_2) = 551$ K (vapeur pure). Les graphiques suivants (figure 39) donnent l'évolution du rayon d'un germe, du taux de vide et de la température du liquide jusqu'à la rupture de la goutte et, à titre de comparaison, l'évolution de la température de la phase liquide de cette même goutte si l'on ne prend pas en compte les germes.

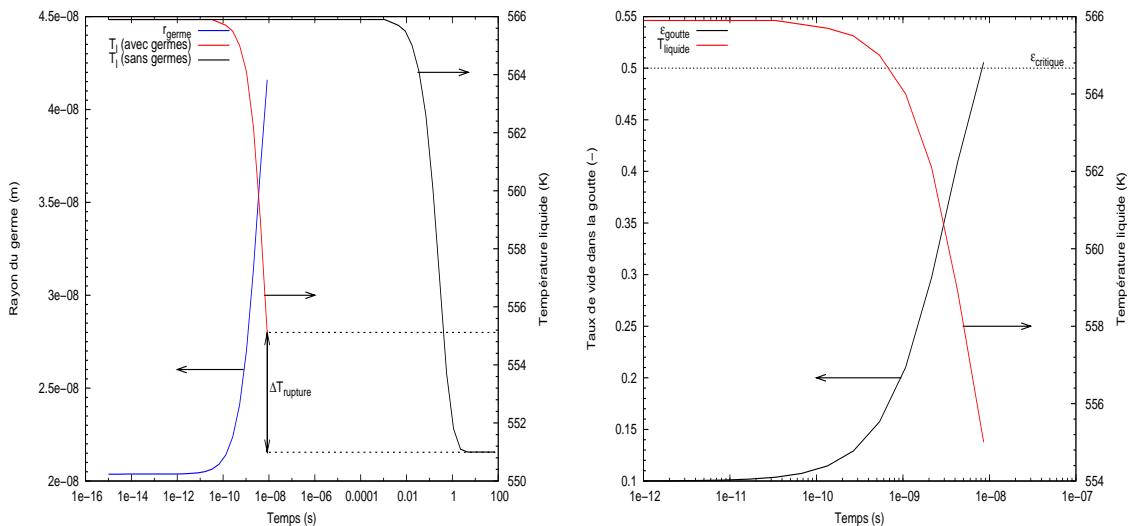


FIGURE 39 – Evolution du rayon d'un germe, du taux de vide dans la goutte et de la température de la phase liquide

Le temps caractéristique de mise à l'équilibre de la goutte sans germe est très grand devant le temps caractéristique de croissance des germes de vapeur. Dans ces conditions, le nombre de germes ($N_g \approx 10^{13}$) et la surface d'échange développée sont très grands.

En fait, l'explosion de la goutte est quasi immédiate. De plus, nous remarquons que le degré de surchauffe au moment de la rupture de la goutte, c'est-à-dire lorsque le taux de vide dans la goutte dépasse le taux de vide critique, $\varepsilon_{crit} = 0.5$, est relativement faible $\Delta T \approx 4$ K.

Le calcul de la taille des fragments produits lors de la rupture de la goutte fait intervenir deux paramètres clés : le degré de surchauffe et la taille de la goutte au moment de la rupture. Le rayon inférieur R_{fmin} et supérieur R_{fmax} de la distribution des fragments (section 3.5) et la forme de cette distribution prédite par les deux profils de vitesse proposés sont regroupés dans le tableau 7, ainsi que d'autres rayons caractéristiques.

$\Delta T_{rup} = 4 \text{ K}$	R_{fmin}	R'_1	R'_2	R_{50}	R'_3	R'_4	R_{fmax}
$v_{liq} = At^2$	$0.70 \text{ } \mu m$	$1.0 \text{ } \mu m$	$4.0 \text{ } \mu m$	$163.0 \text{ } \mu m$	$175.0 \text{ } \mu m$	$204.0 \text{ } \mu m$	$222.0 \text{ } \mu m$
$v_{liq} = At$	$0.95 \text{ } \mu m$	$1.4 \text{ } \mu m$	$5.1 \text{ } \mu m$	$59.7 \text{ } \mu m$	$66.1 \text{ } \mu m$	$83.2 \text{ } \mu m$	$95.0 \text{ } \mu m$

TABLE 7 – Taille des fragments produits pour un degré de surchauffe $\Delta T = 4 \text{ K}$ pour les deux profils de vitesse

En général, le second profil de vitesse conduit à un rayon médian en masse plus petit.

⇒ Influence de la fraction molaire de vapeur à l'infini

Dans certaines conditions, l'équilibre de la goutte avec son environnement est atteint avant que le taux de vide dans la goutte ne dépasse le taux de vide critique. Reprenons le cas décrit précédemment, en supposant une température en fin de détente plus faible, $T_{liq} = 561 \text{ K}$ ce qui nous conduit à un degré de surchauffe $\Delta T_l = 10 \text{ K}$. (cas précédent $\Delta T_l = 15 \text{ K}$). Les conditions thermodynamiques du circuit secondaire sont identiques ($x_{v\infty} = 1$). Le graphique suivant donne l'évolution du rayon d'un germe et du rayon de la goutte en fonction du temps :

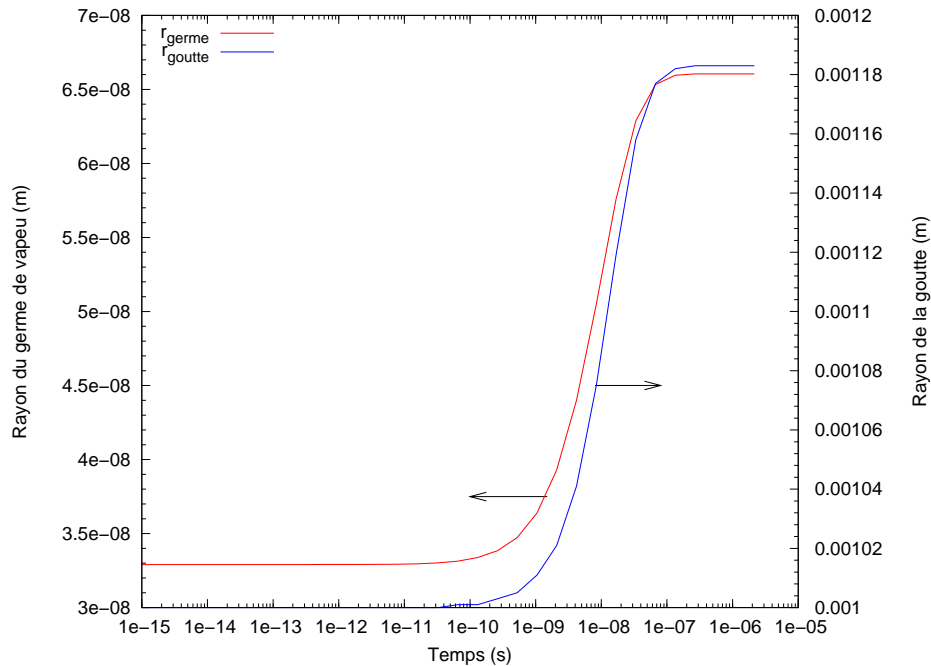


FIGURE 40 – Evolution du rayon d'un germe de vapeur et de la goutte au cours du temps

Nous observons une augmentation significative du rayon de la goutte au cours du temps, ce qui est dû au gonflement. On voit clairement que c'est la croissance des germes qui pilote ce phénomène. On a donc au final une augmentation de la taille de la goutte sans rupture. Le taux de vide atteint est de 48%. Ceci montre clairement l'insuffisance actuelle de ce type de critère de rupture basé sur le taux de vide. Il suffirait en effet d'un faible changement dans les

conditions aux limites pour franchir le seuil de rupture, auquel cas, au lieu d'un gonflement, on aurait un éclatement de la goutte.

Regardons à présent l'influence de la fraction molaire de vapeur dans le secondaire. Nous prenons comme fraction molaire $x_{v\infty} = 0.8$ (figure 41).

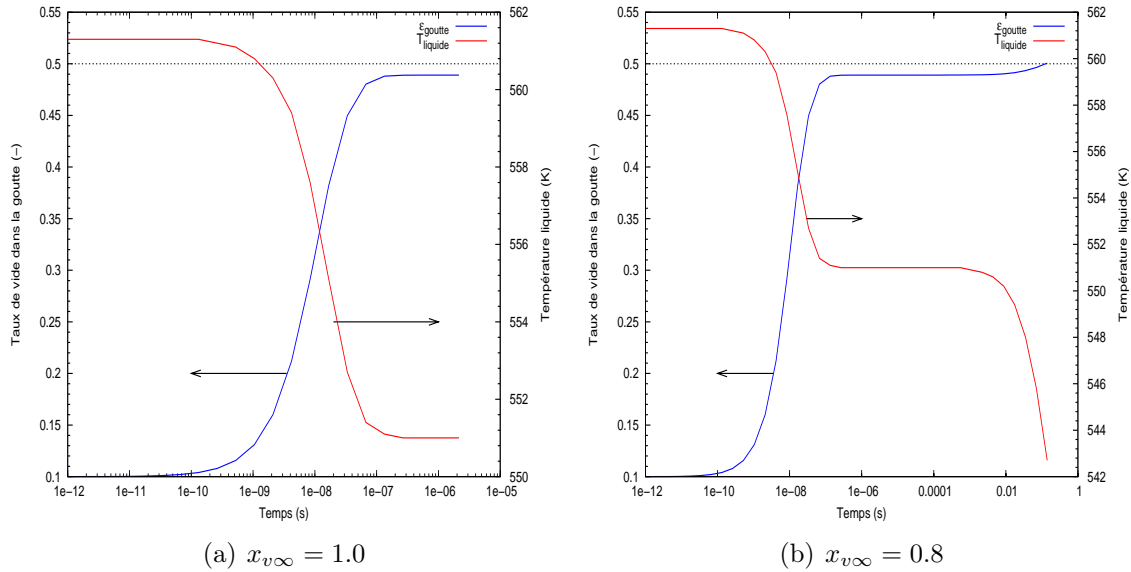


FIGURE 41 – Evolution du taux de vide et de la température de la phase liquide en fonction du temps pour deux fractions molaires

Nous remarquons que dans ces conditions, c'est l'évaporation de surface qui permet de franchir le seuil de rupture. Le changement dans la cinétique de refroidissement est clairement lié à l'arrêt de la croissance des germes (surchauffe nulle). Le degré de surchauffe de la goutte au moment de la rupture est légèrement plus faible $\Delta T_{\text{rupture}} \approx 3$ K.

⇒ **Cas où le degré de surchauffe initial est faible : cas particulier n°2 de l'INERIS**

Prenons à présent le cas où nous avons un degré de surchauffe initial très faible. Dans ces conditions, le rayon des germes présents dans la goutte est élevé. Typiquement, nous avons vu dans la première section de ce chapitre que pour le cas n°2 de l'INERIS, le degré de surchauffe en fin de détente est $\Delta T_l = 3,8$ °C, ce qui conduit à des germes de rayon initial $r_{\text{germe}} = 7,0 \cdot 10^{-6}$. La fraction molaire de vapeur dans le secondaire est $x_{v\infty} \approx 10^{-2}$. Le degré de surchauffe au moment de la rupture est très proche du degré de surchauffe initial $\Delta T_{\text{rupture}} = 3.4$ K. Dans ces conditions, nous obtenons donc une population monodispersée de gros fragments. Les résultats obtenus pour ce cas sont donnés dans le tableau suivant :

	R_{50}	Nombre de fragments
$v_{\text{liq}} = At^2$	$496 \mu\text{m}$	16
$v_{\text{liq}} = At$	$788 \mu\text{m}$	4

⇒ Taux de flashing lié à la rupture

Le débit volumique pour une classe de taille donnée est :

$$\dot{V}_{goutte} = \frac{\dot{m}_{liq}}{\rho_{liq}} + \frac{\dot{m}_{gaz}}{\rho_{gaz}} \quad (1)$$

où \dot{m}_{liq} et \dot{m}_{gaz} sont respectivement le débit massique de liquide et de gaz. Nous pouvons à l'aide du taux de vide dans la goutte relier ces deux débits par la relation :

$$\frac{\dot{m}_{gaz}}{\rho_{gaz}} = \frac{\epsilon}{1 - \epsilon} \frac{\dot{m}_{liq}}{\rho_{liq}} \quad (2)$$

Au moment de la rupture, $\epsilon_{goutte} = \epsilon_{crit} = 0.5$. Nous arrivons donc à l'expression :

$$\dot{m}_{gaz} = \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \dot{m}_{liq} \quad (3)$$

En repartant de la définition du taux de flashing massique, nous pouvons écrire le taux de flashing lié à la rupture sous la forme :

$$\tau_{rupture} = \frac{\dot{m}_{gaz}}{\dot{m}_{liq0}} = \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \frac{\dot{m}_{liq}}{\dot{m}_{liq0}} \quad (4)$$

où \dot{m}_{liq0} est le débit liquide massique initial pour une classe de taille donnée. Dans tous les cas, le débit de liquide courant est toujours plus faible que le débit liquide initial (évaporation et croissance des germes). Par conséquent, la limite haute du taux de flashing lié à la rupture de la goutte est donnée par le rapport entre la masse volumique du liquide et la masse volumique de la vapeur, ce qui est typiquement 7 % dans les conditions type NRC.

Dans la plupart des cas, c'est la croissance des germes qui pilote l'abaissement de la température de la goutte et conduit à l'éclatement avec un degré de surchauffe relativement faible. Ceci montre qu'il est indispensable de ne pas dissocier le calcul de la croissance des germes de celui de la température de la goutte (équations couplées). Dans certains cas particuliers, un degré de surchauffe trop faible peut conduire à un gonflement de la goutte sans rupture, mais ce résultat est très sensible aux conditions aux limites dans le secondaire et au choix du seuil de rupture.

5 Validation : comparaisons modèle/mesures

Le manque de données expérimentales concernant les accidents de RTGV a conduit la NRC (Nuclear Regulatory Commission), l'équivalent américain de l'IRSN, à mener des essais sur la caractérisation granulométrique des gouttes ainsi que sur la fraction de vapeur générée lors de la rupture d'un tube dans les conditions opératoires d'un tel accident. Il existe également d'autres instituts de recherche comme l'INERIS, cité dans la section précédente, qui ont mené des essais sur la formation de jets liquides en condition de flashing à pression atmosphérique.

Les résultats obtenus par le modèle physique décrit précédemment vont donc, dans un premier temps, être confrontés aux résultats obtenus par la NRC [2] (granulométries et taux de flashing). Ensuite, les tailles de gouttes obtenues dans des conditions thermodynamiques très différentes seront confrontées aux résultats présentés par l'INERIS [1].

5.1 Les essais NRC

Afin d'étudier les rejets en iode lors d'un accident de RTGV, la NRC [2] a réalisé dans les années 1980, une expérience visant à étudier la formation d'un jet liquide en conditions de flashing. Cette expérience a pour objectif de mesurer le spectre de gouttes générées à proximité de la brèche et de déterminer la fraction de vapeur générée. Les conditions thermodynamiques appliquées lors des différents essais sont représentatives des conditions rencontrées lors d'un accident de RTGV.

⇒ Présentation du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est présenté sur la figure 42. Il peut se décrire schématiquement en trois zones bien distinctes.

Le circuit primaire est représenté par un réservoir de stockage de forme cylindrique avec un volume interne d'environ $0,11 \text{ m}^3$. Il est complètement rempli d'eau liquide maintenue à haute pression grâce à un pressuriseur ($P_{\max} = 165 \text{ bar}$). Un système de résistances électriques, situé en partie basse du réservoir, permet de chauffer le fluide ($T_{\max} = 594 \text{ K}$). **Le circuit secondaire** est également représenté par un réservoir de forme cylindrique avec un volume d'environ $0,48 \text{ m}^3$. Il est composé d'une phase liquide en partie basse et, au-dessus, d'une atmosphère gazeuse à saturation. La pression et la température sont maintenues constantes ($P_2 = 62 \text{ bar}$ et $T_{\text{sat}}(P_2) = 551 \text{ K}$) grâce à un système de pressuriseur, une vanne de décharge en partie haute et une résistance plongée dans la phase immergée. Le **tube GV** est représenté par une conduite de 3 m de long et de diamètre interne d'environ $0,57 \text{ cm}$ reliant les deux réservoirs. Un système de manchettes enroulé autour du tronçon se trouvant à l'extérieur des deux réservoirs permet de minimiser les pertes thermiques.

Deux géométries de brèche sont testées dans le cadre de cette expérience. Une brèche simulant une rupture guillotine (rupture doublement débattue) et une rupture type fente (figure 43). Pour les deux types de brèches, la surface est identique et égale à $0,39 \text{ cm}^2$.

Une fenêtre de mesure se trouvant à environ 30 cm de la brèche permet de caractériser la taille des gouttes générées. Une méthode optique ainsi qu'une méthode inertielle ont été testées. Les **méthodes optiques** sont basées sur les lois de diffusion et d'absorption de la lumière par les particules. Les gouttes générées à proximité de la brèche sont soumises à un rayonnement laser focalisé. La lumière diffusée par chaque goutte sous un certain angle (ici 60°) est mesurée par un

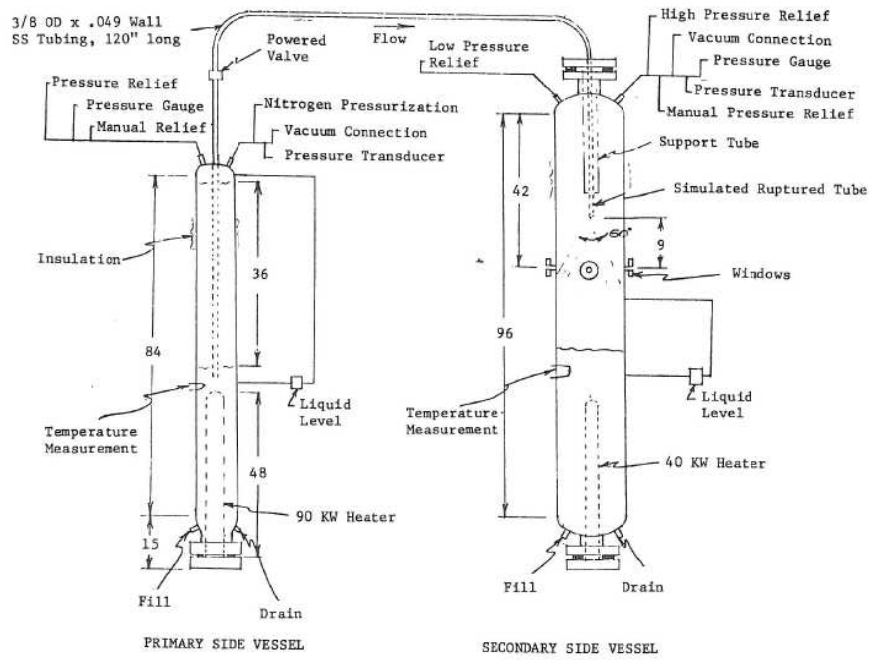


FIGURE 42 – Dispositif expérimental de la NRC

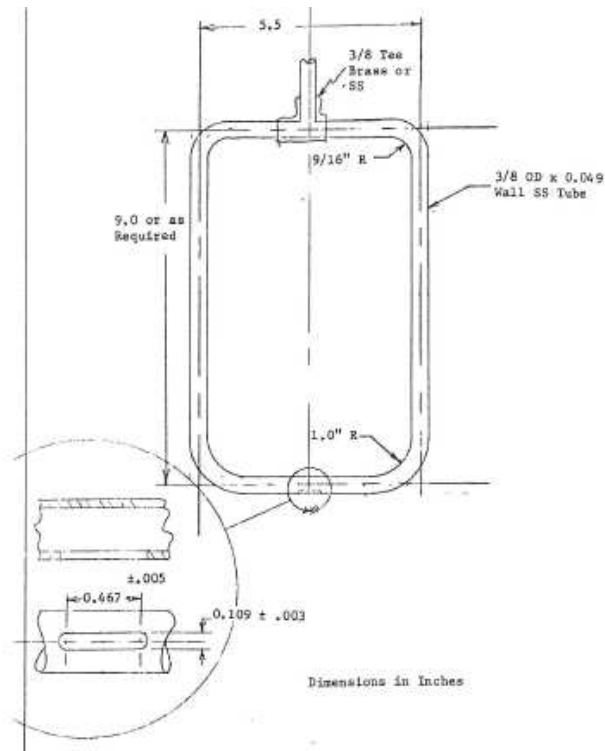


FIGURE 43 – Schéma du dispositif expérimental pour le type de brèche fente

détecteur. Ainsi, il est possible de remonter à la taille des particules par un traitement mathématique du spectre de diffusion. Cependant, les tests de qualification effectués avec cette méthode n'ont pas été concluants. En effet, le brouillard de fines gouttelettes se formant au niveau de la brèche rend l'interprétation du spectre de diffusion relativement délicate. La deuxième mé-

Type de brèche	Pression secondaire (bar)	Pression primaire (bar)
Rupture guillotine	62	138 → 76
Rupture guillotine et fente	1,01	75
Fente	62	145 → 76

TABLE 8 – Etendue des données thermohydrauliques des différents essais NRC

thode de mesure utilisée dans le cadre de cette expérience repose sur les propriétés inertielles des particules. Les **méthodes aérodynamiques** se basent sur le fait que les particules ayant une masse supérieure à une valeur seuil sont déviées des lignes de courant de l'air échantillonné et vont impacter un filtre de collecte placé face à l'écoulement. Ces filtres sont ensuite analysés par différentes méthodes (pesée, ICP-MS, microscopie électronique, spectrométrie Raman, ...) afin d'obtenir différentes informations sur les particules collectées comme leur taille, leur masse, leur morphologie, leur composition chimique,.... L'appareil de mesure utilisé ici est relativement différent. En effet, un tube muni d'un ajutage de prélèvement est placé face au spray afin de collecter une fraction de l'écoulement. Une plaque recouverte d'oxyde de magnésium, disposée en face de cet ajutage, est impactée par l'air échantillonné. La couche d'oxyde de magnésium permet d'imprimer sur la plaque l'empreinte des différentes gouttes collectées. A l'aide d'un microscope optique, il est possible de remonter à la taille et à la masse des gouttes produites au niveau de la brèche. La figure 44 correspond à des clichés obtenus dans une autre expérience utilisant le même procédé.

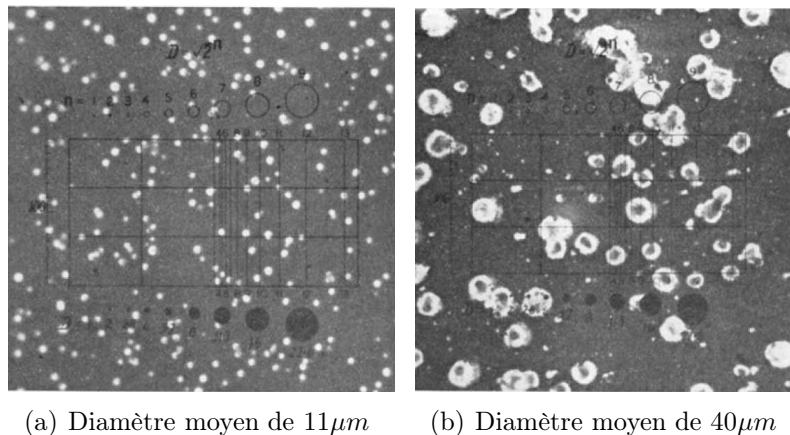
(a) Diamètre moyen de $11\mu\text{m}$ (b) Diamètre moyen de $40\mu\text{m}$

FIGURE 44 – Exemples de deux plaques de collecte pour deux granulométries différentes [67]

⇒ Conditions expérimentales

Afin d'étudier l'impact de la pression primaire sur la granulométrie pour les deux types de brèches, plusieurs essais ont été réalisés avec des ΔP différents. Le tableau suivant regroupe les différentes pressions rencontrées lors de cette expérience. Le débit massique circulant dans la conduite est déterminé grâce à cette différence de pression.

Les débits fournis dans le rapport expérimental présentent de sérieuses incohérences avec le comportement que l'on attend en fonction de la chute de pression. En effet, le dispositif expérimental fait que le débit est contrôlé principalement par la perte de charge dans la conduite de transfert entre le réservoir primaire et secondaire. Le manque d'information concernant le degré de sous-refroidissement de l'eau du réservoir primaire et le taux de vide dans le tube de

transfert ne nous permet pas de relier le débit expérimental fourni à une vitesse d'injection à la brèche. En l'absence de ces informations, on calcule la vitesse à la brèche en utilisant la formule (11) de la section 2.3, modélisation de l'atomisation primaire, avec un coefficient de décharge égal à 0.7. On vérifie sur le tableau 9 que l'on n'est jamais en blocage sonique.

ΔP (bar)	u_{liq} (m.s ⁻¹)	c_{liq} (m.s ⁻¹)	\dot{m}_{liq} (kg.s ⁻¹)
14.0	42.0	770.0	1.24
21.0	52.0	731.0	1.52
28.0	60.0	695.0	1.76
34.0	67.0	661.0	1.97
41.0	73.0	628.0	2.15
55.0	85.0	568.0	2.48
69.0	95.0	516.0	2.78
83.0	104.0	471.0	3.05

TABLE 9 – Données thermohydrauliques des différents essais NRC

D'autre part, on n'a aucune information sur la fraction molaire de vapeur dans le réservoir secondaire. On sait seulement que la vapeur est à la saturation. La configuration du réservoir secondaire et le débit de soutirage (inconnu) permettant de maintenir une pression dans ce réservoir pendant un essai, nous obligent à considérer cette fraction de vapeur comme un paramètre.

⇒ Granulométrie expérimentale

Dans ce qui suit, on caractérise les différents essais par le degré de surchauffe (différence entre la température en fin de détente et la température de vapeur saturée du secondaire ($\Delta T = T_l - T_{\text{sat}}(P_{v\infty})$)).

Rupture de type guillotine (figures 45 à 47)

Sur les graphiques de la figure 46, on représente les courbes de masse cumulée pour quatre essais. On voit sur ces figures, la courbe de masse cumulée expérimentale (losanges), la courbe de masse cumulée donnée par la fragmentation mécanique (courbe noire), le résultat du calcul sans germe (courbe rouge) et les résultats du calcul avec germes et micro explosions pour respectivement le premier profil de vitesse ($v=At^2$, courbe bleue) et pour le second profil de vitesse ($v=At$, courbe rose). Dans les tableaux, sont regroupés les diamètres médians en masse correspondant à ces courbes de masse cumulée.

La fragmentation mécanique produit des distributions dont les diamètres médians en masse sont toujours supérieurs à 100 μm . Si on ne tient pas compte de la création de germes et des micro-explosions, on obtient des distributions granulométriques très proches des distributions issues de la fragmentation mécanique. Le diamètre médian expérimental diminue bien lorsque la différence de pression primaire-secondaire augmente, ce qui est un résultat logique. Pour ces essais, le calcul avec le profil de vitesse quadratique (profil 1) donne un résultat en bon accord avec la valeur expérimentale.

Les distributions granulométriques présentes sur les figures 47 et 48 ont été obtenues respectivement pour des fractions molaires de vapeur $x_{v\infty} = 0.8$ et $x_{v\infty} = 0.6$. On constate une très faible variation des résultats de calcul.

Rupture de type fente (figures 48 et 49)

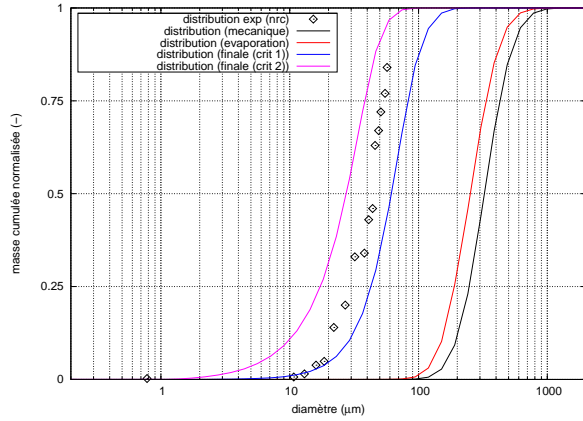
En ce qui concerne les ruptures de type fente, six essais ont été réalisés avec une gamme de

surchauffe plus étendue. A degré de surchauffe équivalent, on retrouve les mêmes granulométries que pour les brèches de type rupture guillotine. Ceci rejoint une des conclusions de la NRC, à savoir qu'à surchauffe équivalente, la granulométrie n'est pas sensible à la géométrie de la brèche. Ceci est évidemment le cas pour les résultats de calcul car cet aspect n'est pas pris en compte dans le modèle. Pour les essais à degré de surchauffe plus élevés, nous observons que les résultats expérimentaux ne sont pas cohérents. Pour l'essai à $\Delta T = 39$ °C, on observe bien une diminution du mmd expérimental. Le nombre de points expérimentaux est faible mais on observe une bonne concordance avec la distribution prédite par le calcul avec germes et micro-explosions suivant le second profil de vitesse. En ce qui concerne les essais avec forte surchauffe ($\Delta T = 46$ °C et $\Delta T = 53$ °C), les résultats expérimentaux sont quelque peu surprenants. En effet, on observe une forte augmentation du mmd expérimental alors que la surchauffe augmente. Le modèle prédit une stagnation du mmd quand la surchauffe augmente. On constate (figure 50) que les calculs avec une fraction molaire de vapeur plus faible conduisent à des résultats quasi identiques, le mmd diminuant très faiblement pour des degrés de surchauffe élevés.

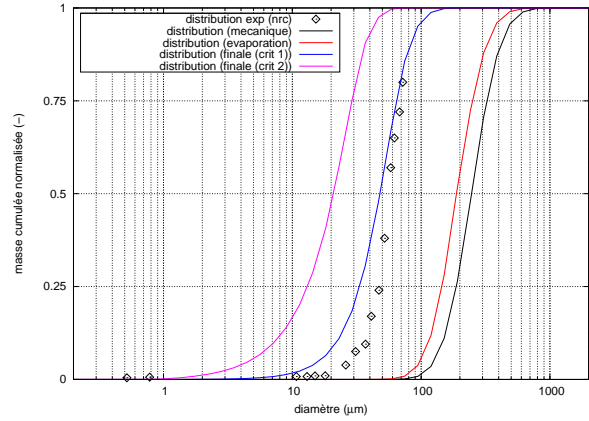
Rupture de type guillotine et fente pour le cas d'une forte dépressurisation (figure 50)

Ces deux essais ont été réalisés pour une forte variation de pression primaire-secondaire ($\Delta P = 75$ bar) et un secondaire à la pression atmosphérique. On a donc à la fois une très forte chute de pression et une surchauffe très élevée ($\Delta T = 185$ °C), conformément aux discussions de la section 4. Dans ces conditions, on forme en fin de détente des germes nanométriques avec une croissance très rapide. Contrairement aux cas précédents, la rupture se produit pour un degré de surchauffe très élevé ($\Delta T = 180$ °C). On observe aussi que, pour ces tests, c'est le deuxième profil de vitesse qui donne le meilleur accord avec les résultats expérimentaux.

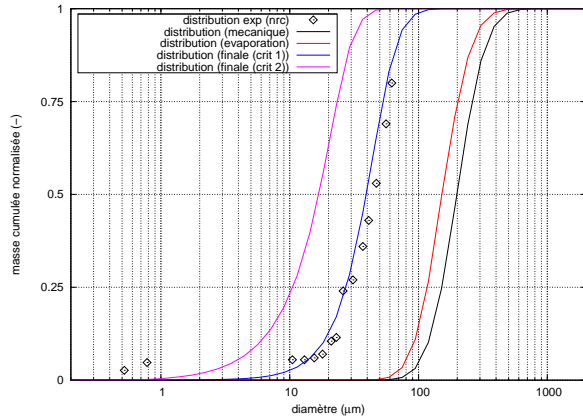
⇒ Rupture guillotine ($x_{v\infty} = 1.0$)



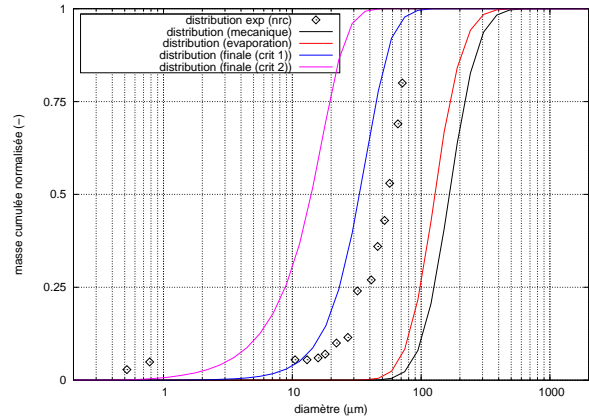
a) $\Delta T = 12.0 \text{ }^\circ\text{C}$



b) $\Delta T = 17.0 \text{ }^\circ\text{C}$



c) $\Delta T = 23.0 \text{ }^\circ\text{C}$



d) $\Delta T = 27.0 \text{ }^\circ\text{C}$

FIGURE 45 – Granulométries = $f(\Delta T)$ (type de brèche : guillotine) ($x_{v\infty} = 1.0$)

ΔT ($^\circ\text{C}$)	mmd_{meca} (μm)	mmd_{evap} (μm)	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^1$ (μm)	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^2$ (μm)	mmd_{exp} (μm)
12.0	326	157	62	26	42
17.0	247	188	48	21	55
23.0	199	152	39	17	46
27.0	167	129	33	14	56

⇒ Rupture guillotine ($x_{v\infty} = 0.8$)

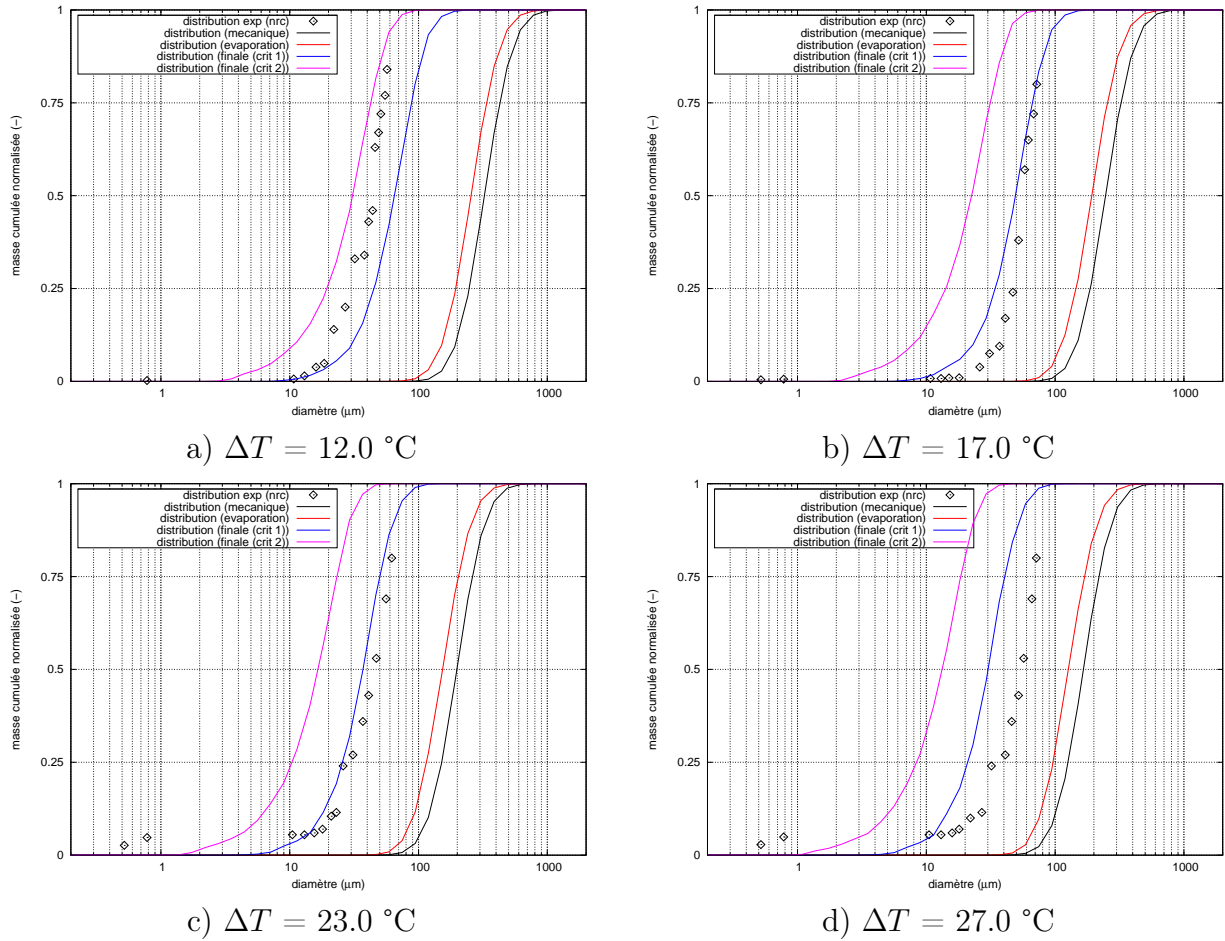


FIGURE 46 – Granulométries = $f(\Delta T)$ (type de brèche : guillotine) ($x_{v\infty} = 0.8$)

ΔT ($^{\circ}\text{C}$)	$\text{mmd}_{\text{meca}}(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{evap}}(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^1(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^2(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{exp}}(\mu\text{m})$
12.0	326	257	65	31	42
17.0	247	193	49	22	55
23.0	199	154	37	16	46
27.0	167	127	30	13	56

⇒ Rupture guillotine ($x_{v\infty} = 0.6$)

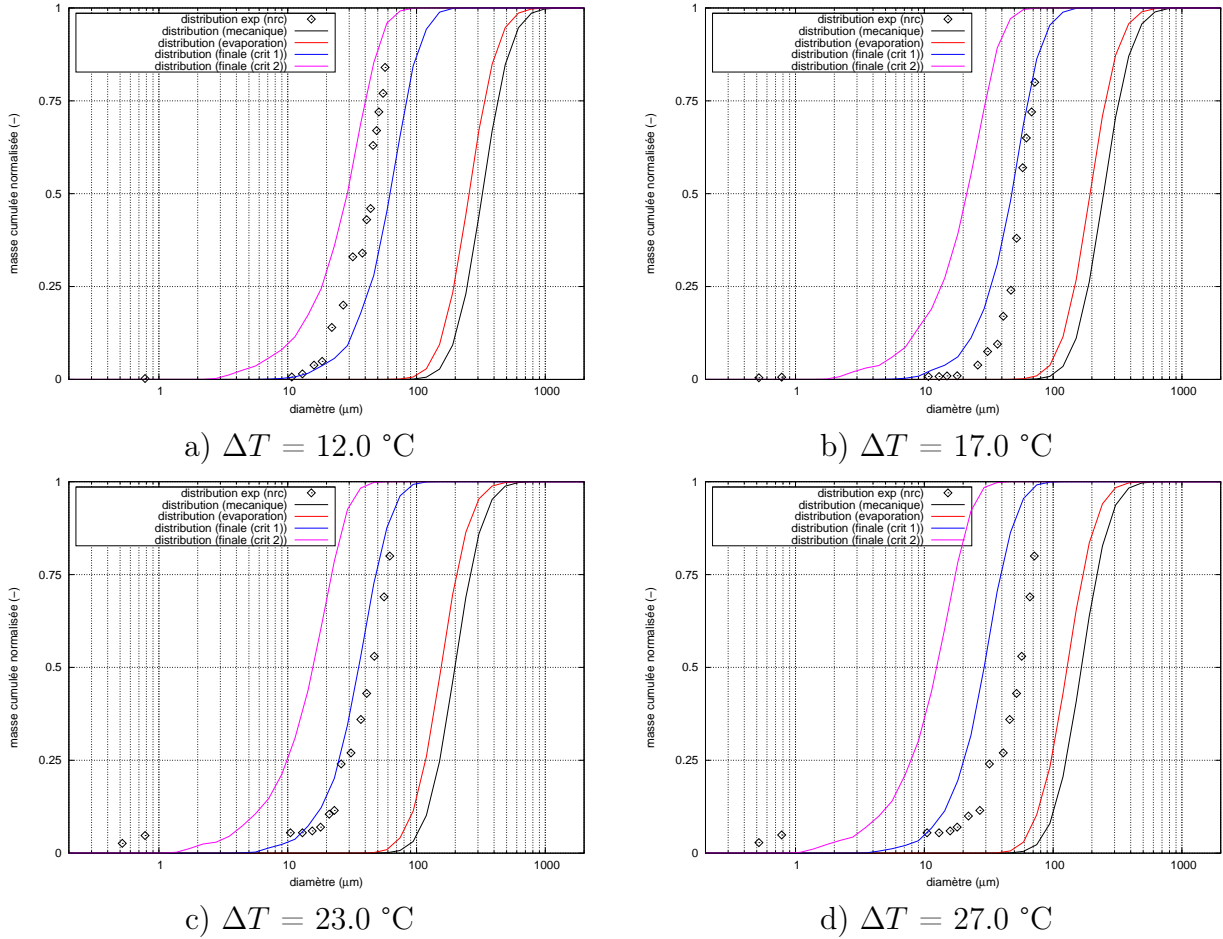


FIGURE 47 – Granulométries = $f(\Delta T)$ (type de brèche : guillotine) ($x_{v\infty} = 0.6$)

ΔT ($^\circ\text{C}$)	$\text{mmd}_{\text{meca}}(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{evap}}(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^1(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^2(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{exp}}(\mu\text{m})$
12.0	326	257	63	29	42
17.0	247	193	48	21	55
23.0	199	155	35	15	46
27.0	167	129	29	12	56

⇒ Rupture fente ($x_{v\infty} = 1.0$)

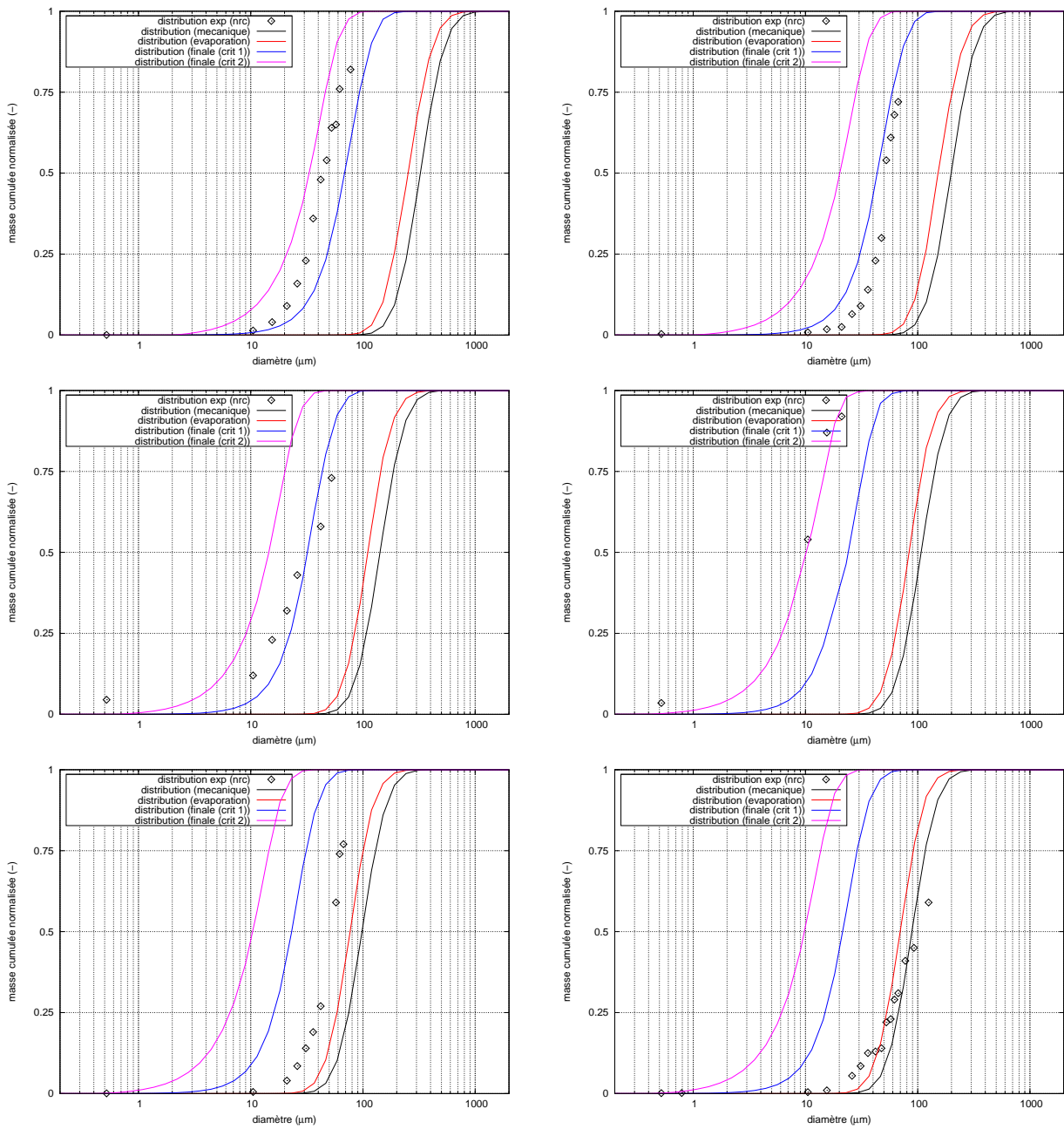


FIGURE 48 – Granulométrie = $f(\Delta T)$ (type de brèche : fente) / $x_{v\infty} = 1$

ΔT (°C)	$mmd_{meca}(\mu m)$	$mmd_{evap}(\mu m)$	$mmd_{nucl}^1(\mu m)$	$mmd_{nucl}^2(\mu m)$	$mmd_{exp}(\mu m)$
12.0	326	157	62	26	42
23.0	247	188	48	21	50
29.0	142	111	32	14	30
39.0	108	84	24	10	10
46.0	98	77	23	10	50
53.0	89	70	21	10	100

⇒ Rupture fente ($x_{v\infty} = 0.8$)

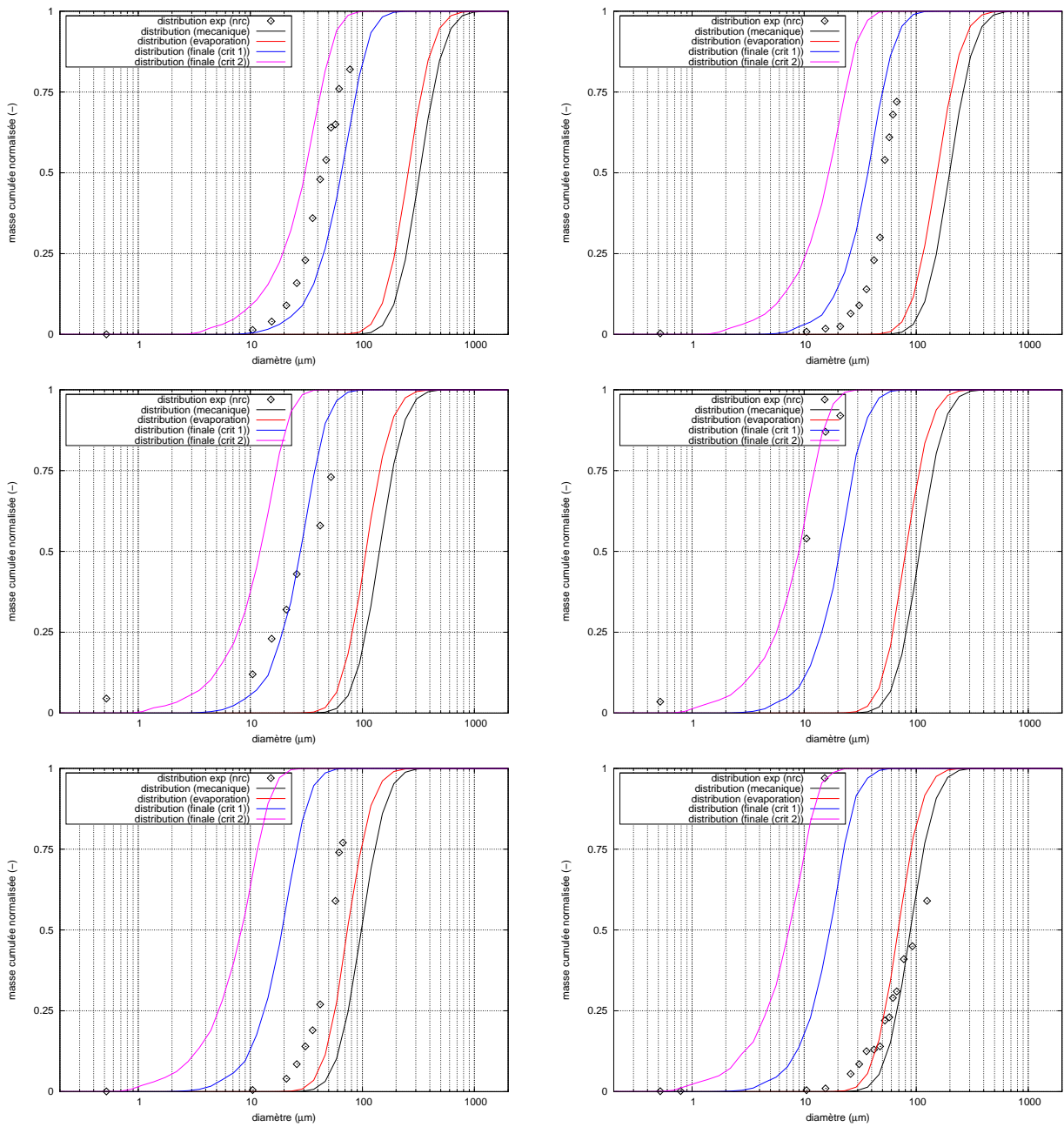
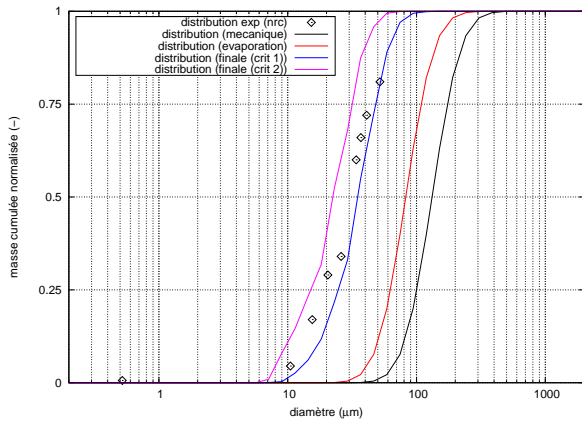


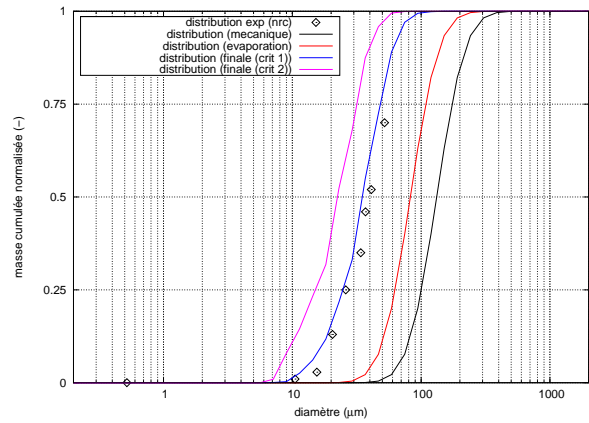
FIGURE 49 – Granulométrie = $f(\Delta T)$ (type de brèche : fente) / $xv_{\infty} = 0.8$

ΔT (°C)	$mmd_{meca}(\mu m)$	$mmd_{evap}(\mu m)$	$mmd_{nucl}^1(\mu m)$	$mmd_{nucl}^2(\mu m)$	$mmd_{exp}(\mu m)$
12.0	326	157	62	26	42
23.0	247	188	48	21	50
29.0	142	111	28	12	30
39.0	108	84	21	9	10
46.0	98	77	19	8	50
53.0	89	70	17	7	100

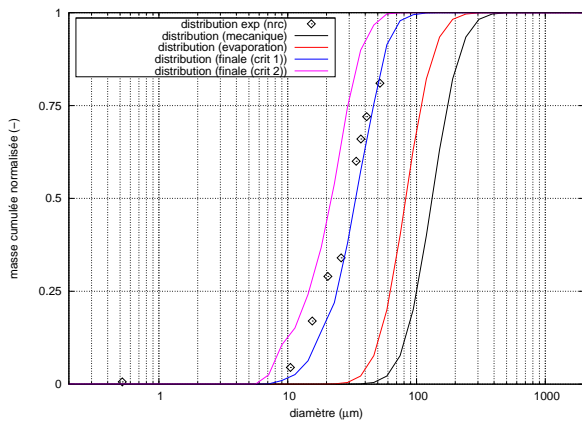
Type de rupture guillotine et fente pour le cas d'une forte dépressurisation



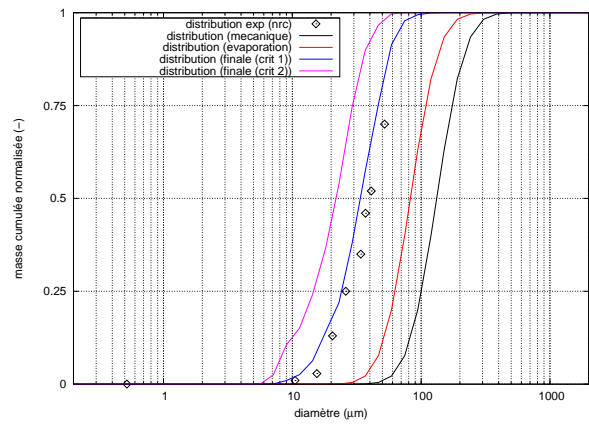
a) brèche guillotine ($x_{v\infty} = 1.0$) (A)



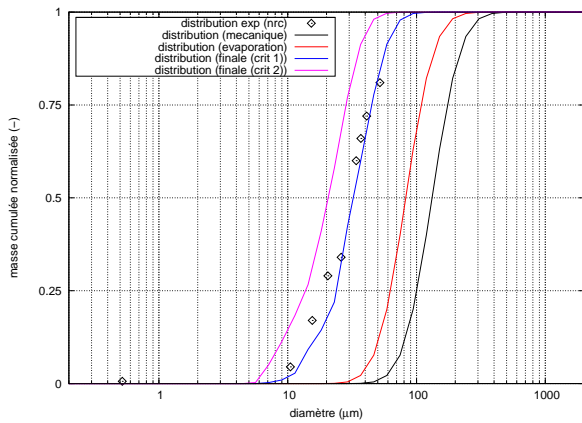
b) brèche fente ($x_{v\infty} = 1.0$) (B)



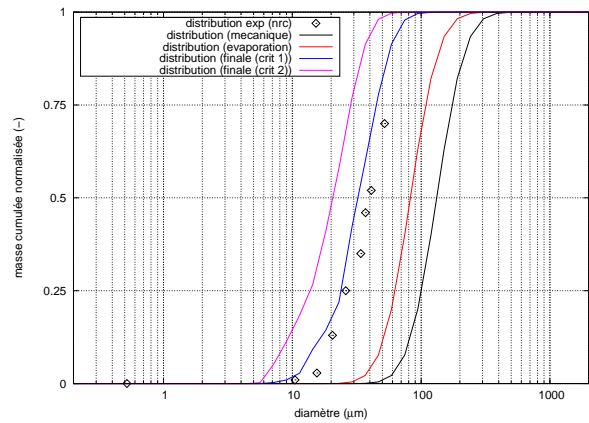
c) brèche guillotine ($x_{v\infty} = 0.8$) (A)



d) brèche fente ($x_{v\infty} = 0.8$) (B)



e) brèche guillotine ($x_{v\infty} = 0.6$) (A)



f) brèche fente ($x_{v\infty} = 0.6$) (B)

FIGURE 50 – Granulométrie = $f(x_{v\infty})$, pour une forte dépressurisation

$x_{v\infty}$	mmd_{meca}	mmd_{evap}	mmd_{nucl}^1	mmd_{nucl}^2	mmd_{exp} A	mmd_{exp} B
$x_{v\infty} = 1.0$	133	83	35	22	28	40
$x_{v\infty} = 0.8$	133	83	34	21		
$x_{v\infty} = 0.6$	133	83	32	20		

⇒ Taux de flashing NRC

Une série de cinq essais a été consacrée à la mesure du taux de flashing en utilisant le même dispositif expérimental. Pour mesurer ces taux de flashing, il a été envisagé d'utiliser un traceur D2O et, en faisant des hypothèses sur la relation entre le débit de vapeur flashé et le débit de condensation dans le réservoir secondaire, d'évaluer le taux de flashing par dosage du traceur dans la phase gaz (rapport NRC). Les résultats obtenus par cette méthode ne sont pas présentés dans le rapport NRC.

Une deuxième méthode consiste à relier l'accroissement de pression dans le réservoir secondaire au débit de vapeur flashé. Cependant, étant donnée la complexité des phénomènes (condensation sur les structures, interaction vapeur-gouttelettes,...), le taux de flashing est relié uniquement, dans le rapport NRC, à l'élévation de pression initiale. Cette méthode engendre, d'après les auteurs du rapport NRC, une forte incertitude sur les résultats expérimentaux. En principe, ce résultat est suffisant pour notre validation car nous nous intéressons uniquement au calcul du taux de flashing en champ proche.

Nous avons vérifié que le taux de flashing isenthalpique calculé est conforme au taux de flashing présenté dans le rapport NRC, ce qui signifie que l'on a bien pris en compte les conditions aux limites expérimentales. Dans les tableaux qui suivent, le cas A correspond au cas sans germe (on ne tient compte que de l'évaporation de surface) et les cas B₁ et B₂ aux cas avec des germes pour les profils de vitesse 1 et 2. Ces valeurs sont comparées au taux de flashing isenthalpique et au taux de flashing expérimental.

Conditions thermodynamiques de l'essai n°1 :

$$P_{l0} = 96 \text{ bar} \quad P_2 = 59 \text{ bar} \quad T_l^* = 578 \text{ K} \quad \Delta T_l^* = 31 \text{ K}$$

$$T_{l0} = 581 \text{ K} \quad T_2 = 547 \text{ K} \quad T_l = 576 \text{ K} \quad \Delta T_l = 29 \text{ K}$$

Essai 1	$\tau_{flash} \%$				$\tau_{flash}^{isen} \%$	$\tau_{flash}^{exp} \%$
	$x_{v\infty} = 1.0$	$x_{v\infty} = 0.8$	$x_{v\infty} = 0.6$	$x_{v\infty} = 0.4$		
Cas A	10.56	13.92	18.27	22.67	11.6	22.0 ± 12.0
Cas B ₁	10.60	11.12	18.49	22.27		
Cas B ₂	10.60	10.30	12.38	20.25		

Conditions thermodynamiques de l'essai n°2 :

$$P_{l0} = 94 \text{ bar} \quad P_2 = 57 \text{ bar} \quad T_l^* = 577 \text{ K} \quad \Delta T_l^* = 32 \text{ K}$$

$$T_{l0} = 580 \text{ K} \quad T_2 = 545 \text{ K} \quad T_l = 574 \text{ K} \quad \Delta T_l = 29 \text{ K}$$

Essai 2	$\tau_{flash} \%$				$\tau_{flash}^{isen} \%$	$\tau_{flash}^{exp} \%$
	$x_{v\infty} = 1.0$	$x_{v\infty} = 0.8$	$x_{v\infty} = 0.6$	$x_{v\infty} = 0.4$		
Cas A	10.67	14.31	18.24	22.75	11.7	31.0 ± 5.0
Cas B ₁	10.68	13.88	18.44	22.98		
Cas B ₂	10.68	10.35	13.92	22.28		

Conditions thermodynamiques de l'essai n°3 :

$$P_{10} = 94 \text{ bar} \quad P_2 = 43 \text{ bar} \quad T_l^* = 575 \text{ K} \quad \Delta T_l^* = 47 \text{ K}$$

$$T_{l0} = 580 \text{ K} \quad T_2 = 528 \text{ K} \quad T_l = 574 \text{ K} \quad \Delta T_l = 46 \text{ K}$$

Essai 3	$\tau_{flash} \%$				$\tau_{flash}^{isen} \%$	$\tau_{flash}^{exp} \%$
	$x_{v\infty} = 1.0$	$x_{v\infty} = 0.8$	$x_{v\infty} = 0.6$	$x_{v\infty} = 0.4$		
Cas A	14.76	17.77	21.12	25.08	16.0	30.0 ± 5.0
Cas B ₁	14.25	17.58	21.03	24.98		
Cas B ₂	14.25	12.80	16.80	24.98		

Conditions thermodynamiques de l'essai n°4 :

$$P_{10} = 94 \text{ bar} \quad P_2 = 32 \text{ bar} \quad T_l^* = 574 \text{ K} \quad \Delta T_l^* = 64 \text{ K}$$

$$T_{l0} = 580 \text{ K} \quad T_2 = 510 \text{ K} \quad T_l = 573 \text{ K} \quad \Delta T_l = 63 \text{ K}$$

Essai 4	$\tau_{flash} \%$				$\tau_{flash}^{isen} \%$	$\tau_{flash}^{exp} \%$
	$x_{v\infty} = 1.0$	$x_{v\infty} = 0.8$	$x_{v\infty} = 0.6$	$x_{v\infty} = 0.4$		
Cas A	18.66	21.17	24.03	27.49	20.0	25.0 ± 4.0
Cas B ₁	17.43	21.06	23.93	27.37		
Cas B ₂	17.43	21.06	23.93	27.37		

Conditions thermodynamiques de l'essai n°5 :

$$P_{10} = 94 \text{ bar} \quad P_2 = 16 \text{ bar} \quad T_l^* = 580 \text{ K} \quad \Delta T_l^* = 106 \text{ K}$$

$$T_{l0} = 580 \text{ K} \quad T_2 = 474 \text{ K} \quad T_l = 574 \text{ K} \quad \Delta T_l = 100 \text{ K}$$

Essai 5	$\tau_{flash} \%$				$\tau_{flash}^{isen} \%$	$\tau_{flash}^{exp} \%$
	$x_{v\infty} = 1.0$	$x_{v\infty} = 0.8$	$x_{v\infty} = 0.6$	$x_{v\infty} = 0.4$		
Cas A	25.33	27.16	29.29	31.96	27.0	72.0 ± 11.0
Cas B ₁	21.93	26.44	28.58	31.21		
Cas B ₂	21.93	26.44	28.58	31.21		

Excepté le premier essai pour lequel il y a une grosse incertitude sur le taux de flashing expérimental, on constate que le taux de flashing mesuré est systématiquement supérieur au taux de flashing isenthalpique. Le taux de flashing calculé est également supérieur au taux de flashing isenthalpique pour des fractions molaires de vapeur inférieures à 0,6. Nous n'avons pas suffisamment d'informations sur les conditions réelles du réservoir secondaire, mais en fonction de la fourchette de température annoncée, on peut raisonnablement penser que la fraction molaire de vapeur est en réalité inférieure à cette valeur. On observe que le taux de flashing associé au cas de calcul avec formation de germes et rupture est, en général, légèrement inférieur au taux de flashing donné par l'évaporation de surface seule. Ceci s'explique par le fait qu'on est en présence d'un mécanisme complètement différent. En effet, les ruptures se produisent quasi instantanément après la détente adiabatique. Le flashing lié à l'évaporation avant la rupture est par conséquent quasiment négligeable. Nous avons également vu que le taux de flashing

associé à la rupture est faible (quelques %). La masse de liquide après rupture est répartie en une distribution de gouttelettes secondaires beaucoup plus petites avec un degré de surchauffe relativement faible. Le taux de flashing de ces gouttelettes secondaires est donc nettement plus faible (à cause de la faible surchauffe et non à cause de leur taille, car nous avons vu que le taux de flashing en évaporation de surface dépend très peu de la taille des gouttes). En fait, l'énergie qui a été consommée pour la formation et la croissance des germes n'est plus disponible pour l'évaporation.

5.2 Les essais INERIS

Les essais réalisés à l'école nationale supérieure des Mines de Saint-Etienne et à l'INERIS [1] s'inscrivent dans une démarche d'amélioration de la sûreté industrielle. En effet, l'INERIS, équivalent de l'IRSN au niveau de la sûreté industrielle, mène des projets de recherche visant à étudier les jets accidentels de gaz liquéfiés.

Présentation du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental de l'INERIS est composé d'une sphère avec une capacité de 2 m^3 (figure 51). Un flexible de 1.5 m de longueur et de diamètre interne 13 mm permet d'acheminer le fluide primaire au dispositif de mesure. La partie externe de ce flexible est constituée d'une double enveloppe maintenue sous vide afin de minimiser les pertes thermiques lors du passage du fluide. Juste avant l'orifice, se trouve une vanne permettant de contrôler le débit. De plus, un capteur de pression est disposé juste avant l'orifice afin de contrôler la pression du réservoir primaire par le biais d'un pressuriseur (air comprimé). Un système de résistances disposées sur la paroi interne de la sphère permet d'amener le fluide à la température souhaitée.

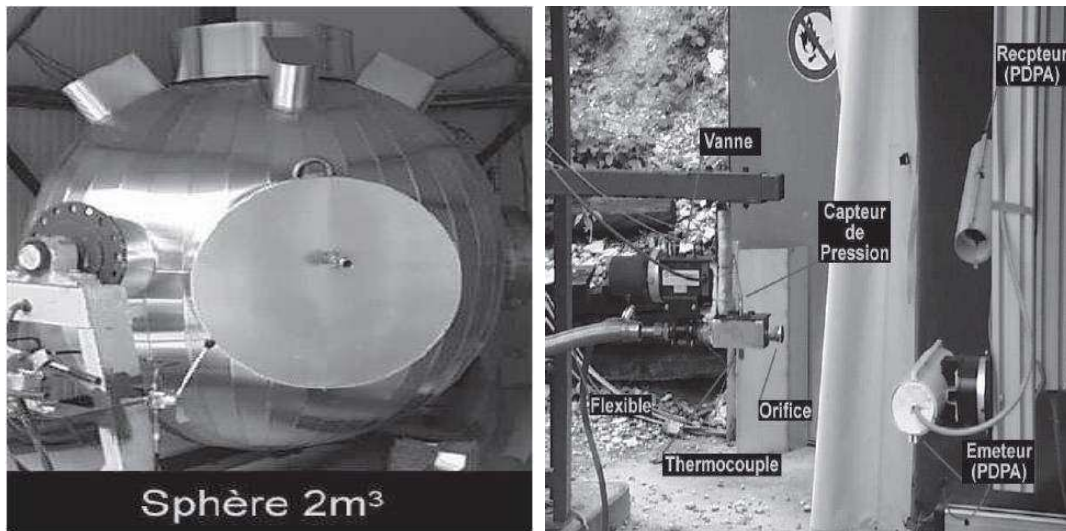


FIGURE 51 – Photographies du dispositif expérimental de l'INERIS

La caractérisation de la taille des gouttes générées au niveau de l'orifice est réalisée par le biais d'un dispositif optique, l'anémométrie laser à phase Doppler (PLDA). Cette méthode, comme son nom l'indique, permet dans un premier temps de mesurer la vitesse des gouttes par la fréquence du signal Doppler reçu au niveau des détecteurs. Le déphasage entre les différents signaux reçus permet de remonter à la taille des gouttes générées au niveau de l'orifice.

⇒ Présentation des conditions expérimentales

Un autre dispositif expérimental (installation GAZLIQ) a été utilisé afin de caractériser les différents débits liquides au niveau de l'orifice. Il s'agit d'un réservoir vertical de forme cylindrique d'une capacité de 233 litres. La pression et la température maximale de fonctionnement sont respectivement 50 bar et 250°C . Le débit liquide est mesuré grâce au différentiel de pression entre l'amont et l'aval de l'orifice en calculant la vitesse à la brèche par la formule classique présentée dans la section 2.3.2. La figure 52 donne les différents points expérimentaux ainsi que l'évolution du débit calculé pour différents coefficients de décharge.

Le tableau 10 donne les différentes vitesses ainsi que les différents débits utilisés pour les quatre essais présentés dans la suite de cette section :

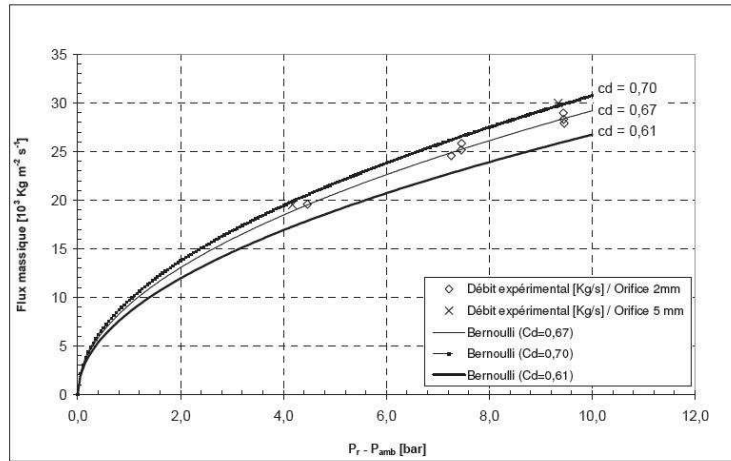


FIGURE 52 – Evolution du débit surfacique en fonction de la différence de pression amont-aval [1]

	ΔP (bar)	U_{liq} (m.s ⁻¹)	c_{liq} (m.s ⁻¹)	\dot{m}_{liq} (kg.s ⁻¹)
Essai 1 (D=5mm)	9.3	31	1214	0.58
Essai 2 (D=2mm)	9.4	31	1222	$9.3 \cdot 10^{-2}$
Essai 3 (D=2mm)	7.2	28	1296	$7.9 \cdot 10^{-2}$
Essai 4 (D=2mm)	9.4	32	1260	$9.0 \cdot 10^{-2}$

TABLE 10 – Description des données thermohydrauliques des essais INERIS

Remarque : Les essais que nous présentons ici ont été réalisés pour étudier l'impact des conditions de stockage du fluide sur la granulométrie des gouttes générées. Le dispositif de mesure est situé à 20 cm de l'orifice.

Interprétation des résultats :

Pour ces essais, les conditions du secondaire sont connues (conditions normales de pression et de température, vapeur à saturation).

Pour le premier essai, le liquide primaire est à une température inférieure à $T_{sat}(P_2)$. Il n'y a donc pas de nucléation et par conséquent, les seuls processus qui conduisent à la distribution granulométrique finale sont la fragmentation mécanique et l'évaporation de surface. Notons que le haut de la distribution de masse cumulée expérimentale présente une forme curieuse pour les grands rayons. Ceci est probablement lié, soit à des difficultés expérimentales (méthodes optiques), soit à une présentation incomplète des résultats expérimentaux. En effet, les résultats expérimentaux sont présentés sous forme de spectres de gouttes qui sont ensuite transformés en distributions de masse cumulée. On constate que, pour une raison inexpliquée, les spectres expérimentaux sont tronqués pour les grands rayons.

Le deuxième essai correspond au cas mentionné dans la section exemples de calcul pour lequel le degré de surchauffe initial est faible. Dans ces conditions, les germes produits par la détente adiabatique sont relativement grands, ce qui conduit après explosion à de gros fragments. On constate que les courbes de masse cumulée expérimentales sont très proches des distributions obtenues par la fragmentation mécanique. D'autre part, la courbe correspondant à l'évaporation de surface seule est très proche de la courbe donnée par la fragmentation mécanique, ce qui est

logique car le degré de surchauffe initial est très faible. De même, la distribution donnée par le calcul avec germes et le second profil de vitesse se superposent exactement à la distribution issue de l'évaporation de surface seule. En effet, dans ce cas, on produit de gros fragments et donc on vaporise légèrement moins, d'où la superposition des deux courbes. Notons que le premier profil de vitesse (courbe bleue) donne également des résultats satisfaisants.

Pour les deux derniers essais, à degré de surchauffe plus élevé, on observe une bonne concordance entre les résultats expérimentaux et ceux du calcul.

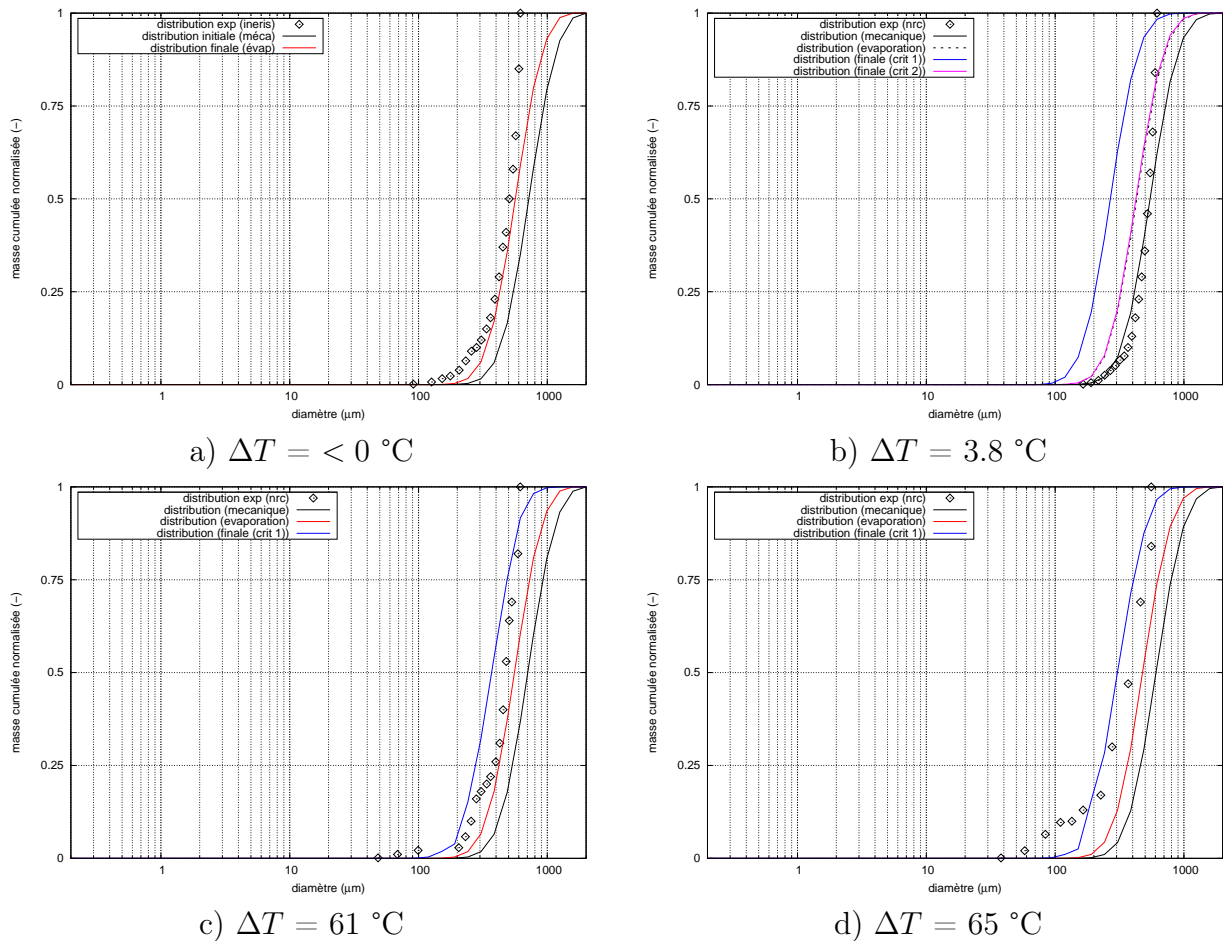


FIGURE 53 – Différents essais INERIS

$\Delta T(\text{C})$	$\text{mmd}_{\text{meca}}(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{evap}}(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^1(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{nucl}}^2(\mu\text{m})$	$\text{mmd}_{\text{exp}}(\mu\text{m})$
< 0	722	568			508
3.8	560	435	289	435	534
61	710	559	384	384	478
65	608	478	305	305	380

Deuxième partie

Transfert primaire de l'iode (Flashing de l'iode)

Sommaire

1	Introduction : origine de la contamination du fluide primaire	125
2	Quelques références sur la spéciation de l'iode dans le circuit primaire	128
2.1	Chimie dans le primaire	128
2.2	Etat de l'art sur la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire . . .	129
3	Spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire	132
3.1	Radiolyse de l'eau	132
3.2	Radiolyse de l'iode	139
3.3	Prise en compte des impuretés (Fe, Cu)	145
3.4	Calcul de la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire en régime permanent	147
4	Détermination des coefficients de partage de HOI, IO₃, I, I₂ et IO	158
4.1	Bibliographie	158
4.2	Méthodologie	160
4.3	Paramètres de calcul	162
5	Flashing de l'iode et transfert primaire	165
5.1	Le transfert primaire et le transfert secondaire	165
5.2	Solution simplifiée	167
5.3	Application à une distribution en tailles des gouttes	168
5.4	Cas de la formation de germes de vapeur suivie d'une micro-explosion	170
5.5	Les corrections à l'expression du taux de flashing	170
5.6	Cas de plusieurs espèces volatiles	171
5.7	Taux de transfert primaire de l'iode (ou taux de by-pass)	171

1 Introduction : origine de la contamination du fluide primaire

⇒ Contamination du fluide primaire en régime permanent

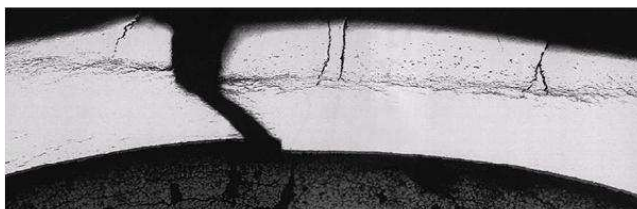
Le combustible présent dans le coeur du réacteur apparaît sous forme de pastilles cylindriques d'oxyde fritté d'uranium UO_2 . Ces pastilles sont regroupées dans un tube creux formé d'un alliage métallique, le Zircaloy, et d'épaisseur très fine ($e \approx 0.5mm$). Le zirconium a été choisi pour son aptitude à être transparent aux neutrons, une bonne résistance à la corrosion, une faible dilatation thermique, un point de fusion élevé,... L'assemblage des pastilles dans la gaine se nomme crayon combustible.

En fonctionnement normal, la température au centre de la pastille ($T \approx 1000\text{ °C}$) est plus élevée que la température en périphérie ($T \approx 500\text{ °C}$) ce qui conduit à une augmentation du diamètre de la pastille (effet du gradient thermique, dilatation thermique et gonflement).

Cet effet combiné aux forces de pression exercées par le fluide primaire au niveau de la surface externe de la gaine engendre un contact entre les pastilles et la gaine, et conduit à la formation de micro-fissures dans les pastilles de combustible (figure 54.(a)). Au cours de l'irradiation d'un crayon, des produits de fission stables et radioactifs (iode, césium, ...), des gaz rares (xénon, krypton, ...) ainsi que des produits d'activation (fer, cobalt, ...) sont créés. Les gaz rares s'accumulent dans la partie haute du crayon (plénum supérieur) et une faible quantité d'espèces volatiles (iode, césium,...) sont libérées entre la gaine et les pastilles (la plus grande partie des produits de fission reste piégée aux joints de grain et dans les fissures des pastilles). Débute alors une phase de corrosion de l'enveloppe interne pouvant conduire à la formation de micro-fissures dans la gaine (figure 54.(b)).



(a) Fissures dans une pastille



(b) Fissuration d'une gaine

FIGURE 54 – Photographies d'une pastille de combustible et d'une gaine fissurée

La morphologie particulière de la fissure conduit à un relâchement des produits de fission gazeux et volatils dans l'eau du circuit primaire mais maintient le confinement du combustible. On assiste donc à une faible contamination résiduelle du fluide primaire. La quantité de radioéléments piégée à l'intérieur de la gaine dépend de la durée de fonctionnement du crayon combustible (taux de combustion). Afin de minimiser l'activité du circuit primaire, un système de filtration (RCV : système de contrôle chimique et volumétrique du réacteur) piège une partie des PFs par l'intermédiaire de filtres et de résines.

⇒ Contamination du fluide primaire en régime transitoire : pic d'iode

Nous avons vu qu'en régime permanent le circuit primaire est contaminé, du fait de l'existence de micro fissures dans les gaines des crayons de combustible. Cette contamination dépend de l'historique des cycles subis par le combustible (burn-up) qui a pour conséquence une

restructuration des gaines et des pastilles d'UO₂. Les produits de fission, en particulier l'iode, sont accumulés dans les joints de grains, les fissures internes au combustible, le jeu combustible-gaine (gap) et le plenum supérieur (pour ce qui concerne les gaz rares). L'iode est présent sous forme de dépôts d'iodure de césium sur les pastilles et sur la surface interne des gaines.

Lors d'un transitoire de puissance, de pression ou de température, divers mécanismes conduisent à un relâchement dans le circuit primaire des produits de fission accumulés qui est bien plus rapide que la fuite en régime permanent. Dans l'état quasi-statique, cette dernière est compensée par le débit du circuit de purification (RCV). En cas d'augmentation rapide de la fuite, il n'y a plus d'équilibre et l'activité dans le circuit primaire augmente transitoirement, sur une durée qui varie entre une heure et 60 heures (données IRSN). Ce phénomène est appelé le **pic d'iode**. Lors d'une séquence RTGV, nous avons en même temps un transitoire de pression, de température et de puissance (arrêt automatique du réacteur) avec un chemin de fuite direct de l'activité par le ou les tubes du GV endommagés. Ceci explique pourquoi le pic d'iode a fait l'objet d'études approfondies (Tigeras [68], Lewis et al. [69]). Des mesures d'activité lors d'un pic d'iode ont été réalisées pour de nombreux transitoires de puissance (Philippot [70]).

Nous nous bornons ici à décrire brièvement la phénoménologie de façon à faire ressortir les principaux paramètres. Nous reprenons les hypothèses du modèle de Lewis et al. Suivant ces hypothèses, le mécanisme responsable du pic est l'augmentation du taux de transfert à l'intérieur du gap (vers le défaut à l'origine de la fuite) soit par diffusion, soit par convection forcée. On suppose que la modification du taux de transfert du combustible vers le gap est secondaire par rapport à l'augmentation du taux de transfert gap-défaut.

On reprend les notations de Lewis et al [69] :

Avec

:

- R_f (s⁻¹) : le nombre d'atomes par unité de temps qui transite du combustible vers le gap
- R_c (s⁻¹) : le nombre d'atomes par unité de temps qui transite du gap vers le circuit primaire
- N_g : le nombre d'atomes actifs dans le gap
- N_c : le nombre d'atomes actifs dans le circuit primaire
- λN_{g0} (Bq) : l'activité du gap en régime permanent
- λN_g (Bq) : l'activité du gap
- λN_{c0} (Bq) : l'activité du circuit primaire en régime permanent
- λN_c (Bq) : l'activité du circuit primaire
- ν (s⁻¹) : le taux de fuite du crayon en régime permanent
- k (s⁻¹) : le taux de fuite du crayon en régime transitoire
- L (s⁻¹) : le taux d'épuration par le circuit RCV

En régime permanent, on a $R_f = \lambda N_g + \nu N_g$ et $R_c = \nu N_g$

D'autre part : $R_c = \lambda N_c + L N_c$

D'où les relations : $N_{g0} = \frac{R_{f0}}{\lambda + \nu}$ et $N_{c0} = \frac{\nu}{\lambda + L} N_{g0}$

On a donc une relation entre l'activité du primaire et l'activité du gap qui dépend du taux de fuite et du taux d'épuration :

$$\frac{\lambda N_{c0}}{\lambda N_{g0}} = \frac{\nu}{\lambda + L} \quad (1)$$

On fait l'hypothèse que R_f varie peu pendant le pic d'iode. En transitoire, on a le système d'équations :

$$\frac{dN_g}{dt} = R_{f0} - \lambda N_g - k N_g \quad (2)$$

$$\frac{dN_c}{dt} = k N_g - \lambda N_c - L N_c \quad (3)$$

Remarquons que Lewis et al [69] font l'hypothèse que le terme de fuite ne dépend pas de la différence entre N_g et N_c .

Toute la difficulté du modèle est dans la détermination de k , laquelle est d'une extrême complexité. Le coefficient k est très sensible aux conditions thermohydrauliques, au degré d'ouverture du jeu, à la position du défaut. Par exemple, pour un jeu ouvert et une baisse de température du combustible, on peut avoir une entrée d'eau sous forme liquide dans le gap et une lixiviation du CsI accumulé. Pour un jeu fermé, on aura de la diffusion à travers un réseau complexe d'aspérités. Suivant la position du défaut, on peut avoir une expulsion par les gaz du plenum en expansion. De plus, pour toutes ces raisons, k peut fortement varier pendant le transitoire. Ceci explique peut-être l'évolution temporelle des pics d'iode mesurés qui a une structure assez complexe.

A titre d'illustration, on envisage le cas où k est constant, et plus grand que L . Le système (2) et (3) a alors une solution algébrique :

Posant :

$$\alpha = \frac{\lambda + \nu}{\lambda + k} \quad (4)$$

On a une expression de l'activité en fonction du temps, rapportée à l'activité en régime stationnaire :

$$\frac{\lambda N_c}{\lambda N_{c0}} = \frac{k}{\nu} \left(\alpha + \left(\frac{\nu}{k} - \alpha + (1 - \alpha) \frac{\lambda + L}{k - L} \right) \exp(-(\lambda + L)t) - (1 - \alpha) \frac{\lambda + L}{k - L} \exp(-(\lambda + k)t) \right) \quad (5)$$

A l'équilibre, on obtient : $\frac{\lambda N_{ceq}}{\lambda N_{c0}} = \frac{k}{\nu} \frac{\lambda + \nu}{\lambda + k}$ qui est supérieur à 1.

L'amplitude et la durée du pic d'activité sont très sensibles à la valeur de k , à travers la valeur absolue et le signe des deux termes exponentiels. Pour certaines valeurs de k , on peut même n'avoir pas de pic et simplement une croissance monotone de l'activité. L'analyse réalisée (Philippot [70]) pour 210 transitoires dans des réacteurs du parc EDF montre une grande dispersion (il ne s'agit pas de transitoires accidentels).

2 Quelques références sur la spéciation de l'iode dans le circuit primaire

Dans ce paragraphe nous présentons les quelques données disponibles dans la littérature concernant la spéciation de l'iode dans le circuit primaire. Il faut souligner d'ores et déjà que les analyses faites reposent sur le principe d'un prélèvement depuis le circuit primaire qui est refroidi à température ambiante afin d'être analysé par la suite par une série de procédures plus ou moins complexes, comme illustré sur la figure 55.

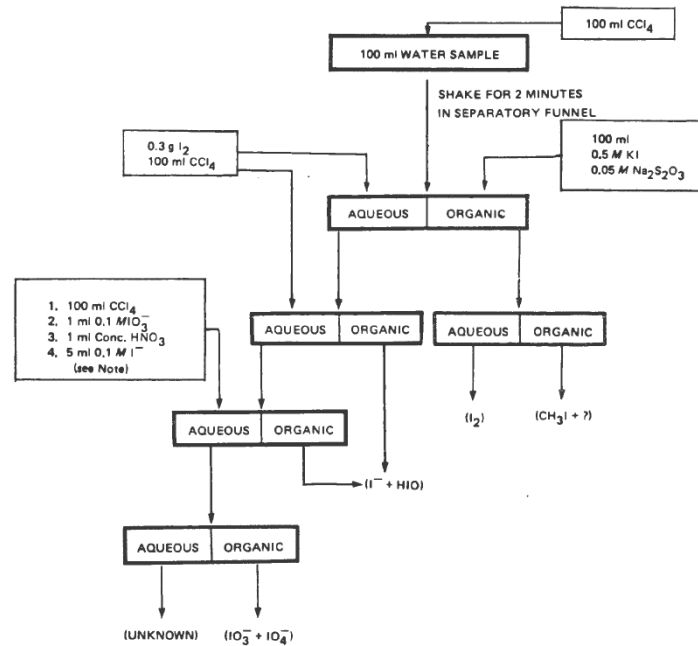


FIGURE 55 – Protocole de mesure issue de la publication de Lin [71] (1980)

Le mode opératoire ainsi mis en oeuvre induit inévitablement des sources d'incertitude que nous essaierons de quantifier dans la suite de ce paragraphe.

2.1 Chimie dans le primaire

Le premier point consiste à recenser les éléments présents dans le circuit primaire en fonctionnement normal. Ces éléments se subdivisent en deux catégories ; la 1^{ère} catégorie englobe le Bore, le Lithium et l'Hydrogène qui pilotent la chimie du primaire tandis que la seconde catégorie regroupe ce que l'on pourrait qualifier d'impuretés avec notamment la présence de Fer ferreux (Fe²⁺), de Cuivre(II), Cu²⁺, et de chlorure.

L'hydrogène injecté permet de maintenir l'oxygène dissout dans le circuit primaire à des teneurs très basses afin de limiter les phénomènes de corrosion.

Des teneurs pour ces éléments sont reportées dans le Tableau 11.

Régime	Impuretés	niveau	Référence
normal	Fe ²⁺	0,05 ppm max	Martucci [72]
normal	Cu ²⁺	0,05 ppm max	Martucci [72]
normal	O ₂	0,01 ppm max	Martucci [72]
normal	Cl ⁻	75 ppm max	Martucci [72]
normal	Bore	< 1000 ppm max	Martucci [72]
normal	Li	≈ 1 ppm	Martucci [72]
normal	Cu ²⁺	≈ 1 ppb	Lin [71]

TABLE 11 – Les éléments autres que l'iode présents dans le circuit primaire

2.2 Etat de l'art sur la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire

Pour connaître la pollution du circuit primaire et donc le nombre de crayons défectueux, les exploitants mesurent l'activité de l'eau du circuit primaire. Donc, la forme chimique des espèces n'est pas connue. Dans le paragraphe suivant, nous avons recensé les informations disponibles concernant les formes chimiques d'iode présentes.

⇒ Bibliographie

Compte tenu du niveau de concentration en iode dans le circuit primaire, généralement située entre 10^{-10} et 10^{-9} mol.l⁻¹, et des températures élevées de fonctionnement, déterminer les formes chimiques avec précision s'avère être une tâche ardue. Récemment Tigeras et al. [73] ont fait une synthèse des quelques mesures expérimentales réalisées pour déterminer les formes chimiques présentes. Bien que ces données soient disparates, il en ressort que l'iodure I⁻ est l'espèce prépondérante mesurée. De l'iodate a aussi été détecté ainsi qu'une forme volatile de l'iode, notamment lors de transitoires. Il nous paraît intéressant de faire une analyse critique des quelques données disponibles dans la littérature afin de mieux appréhender la fiabilité de ces données.

Martucci [72] (1973) a été le premier à tenter de mesurer la composition chimique de l'iode dans le circuit primaire de cinq PWR américains, sur la base de prélèvements en régime normal. Les mesures chimiques ont été réalisées à partir du protocole opératoire mis au point par Castleman [74] (1968) qui repose sur une méthode d'extraction liquide-liquide avec CCl₄ pour extraire I₂ de la phase aqueuse. Ensuite, on procède à une oxydation du I⁻ resté en phase aqueuse pour former I₂, ré-extrait à nouveau avec CCl₄ avant dosage. La fraction volatile obtenue est très disparate variant de 0,5 % à 15 %, sans information ni commentaires qui permettraient d'expliquer la grande variabilité de ces résultats. Les mesures les plus complètes ont été réalisées par Lin [71] (1980), Mandler et al. [75] (1985) et Voillequé [76] (1990) sur des réacteurs de type BWR et PWR avec des protocoles de mesure assez similaires.

Lin [71] a fait diverses mesures sur des BWR en régime normal et transitoire ; il a noté le rôle du Cuivre qui, à faible teneur, a tendance à limiter la formation des iodates, le Cu²⁺ étant connu pour capter des radicaux, ce qui limite l'oxydation. Un point également à mentionner est que, dans le protocole de mesures, Lin précise bien que la mesure des iodures englobe aussi celle de HOI si cette espèce est présente (figure 55).

Mandler et al. [75] ont notamment fait la mesure de quatorze échantillons prélevés en régime normal et lors de transitoires sur les deux réacteurs PWR de Prairie Island aux USA. La technique de mesure utilisée est largement dérivée de celle mise au point par Lin.

La figure 57 répertorie dans un tableau ces quelques données. Notons que la présence d'iodure organique n'est pas mentionnée, quels que soient les auteurs. La grosse incertitude sur les mesures réside dans le fait que les prélèvements modifient la spéciation. D'autre part, les mesures conduites en laboratoire sont réalisées à température ambiante. Le fait de passer d'environ 300 °C à 25 °C a probablement un impact sur la spéciation de l'iode.

Bien que les données soient disparates à la fois en termes de conditions expérimentales et à la fois en termes de résultats, on peut néanmoins en déduire certaines tendances :

- La répartition des formes en régime normal et en régime transitoire évolue sensiblement avec les conditions du circuit primaire, en particulier la température, l'injection de H_2O_2 ou encore l'oxygénation progressive du circuit primaire par ajout d'eau borée etc. ;
- En régime normal, l'espèce principale semble être l'iodure tandis que, lors du transitoire, on favorise l'oxydation avec des quantités non négligeables d' I_2 et d' IO_3^- ;
- En régime normal, une plus forte proportion d' IO_3^- est observée ($\approx 20\%$) pour les réacteurs de type BWR. Cette différence avec les PWR est attribuée à la présence d'une phase gazeuse qui favorise la formation d' HOI par transfert vers celle-ci ;
- Comme attendu, l'injection d'oxygène lors du transitoire favorise l'oxydation et la formation des ions iodate (Mandler et al., [75] (1985)). L'influence du peroxyde d'hydrogène est sujette à débat. Mandler fait état d'un accroissement significatif de l'iodate après injection d' H_2O_2 tandis que Voillequé (1990) ne constate pas de modification.
- D'après Voillequé (1990), il ne peut être fait de lien direct entre la variabilité de la fraction volatile d'iode et la variabilité des concentrations en Bore (entre 200 et 1000 ppm), Lithium entre (0,1 et 1,8 ppm) et H_2 (entre 19 et 45 cm³/kg). Lors du pic d'iode, il a été observé, comme illustré sur la figure 56, une proportion élevée d'iode moléculaire ($> 20\%$) attribuée à la possible présence d' I_2 dans l'espace entre les pastilles combustibles et la gaine. Cette observation est à l'encontre de ce qui est communément admis, c'est-à-dire que l'iode se relâche du combustible sous forme d'iodure métallique et notamment CsI (NUREG/CR-5732) (Neeb, 1997). Une autre explication pourrait être due à la variation des conditions oxydantes du circuit primaire et notamment un apport d' O_2 .

⇒ Conclusion

Des données de la littérature, il apparaît que la chimie de l'iode dans le circuit primaire est complexe, avec une proportion d'espèces ioniques et volatiles très dépendante des conditions physico-chimiques. Les paramètres majeurs de la spéciation sont : la température, la concentration en iode, l'acidité, le potentiel redox et la présence d'impuretés. Au vu de toutes ces remarques et de la mise en évidence de ces nombreuses incertitudes, l'étude de sensibilité réalisée dans la section suivante semble nécessaire.

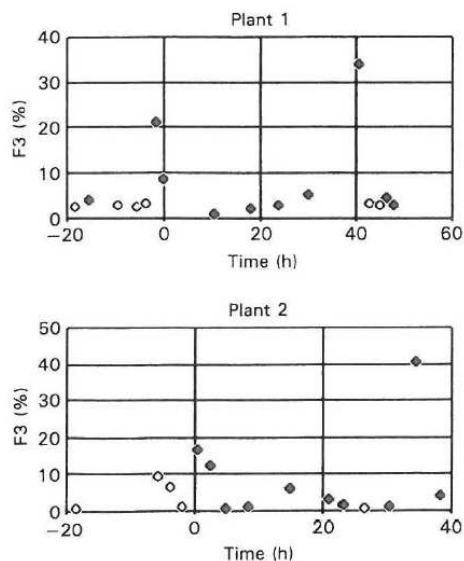


FIGURE 56 – Fraction d'iode moléculaire mesurée par Voillequé (1990), $t=0$ h correspond à l'arrêt du réacteur (les carrés blancs sont des mesures inférieures à la L.D).

Conditions	Réacteur	Régime	I ⁻	HOI	IO ₃ ⁻	I ₂	Référence
8 prélèvements sur différents BWR de 1972 à 1977 en régime normal et 4 en transitoire (arrêt)	BWR	normal	73 ± 3		25 ± 3	2,2 ± 0,7	Lin (1980)
		transitoire	3		97	< 1	
14 échantillons avant et après l'arrêt refroidis à température ambiante.	PWR ~500 MWe	normal pH~9,1	~99%			< 1% (L.D)	Mandler et al. (1985)
		Transitoire. Décroissance du pH à environ 6 Augmentation H ₂ O ₂	~65%			max ~35%	
5 échantillons sur différents PWR	PWR ~500 MWe	normal		min ~85%		max ~15%	Martucci (1973)
Prélèvement puis refroidissement à température ambiante Extractions successives avec CCl ₄ la composition en phase liquide – Mesures γ. Temps entre le prélèvement et la mesure inférieur de 30 min à 1 h	PWR 2 réacteurs : 1 et 2	Normal 1 pH~8,7 H ₂ ~35 cm ³ /kg	> 90%		< 5% (D.L)	< 5% (L.D)	Voillequé (1990)
		Normal 2 pH~7,5 H ₂ ~35 cm ³ /kg	> 90%		< 5% (D.L)	< 5% (L.D)	
		1-2 h après l'arrêt 1 pH~8,7	~85%		< 5% (D.L)	10-20%	
		1-2 h après l'arrêt 2 pH~7,1	~85%		< 5% (D.L)	10-20%	
		Transitoire 1 ~40h après arrêt T~50°C pH~6,3	/		~60%	30-40%	

FIGURE 57 – Analyses chimiques effectuées sur le circuit primaire en fonctionnement normal et transitoire

3 Spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire

3.1 Radiolyse de l'eau

En présence d'un rayonnement ionisant, la radiolyse de l'eau induit un ensemble de réactions chimiques qui déplacent l'équilibre entre les différentes espèces en solution. En effet, le rayonnement provenant de produits de fission est capable d'arracher un ou plusieurs électrons aux molécules d'eau et peut conduire à la création d'espèces très réactives, les radicaux libres. On distingue quatre catégories de rayonnement (dans les réacteurs nucléaires) :

- le rayonnement gamma (γ)
- le rayonnement alpha (α)
- le rayonnement beta (β^- , β^+)
- le rayonnement neutronique

Le rayonnement gamma, très énergétique (de l'ordre du MeV) interagit avec l'eau par effet Compton. Ce type d'interaction est lié au transfert d'énergie d'un photon lorsqu'il entre en collision avec un électron faiblement lié (ou libre). Il en résulte l'expulsion de l'électron et l'émission d'un autre photon d'énergie plus faible que le photon incident.

Les particules chargées cèdent une partie de leur énergie au milieu par le biais de l'interaction coulombienne. Ce dépôt d'énergie provoque soit une excitation des molécules soit une ionisation. Enfin, les neutrons interagissent avec le milieu par collisions élastiques. On recense deux catégories de neutrons, en fonction de leur énergie cinétique.

Les neutrons rapides (de l'ordre du MeV), provenant des réactions de fission, vont céder par une multitude de collisions une partie de leur énergie au milieu. Lorsque leur énergie tombe dans le domaine de l'énergie de Boltzmann ($E \approx k_B T$), c'est-à-dire de l'ordre de l'eV, ils ont subi l'étape de thermalisation (neutrons thermiques). La capacité d'un milieu à freiner les neutrons dépend principalement de sa composition atomique. En effet, les atomes d'hydrogène présents dans les molécules d'eau, de masse comparable à celle du neutron, confèrent à ce milieu un pouvoir modérateur très grand.

L'eau du circuit primaire des REP sert, d'une part à transporter la chaleur (fluide caloporteur), mais également à thermaliser les neutrons produits dans le coeur (modérateur). Lorsqu'un rayonnement ionisant traverse un milieu liquide, le dépôt d'énergie est localisé le long de la trajectoire de la particule créant ainsi une trace. La structure géométrique de ces traces dépend de l'intensité du rayonnement, et est organisée en différentes zones composées d'espèces très réactives appelées zones hétérogènes .

Les différents mécanismes de la radiolyse de l'eau ont été détaillés par Swiatla-Wojcik [77]. La radiolyse de l'eau comprend deux phases successives. La première phase, dite hétérogène, est composée de trois étapes :

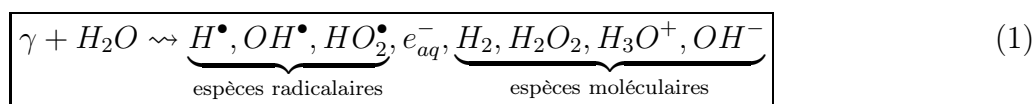
- l'étape physique
- l'étape physico-chimique
- l'étape de chimie hétérogène

L'étape physique, caractérisée par les phénomènes d'interaction rayonnement-matière, conduit la molécule d'eau soit dans un état excité, soit dans un état ionisé. Les différents modes de dissociation d'une molécule d'eau excitée sont présentés sur la figure 58. L'ionisation est le phénomène majoritaire lors de l'interaction avec un rayonnement. En effet, les énergies nécessaires pour arracher un électron à la molécule d'eau sont relativement faibles (quelques eV). L'électron extrait peut alors se recombinaison avec une molécule d'eau parente et former une molécule d'eau excitée. Il peut également ioniser d'autres molécules avant de se thermaliser et devenir un électron dit hydraté ou aqueux.

L'étape de chimie hétérogène est caractérisée par la formation de produits moléculaires localisés autour des traces de dépôts, puis la diffusion de ces espèces radicalaires de manière homogène dans la solution. Ces espèces sont appelées **produits primaires** de la radiolyse de l'eau et leur proportion peut être connue en calculant le rendement radiolytique. Il correspond à la quantité de produits primaires formés et répartis uniformément dans la solution par unité d'énergie déposée. Il s'exprime en $J.mol^{-1}$. Il dépend de la nature de la particule incidente, du pH, de la température du milieu,...

Pendant la phase homogène (deuxième niveau de la figure 58), les produits primaires peuvent réagir entre eux et avec les solutés présents dans la solution.

Au final, nous pouvons schématiser le processus de radiolyse de l'eau par l'équation suivante :



Les produits de la radiolyse de l'eau peuvent être calculés en modélisant l'ensemble des réactions élémentaires, chaque réaction étant caractérisée par une constante de vitesse qui est fonction de la température via l'énergie d'activation, en $kJ.mol^{-1}$. Dans le tableau 14, nous avons regroupé l'ensemble de ces réactions qui nous a permis de modéliser la radiolyse de l'eau dans le circuit primaire. Les constantes de vitesse sont exprimées sous la forme d'une relation d'Arrhénius :

$$k = k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (2)$$

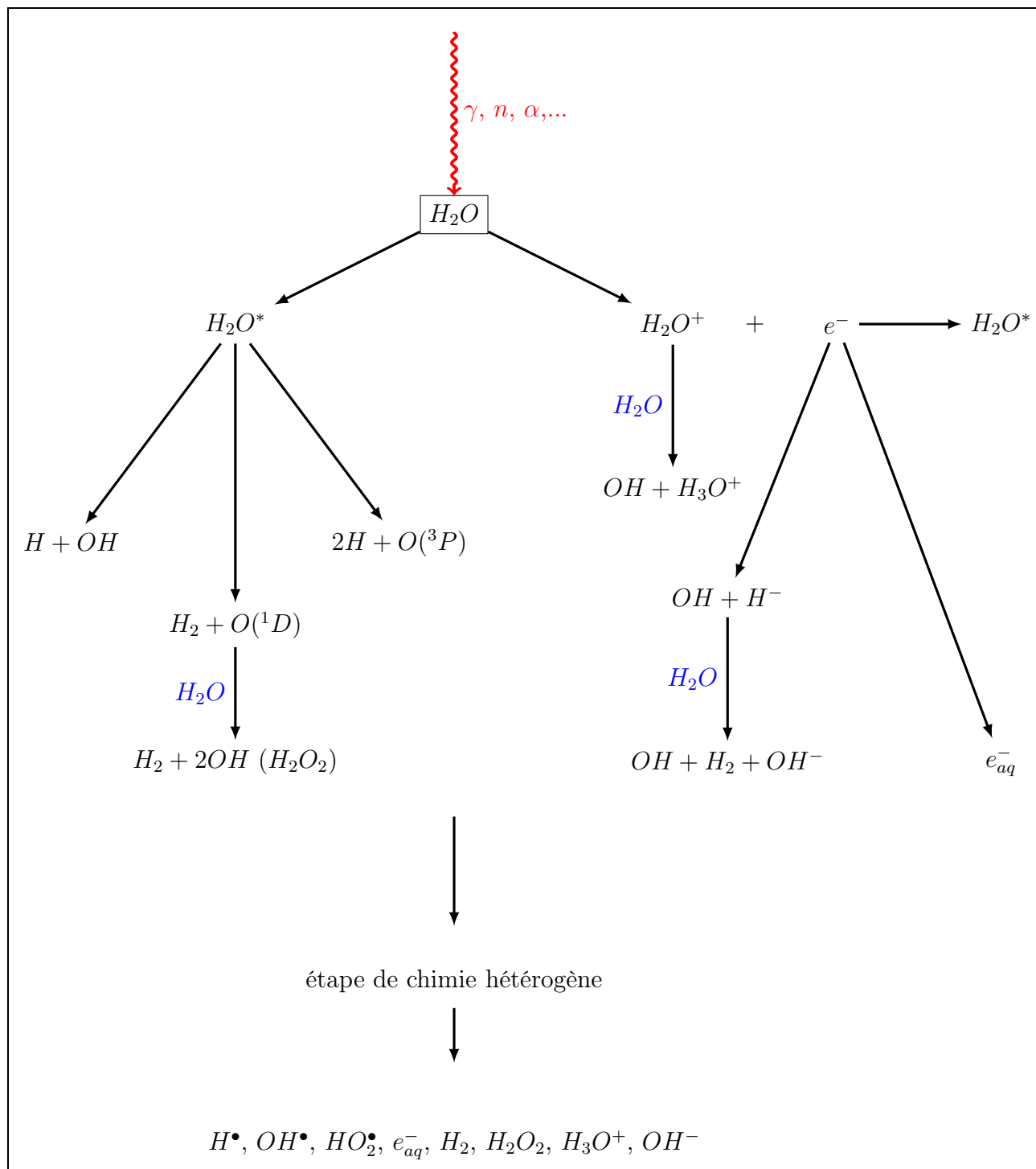


FIGURE 58 – Mécanismes de la phase physico-chimique et de chimie hétérogène de la radiolyse de l'eau [77]

TABLE 12 – Liste des réactions pour la radiolyse de l'eau [3]

num	Réactions	k (m ³ mol ⁻¹ s ⁻¹)	E _a (kJ.mol ⁻¹)
RE_1	OH + H ₂ → H + H ₂ O	3,74×10 ⁺⁰⁴	18,0
RE_2	OH + OH ₂ ⁻ → OH ₂ + OH ⁻	5,00×10 ⁺⁰⁶	12,6
RE_3	OH + H ₂ O ₂ → OH ₂ + H ₂ O	3,80×10 ⁺⁰⁴	14,0
RE_4	OH + O ₂ ⁻ → O ₂ + OH ⁻	9,96×10 ⁺⁰⁶	12,6
RE_5	OH + OH ₂ → O ₂ + H ₂ O	7,10×10 ⁺⁰⁶	12,6
RE_6	2 OH → H ₂ O ₂	5,30×10 ⁺⁰⁶	8,0
RE_7	OH + e ⁻ → OH ⁻	3,00×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_8	H + O ₂ → OH ₂	2,00×10 ⁺⁰⁷	14,0
RE_9	H + O ₂ ⁻ → OH ₂ ⁻	2,00×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_10	H + OH ₂ → H ₂ O ₂	2,00×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_11	H + H ₂ O ₂ → OH + H ₂ O	3,40×10 ⁺⁰⁴	13,6
RE_12	H + OH → H ₂ O	7,00×10 ⁺⁰⁶	12,6
RE_13	H + H → H ₂	7,90×10 ⁺⁰⁶	12,6
RE_14	e ⁻ + O ₂ ⁻ → O ₂ ⁻	1,94×10 ⁺⁰⁷	13,0
RE_15	e ⁻ + O ₂ ⁻ → OH ₂ ⁻ + OH ⁻	1,30×10 ⁺⁰⁷	18,8
RE_16	e ⁻ + OH ₂ → OH ₂ ⁻	2,00×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_17	e ⁻ + H → H ₂ + OH ⁻	2,50×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_18	e ⁻ + H ₂ O ₂ → OH + OH ⁻	1,14×10 ⁺⁰⁷	15,1
RE_19	e ⁻ + H ⁺ → H	2,30×10 ⁺⁰⁷	12,2
RE_20	2 e ⁻ + 2 H ₂ O → H ₂ + 2 OH ⁻	5,60×10 ⁺⁰⁶	20,5
RE_21	OH ₂ + O ₂ ⁻ → O ₂ + OH ₂ ⁻	9,50×10 ⁺⁰⁴	8,8
RE_22	2 OH ₂ → O ₂ + H ₂ O ₂	8,10×10 ⁺⁰²	24,7

num	Réactions	k (m ³ mol ⁻¹ s ⁻¹)	E _a (kJ.mol ⁻¹)
RE_23	OH ₂ + H ₂ O ₂ → O ₂ + OH + H ₂ O	3,70×10 ⁻⁰³	20,0
RE_24	OH ₂ → H ⁺ + O ₂ ⁻	7,00×10 ⁺⁰⁵	12,6
RE_25	H ⁺ + O ₂ ⁻ → OH ₂	4,50×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_26	H ₂ O ₂ → H ⁺ + OH ₂ ⁻	3,56×10 ⁻⁰²	12,6
RE_27	H ⁺ + OH ₂ ⁻ → H ₂ O ₂	2,00×10 ⁺⁰⁷	12,6
RE_28	H ⁺ + OH ⁻ → H ₂ O	1,40×10 ⁺⁰⁸	12,6
RE_29	H ₂ O → H ⁺ + OH ⁻	2,50×10 ⁻⁰⁵	45,4
RE_30	H + OH ⁻ → e ⁻ + H ₂ O	1,80×10 ⁺⁰⁷	26,0
RE_31	2 O ₂ ⁻ → O ₂ ⁻ + OH ₂ + OH ⁻	3,00×10 ⁻⁰⁴	12,6
RE_32	O ₂ ⁻ + H ₂ O ₂ → O ₂ + OH ⁻ + OH	1,60×10 ⁻⁰²	20,0
RE_33	O ⁻ + OH → OH ₂ ⁻	2,00×10 ⁺⁰⁷	7,7
RE_34	H ₂ O ₂ + O ⁻ → O ₂ ⁻ + H ₂ O	2,00×10 ⁺⁰⁵	15,6
RE_35	H ₂ + O ⁻ → OH ⁻ + H	8,00×10 ⁺⁰⁴	13,8
RE_36	OH ₂ ⁻ + O ⁻ → OH ⁻ + O ₂ ⁻	4,00×10 ⁺⁰⁵	18,8
RE_37	O ⁻ + H ₂ O → OH ⁻ + OH	1,70×10 ⁺⁰³	18,8
RE_38	e ⁻ + OH ₂ ⁻ → OH ⁻ + O ⁻	3,50×10 ⁺⁰⁶	15,4

⇒ Paramètres influençant les produits de radiolyse

Afin d'étudier l'influence des différents paramètres physiques (TEL (transfert d'énergie linéique), température, pH, ...) sur les espèces primaires de la radiolyse, il est nécessaire d'introduire la notion de rendement radiolytique, G . Ce rendement est défini comme étant le nombre d'espèces formées ou détruites pour une énergie absorbée par le milieu égale à 100 eV. Ce paramètre s'exprime en mol.J^{-1} .

Le transfert d'énergie linéique est défini comme la quantité d'énergie perdue par la particule dans le milieu par unité de longueur (J.m^{-1}). Ce paramètre dépend donc de la nature de la particule incidente et du milieu. Le rendement radiolytique en dépend directement. Pour un transfert d'énergie linéique très important, les rendements radicalaires sont faibles et les rendements moléculaires sont plus élevés.

Notons que les effets liés au débit de dose sont similaires aux effets liés au transfert d'énergie linéique. En effet, nous avons vu plus haut que le débit de dose correspond à une quantité d'énergie déposée dans le milieu par unité de temps et de masse.

Le second paramètre agissant sur la concentration des radicaux libres (rendement radiolytique primaire) est la température du milieu. Elliot et al. [78] ont étudié l'influence de la température sur le rendement radiolytique (pour des rayonnement γ) pour des températures maximum de 300 °C. Ils constatent que l'augmentation de la température du milieu conduit à une augmentation des espèces radicalaires aux dépens des espèces moléculaires.

Buxton [79] a également conduit des travaux portant sur l'influence de la température sur le rendement radiolytique (G) des principales espèces en présence d'un rayonnement. Il constate que, jusqu'à des températures élevées (≈ 300 °C), le rendement radiolytique du radical OH augmente avec la température et le rendement radiolytique du peroxyde d'oxygène H_2O_2 diminue. En effet, à haute température, le peroxyde d'hydrogène se décompose. Les rendements radiolytiques du dihydrogène et des électrons solvatés est faiblement dépendant de la température.

Pour les hautes températures, il est suggéré que la concentration des espèces radicalaires dépend de la différence entre leur vitesse de diffusion et la vitesse de recombinaison inter-grappes, cette différence ayant tendance à augmenter.

Les variations de G avec la température prises en compte sont les suivantes :

$$G(\text{H}_2) = 0.43 + 0.69 \cdot 10^{-3}(T - 273.1)$$

$$G(\text{H}) = 0.54 + 1.28 \cdot 10^{-3}(T - 273.1)$$

$$G(\text{OH}) = 2.64 + 7.17 \cdot 10^{-3}(T - 273.1)$$

$$G(\text{H}_2\text{O}_2) = 0.72 - 1.49 \cdot 10^{-3}(T - 273.1)$$

$$G(e^-) = 2.56 + 3.4 \cdot 10^{-3}(T - 273.1)$$

L'effet de la pression sur le rendement radiolytique est encore mal connu. Hentz et al. [80] ont mené des expériences de radiolyse dans différentes solutions (solution aqueuse en présence de

sulfate de fer, bicarbonate de sodium,...) et arrivent à la conclusion que, dans leur gamme de pression (jusqu'à 60 bar), le rendement radiolytique n'est pas affecté.

En ce qui concerne l'impact du pH, Buxton et al. [81] ont montré que, sur la gamme comprise entre pH= 3 et pH= 9, le rendement radiolytique ne varie pas. Afin de contrôler la réactivité du coeur, de l'acide borique (H_3BO_3) est injecté dans l'eau du circuit primaire (absorbeur de neutrons). L'isotope ^{10}B possède une très grande section efficace de réaction pour les neutrons thermiques. Le Bore n'a pas été pris en compte dans le modèle de radiolyse de l'eau. En effet, il a été montré expérimentalement (Pastina [4]) que les cinétiques de réaction entre les produits de radiolyse de l'eau et le Bore sont très lentes.

La réaction nucléaire de capture d'un neutron par le Bore produit un atome de Lithium (7Li) et une particule α , (4He). Ce poison neutronique entraîne une acidification de l'eau du circuit primaire. Dans le but de neutraliser cet acide, on injecte de l'hydroxyde de Lithium (7LiOH). Cette base est choisie car le Lithium est déjà présent dans l'eau suite à la réaction nucléaire entre le Bore et les neutrons thermiques. Finalement, l'hydroxyde de Lithium (≈ 1 ppm) est ajusté au cours du cycle du combustible afin de garder un pH proche de 7.

En résumé, les deux paramètres clés pour caractériser la radiolyse de l'eau sont le TEL ou plutôt, dans le cadre de notre étude, le débit de dose et la température liquide du milieu, sachant que le pH est fixé.

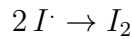
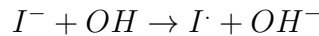
3.2 Radiolyse de l'iode

Intéressons nous à présent aux réactions liées à la radiolyse de l'iode et aux réactions entre l'iode et les espèces réactives produites par la radiolyse de l'eau (radicaux libres). Nous avons vu, dans l'introduction de cette partie, qu'une faible quantité d'iode est transférée des crayons combustible vers l'eau du circuit primaire.

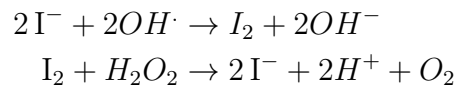
Des données expérimentales [73] montrent que, la forme chimique majoritaire de l'iode relâchée en fonctionnement normal depuis le combustible dans l'eau du circuit primaire est l'iode sous forme ionique I^- , la proportion de I_2 étant inférieure à 2 %.

On trouve dans la littérature des revues regroupant un très grand nombre de réactions faisant intervenir l'iode et les radicaux libres. Nous avons utilisé une base de données proposées par Wren et al. [3]. Toutes les réactions prises en compte dans le cadre de cette étude sont regroupées dans les tableaux suivants (14). En raison du très grand nombre de réactions présent dans les différents schémas réactionnels et au vu des observations faites dans la section 2, nous nous limitons à une description synthétique des principales réactions conduisant à la formation de l'acide hypoïodeux, espèce volatile de l'iode majoritaire dans nos conditions. La formation de cette espèce est gouvernée principalement par trois réactions.

La première réaction correspond à l'**oxydation radiolytique** de I^- par le radical OH. Cette oxydation conduit à la formation d'iode moléculaire, I_2 . Les réactions globales décrivant l'oxydation radiolytique du I^- en I_2 sont :



L'oxydation radiolytique de I^- en I_2 résulte de la compétition entre l'oxydation des iodures par les radicaux hydroxyles et la réduction de l'iode moléculaire par le peroxyde d'hydrogène.



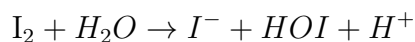
La réaction d'oxydation radiolytique a été étudiée sur la gamme de température 25 °C-130 °C [82], car elle contribue à la production d'iode volatile dans l'enceinte de confinement. Pour des températures plus élevées, typiquement 300 °C, il n'existe pas de données présentes dans la littérature.

Cette réaction dépend principalement de la concentration du radical hydroxyle. Comme nous l'avons vu précédemment, la concentration de ce radical est directement liée au débit de dose. Elle dépend également du rendement radiolytique noté G, qui représente le nombre de molécules produites ou détruites lorsque 100 eV sont absorbés dans le milieu. La relation entre la concentration de ce radical, le débit de dose et G est :

$$[OH \cdot] = G \text{ dose } \rho_{\text{liq}} \quad (3)$$

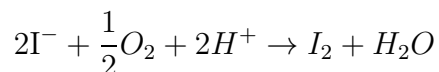
où ρ_{liq} est la masse volumique de l'eau, la variable dose exprimée en Gy et G est exprimé en mol.J⁻¹.

La seconde réaction est l'**hydrolyse de l'iode moléculaire** donnée par :

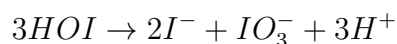


Cette réaction est très dépendante de la température et du pH. Il s'agit d'une réaction très rapide qui conduit à la décomposition de I_2 en milieu basique.

La troisième réaction correspond à l'**oxydation thermique du I^- en I_2** par l'oxygène dissout :



Cette réaction est lente et peu significative dans les conditions du primaire, compte tenu de la faible teneur en oxygène. Enfin, la dernière réaction essentielle pour comprendre le comportement de l'iode est la dismutation de l'acide hypoïodeux en iodure et iodate telle que :



Cette réaction dépend fortement du pH. A terme, nous voyons que l'intégralité de l'acide hypoïodeux va se transformer en I^- et en IO_3^- .

En résumé, nous constatons que la présence de l'acide hypoïodeux résulte de la compétition entre la formation transitoire de I_2 et la dismutation. Le paramètre essentiel pour caractériser ce système réactionnel est le degré d'oxydation du milieu considéré. En régime permanent et en fonction des conditions aux limites (pH, $[O_2]$,...), il peut subsister une concentration de HOI en solution.

TABLE 13 – Liste des réactions pour la radiolyse de l'iode [3]

num	Réactions	k_0 ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_a ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	$k_{0,\text{retour}}$ ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_{ab} ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)
RI_1	$\text{I}_2\text{OH}^- \rightarrow \text{HOI} + \text{I}^-$	$1,30 \times 10^{+06}$	-	$4,33 \times 10^{+05}$	-
RI_2	$2 \text{HOI} \rightarrow \text{HIO}_2 + \text{I}^- + \text{H}^+$	$6,00 \times 10^{-03}$	-	$1,70 \times 10^{+04}$	-
RI_3	$\text{HOI} + \text{IO}^- \rightarrow \text{IO}_2^- + \text{I}^- + \text{H}^+$	$1,00 \times 10^{-02}$	-	-	-
RI_4	$2 \text{IO}^- \rightarrow \text{IO}_2^- + \text{I}^-$	$2,40 \times 10^{-05}$	-	$1,00 \times 10^{-03}$	-
RI_5	$\text{I}_2\text{OH}^- + \text{IO}^- \rightarrow \text{IO}_2^- + 2\text{I}^- + \text{H}^+$	$5,25 \times 10^{-03}$	-	-	-
RI_6	$\text{HIO}_2 + \text{HOI} \rightarrow \text{IO}_3^- + \text{I}^- + 2 \text{H}^+$	$2,40 \times 10^{-01}$	-	$5,80 \times 10^{-10}$	-
RI_7	$\text{IO}_2^- + \text{IO}^- \rightarrow \text{IO}_3^- + \text{I}^-$	$1,00 \times 10^{-05}$	-	-	-
RI_8	$\text{IO}_2^- + \text{I}_2\text{OH}^- \rightarrow \text{IO}_3^- + 2\text{I}^- + \text{H}^+$	$2,50 \times 10^{-02}$	-	-	-
RI_9	$\text{HOI} + \text{HIO}_2 + \text{I}^- \rightarrow 2\text{HOI} + \text{IO}^-$	$1,80 \times 10^{+09}$	-	-	-
RI_10	$\text{HIO}_2 \rightarrow \text{IO}_2^- + \text{H}^+$	$1,00 \times 10^{+01}$	-	$1,00 \times 10^{+08}$	-
RI_11	$\text{HOI} \rightarrow \text{IO}^- + \text{H}^+$	$1,00 \times 10^{+10}$	-	$1,00 \times 10^{+07}$	-
RI_12	$\text{I} + \text{e}^- \rightarrow \text{I}^-$	$2,40 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_13	$\text{I}_2 + \text{e}^- \rightarrow \text{I}_2^-$	$5,10 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_14	$\text{I}_2 + 2\text{e}^- \rightarrow 2 \text{I}^-$	$1,30 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_15	$\text{HOI} + \text{e}^- \rightarrow \text{I} + \text{OH}^-$	$1,90 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_16	$\text{I} + \text{H} \rightarrow \text{I}^- + \text{H}^+$	$2,70 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_17	$\text{I}_2 + \text{H} \rightarrow \text{I}_2^- + \text{H}^+$	$3,50 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_18	$\text{I}_2^- + \text{H} \rightarrow 2\text{I}^- + \text{H}^+$	$1,80 \times 10^{+04}$	22,2	-	-

num	Réactions	k_0 ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_a ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	$k_{0,\text{retour}}$ ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_{ab} ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)
RI_19	$\text{I}^- + \text{H} \rightarrow \text{HI}^-$	$2,50 \times 10^{+05}$	1,8	-	-
RI_20	$\text{HOI}^- + \text{H} \rightarrow \text{I}^- + \text{H}_2\text{O}$	$4,40 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_21	$\text{IO}_2^- + \text{O}_2^- \rightarrow \text{IO} + 2 \text{OH}^- + \text{O}_2$	$1,00 \times 10^{+04}$	18,8	-	-
RI_22	$\text{I}_2 + \text{O}_2^- \rightarrow \text{I}_2^- + \text{O}_2$	-	-	-	-
RI_23	$\text{HOI} + \text{O}_2^- \rightarrow \text{OH}^- + \text{I} + \text{O}_2$	$1,00 \times 10^{+03}$	18,8	-	-
RI_24	$\text{I}_2^- + \text{O}_2^- \rightarrow \text{O}_2 + 2\text{I}^-$	$3,00 \times 10^{+06}$	18,8	-	-
RI_25	$\text{IO} + \text{O}_2^- \rightarrow \text{IO}^- + \text{O}_2$	$8,00 \times 10^{+04}$	18,8	-	-
RI_26	$\text{IO} + \text{O}_2^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{HOI} + \text{O}_2 + \text{OH}^-$	$1,00 \times 10^{+06}$	-	-	-
RI_27	$\text{IO}_3^- + \text{O}_2^- \rightarrow \text{HIO}_3^- + \text{O}_2 + \text{OH}^-$	$5,00 \times 10^{+01}$	-	-	-
RI_28	$\text{I}_2^- + \text{HO}_2 \rightarrow \text{I}_2 + \text{HO}_2^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_29	$\text{HOI} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{I} + \text{O}_2 + \text{H}_2\text{O}$	$1,00 \times 10^{+02}$	18,8	-	-
RI_30	$\text{IO}_2^- + \text{HO}_2 \rightarrow \text{IO} + \text{OH}^- + \text{O}_2$	$1,00 \times 10^{+04}$	18,8	-	-
RI_31	$\text{HO}_2 + \text{I}_2 \rightarrow \text{H}^+ + \text{O}_2 + \text{I}_2^-$	$1,80 \times 10^{+04}$	18,8	-	-
RI_32	$\text{I} + \text{HO} \rightarrow \text{HOI}$	$1,60 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_33	$\text{HOI} + \text{OH} \rightarrow \text{IO} + \text{H}_2\text{O}$	$7,00 \times 10^{+06}$	18,8	-	-
RI_34	$\text{IO} + \text{OH} \rightarrow \text{HOI}_2$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_35	$\text{IO}_2 + \text{OH} \rightarrow \text{H}^+ + \text{IO}_3^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_36	$\text{I}^- + \text{OH} \rightarrow \text{HOI}^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	$1,13 \times 10^{+06}$	18,8
RI_37	$\text{I}_2 + \text{OH} \rightarrow \text{HOI} + \text{I}$	$1,10 \times 10^{+07}$	18,8	-	-

num	Réactions	k_0 ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_a ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	$k_{0,\text{retour}}$ ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_{ab} ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)
RI_38	$\text{IO}_3^- + \text{OH}^- \rightarrow \text{IO}_3 + \text{OH}^-$	$1,00 \times 10^{+02}$	18,8	-	-
RI_39	$\text{HOI} + \text{OH}^- \rightarrow \text{HOI} + \text{OH}^-$	$2,70 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_40	$\text{HIO}_3^- + \text{OH}^- \rightarrow \text{IO}_3^- + \text{H}_2\text{O}$	$1,00 \times 10^{+06}$	-	-	-
RI_41	$\text{I}_2^- + \text{OH}^- \rightarrow \text{I}_2 + \text{OH}^-$	$3,80 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_42	$\text{I}^- + \text{O}^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{I} + 2\text{OH}^-$	$2,60 \times 10^{+06}$	18,8	-	-
RI_43	$\text{IO}^- + \text{O}^- \rightarrow \text{IO} + 2\text{OH}^-$	$6,00 \times 10^{+06}$	18,8	-	-
RI_44	$\text{IO}_3^- + \text{O}^- \rightarrow \text{IO}_3 + 2 \text{OH}^-$	$2,90 \times 10^{+05}$	18,8	-	-
RI_45	$\text{I}^- + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{OI}^- + \text{H}_2\text{O}$	-	-	-	-
RI_46	$\text{HI}_2\text{O}^- + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{HOI}_2 + \text{I}^- + \text{H}_2\text{O}$	$2,25 \times 10^{+03}$	39,0	$1,00 \times 10^{+04}$	101,0
RI_47	$\text{HOI}_2 + \text{OH}^- \rightarrow \text{I}^- + \text{O}_2 + \text{H}_2\text{O}$	$2,00 \times 10^{+09}$	68,0	-	-
RI_48	$\text{IO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}^+ + \text{IO}_3^- + \text{HO}_2$	$1,00 \times 10^{+06}$	18,8	-	-
RI_49	$\text{I} + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}^+ + \text{I}^- + \text{HO}_2$	3,00	18,8	-	-
RI_50	$\text{I} + \text{I}^- \rightarrow \text{I}_2^-$	$1,20 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_51	$\text{HOI}^- + \text{I}^- \rightarrow \text{I}_2^- + \text{OH}^-$	$2,50 \times 10^{+01}$	18,8	-	-
RI_52	$\text{HOI}^- \rightarrow \text{I} + \text{OH}^-$	$1,20 \times 10^{+08}$	18,8	-	-
RI_53	$\text{H}^+ + \text{O}_2 + \text{I}_2^- \rightarrow \text{HO}_2 + \text{I}_2$	$6,00 \times 10^{+02}$	18,8	-	-
RI_54	$2 \text{I} \rightarrow \text{I}_2$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_55	$\text{HOI} + \text{I}_2^- \rightarrow 2 \text{I}^- + \text{IO} + \text{H}^+$	$1,00 \times 10^{+02}$	18,8	-	-
RI_56	$\text{IO}_3 + \text{I}^- \rightarrow \text{IO}_2^- + \text{IO}$	$1,00 \times 10^{+01}$	18,8	-	-

num	Réactions	k_0 ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_a ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	$k_{0,\text{retour}}$ ($\text{m}^{3(n-1)}\text{mol}^{(n-1)}\text{s}^{-1}$)	E_{ab} ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)
RI_57	$\text{IO}_2 + \text{I}^- \rightarrow \text{I}_2 + \text{O}_2^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_58	$\text{HI}^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + \text{OH}^- + \text{I}$	$1,00 \times 10^{+03}$	18,8	-	-
RI_59	$\text{HI}^- + \text{H}^+ \rightarrow \text{H}_2 + \text{I}$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_60	$\text{I} + \text{HOI} \rightarrow \text{I}_2 + \text{OH}^-$	$2,30 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_61	$\text{HOI}^- + \text{HOI}^- \rightarrow \text{I}_2 + 2 \text{OH}^-$	$2,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_62	$2 \text{IO} \rightarrow \text{I}_2\text{O}_2$	$1,50 \times 10^{+06}$	18,8	-	-
RI_63	$\text{I}_2\text{O}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{IO}_2^- + \text{HOI} + \text{H}^+$	$1,00 \times 10^{+10}$	-	$1,00 \times 10^{+01}$	18,8
RI_64	$\text{IO} + \text{IO}_2^- \rightarrow \text{IO}_2 + \text{IO}^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_65	$\text{IO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{HOI}_3^- + \text{H}^+$	$5,50 \times 10^{+04}$	18,8	-	-
RI_66	$2 \text{HOI}_3^- \rightarrow \text{IO}_3^- + \text{IO}_2^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	-	$1,00 \times 10^{-01}$	18,8
RI_67	$\text{I} + \text{OH}^- \rightarrow \text{I} + \text{OH}^-$	$1,00 \times 10^{+07}$	18,8	-	-
RI_68	$\text{IO} + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{HOI} + \text{HO}_2$	3,00	18,8	-	-

3.3 Prise en compte des impuretés (Fe, Cu)

Toutes les surfaces internes du circuit primaire sont en contact avec le fluide caloporteur à haute température (≈ 300 °C). L'eau du circuit primaire circule également entre les différents crayons de combustible composant le coeur du réacteur où le rayonnement est très intense. Dans ces conditions, la corrosion est un problème majeur. Les différentes surfaces du circuit primaire (surface de la conduite, cuve, crayons combustible,...) sont soumises à ce phénomène à des degrés différents en fonction de l'irradiation, de la température, des espèces chimiques dissoutes,...

Afin de minimiser cet effet, les surfaces internes de la conduite subissent une étape de passivation (formation d'une couche d'oxyde qui diminue la vitesse de corrosion). Les crayons de combustible sont protégés de la corrosion par l'alliage qui compose la gaine, le Zircaloy-4. Le tableau suivant indique la composition moyenne de cet alliage :

Zr (%)	Sn (%)	Fe (%)	O	Cr (%)	Ni (%)
98,0-98,5	1,2-1,7	0,18	0,12	0,07	0,007

TABLE 14 – Composition moyenne de l'alliage Zircaloy-4

L'acier de la cuve est principalement composée de Fer, de Chrome et de Nickel. On trouve également différents éléments comme le Cuivre, sous forme de traces. Enfin, la plus grande surface développée dans le circuit primaire en contact avec le fluide caloporteur se situe au niveau du faisceau tubulaire des générateurs de vapeur. Les tubes GV sont constitués d'Inconel. Cet alliage est composé principalement de Nickel de Chrome et de Fer.

Dans le cadre de cette étude, et au vu des données présentes dans la littérature concernant les concentrations de ces éléments dissouts, mesurées dans le circuit primaire, nous avons tenu compte du Fer et du Cuivre. Les différentes réactions d'oxydation du Fer et de réduction du Cuivre répertoriées dans la littérature sont regroupées dans la tableau 15.

TABLE 15 – Liste des réactions pour les impuretés (pour le Fer [3], pour le Cuivre [4])

num	Réactions	k_0 (mol,m,s)	Ea (kJ.mol ⁻¹)	$k_{0,retour}$ (mol,m,s)
RM_1	$Fe^{2+} + OH \rightarrow Fe^{3+} + OH^-$	$3,00 \times 10^{+06}$	15,1	-
RM_2	$Fe(OH)^{2+} + O_2^- \rightarrow Fe(OH)^{++} + O_2$	$1,50 \times 10^{+05}$	15,1	$1,00 \times 10^{+06}$
RM_3	$Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + OH + OH^-$	$5,50 \times 10^{+06}$	85,2	-
RM_4	$Fe^{3+} + H \rightarrow Fe^{2+} + H^+$	$1,00 \times 10^{+05}$	22,2	-
RM_5	$Fe^{3+} + e^- \rightarrow Fe^{2+}$	$6,00 \times 10^{+07}$	15,1	-
RM_6	$Fe^{2+} + O_2^- \rightarrow Fe^{3+} + H_2O_2 + 2OH^-$	$1,00 \times 10^{+04}$	15,1	-
RM_7	$Fe^{2+} + HO_2 \rightarrow Fe^{3+} + H_2O_2 + OH^-$	$1,20 \times 10^{+03}$	15,1	-
RM_8	$Fe^{3+} + HO_2 \rightarrow Fe^{2+} + H^+ + O_2$	$2,00 \times 10^{+01}$	15,1	-
RM_9	$Cu^{2+} + OH \rightarrow Cu(OH)^{2+}$	$3,50 \times 10^{+05}$	-	-
RM_10	$Cu^{2+} + e^- \rightarrow Cu^+$	$3,90 \times 10^{+07}$	-	-
RM_11	$Cu^{2+} + H \rightarrow Cu^+ + H^+$	$9,10 \times 10^{+04}$	-	-
RM_12	$Cu^{2+} + HO_2 \rightarrow Cu^+ + H^+ + O_2$	$1,20 \times 10^{+06}$	-	-
RM_13	$Cu^{2+} + O_2^- \rightarrow Cu^+ + O_2$	$1,10 \times 10^{+07}$	-	-
RM_14	$Cu^+ + O_2^- + (2H_2O) \rightarrow Cu^{2+} + H_2O_2 + 2 OH^-$	$1,10 \times 10^{+07}$	-	-
RM_15	$Cu^+ + HO_2 \rightarrow Cu^{2+} + HO_2^-$	$2,30 \times 10^{+06}$	-	-
RM_16	$Cu^+ + e^- \rightarrow Cu$	$2,70 \times 10^{+07}$	-	-
RM_17	$Cu^+ + OH \rightarrow Cu^{2+} + OH^-$	$3,00 \times 10^{+06}$	-	-
RM_18	$Cu^+ + H \rightarrow CuH^+$	$5,00 \times 10^{+06}$	-	-

3.4 Calcul de la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire en régime permanent

Toutes les réactions, regroupées dans les tableaux précédents, ont été intégrées dans un solveur numérique afin de calculer la spéciation chimique de l'iode en régime permanent. L'objectif de cette étude est de dégager les grandes tendances quant aux différentes formes chimiques de l'iode dans les conditions de fonctionnement normal. La constante directe de la réaction est modélisée tandis que la réaction retour est calculée grâce à la constante d'équilibre de la réaction, elle-même calculée à partir des enthalpies libres standard des produits et des réactifs.

La difficulté majeure pour réaliser des calculs de spéciation dans ces conditions est le manque de connaissance concernant les données d'entrée du calcul. Afin de calculer la concentration en iode présente dans l'eau du circuit primaire, nous utilisons les spectres d'activité communiqués par EDF. Ces spectres regroupent les activités associées aux différents isotopes instables. Ces mesures sont effectuées directement dans le circuit primaire en fonctionnement normal et en régime transitoire (transitoire de puissance). La masse d'iode initialement en solution est déduite de la quantité d'iode actif en tenant compte de la proportion d'isotopes stables (95 % de l'inventaire isotopique du coeur) qui est obtenue par un calcul de neutronique. Nous obtenons, en régime permanent, une concentration d'iode (équivalent I^-) égale à $5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$. Le débit de dose est directement calculé à partir du spectre EDF. La valeur calculée est égale à $2,0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$, et uniforme dans tout le circuit primaire.

En ce qui concerne la concentration de dioxygène dissout dans l'eau du circuit primaire, la valeur retenue est $2,3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$ (données EDF). Les concentrations des impuretés retenues dans le cadre de ce travail sont : $1,0 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$ pour le Fer (Fe^{2+}) et $5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$ pour le Cuivre (Cu^{2+}). Ces valeurs sont des ordres de grandeur des valeurs expérimentales mesurées dans le circuit primaire.

Nous avons vu précédemment que le pH de l'eau du circuit primaire est maintenu quasiment constant autour de la valeur 7,2. La température du liquide est imposée par la thermohydraulique du coeur. En régime permanent, la température liquide est d'environ $300 \text{ }^\circ\text{C}$.

Compte tenu de l'incertitude relative aux paramètres pré-cités, une étude d'impact sur la spéciation de l'iode a été réalisée. Les graphiques suivants présentent les pourcentages des différentes formes d'iode normalisés par rapport à l'inventaire en iode dans le circuit primaire.

Cas n°1 : Conditions de référence pour la calcul de la spéciation de l'iode en régime permanent

Le premier cas décrit correspond au cas de référence, c'est-à-dire celui effectué avec les conditions d'entrée décrites précédemment. Nous observons la présence de différentes formes chimiques de l'iode potentiellement volatiles. Nous trouvons pour ces espèces, majoritairement l'acide hypoïodeux HOI. En proportions plus faibles, nous observons des iodures d'oxygène IO, des trioxydes d'iode IO_3 , et de l'iode atomique I. En ce qui concerne les espèces ioniques, nous constatons la présence d'iodates, IO_3^- et en plus faible proportion du I^- . Comparée à l'hypothèse de la présence de I^- uniquement, la spéciation de l'iode apparaît plus complexe.

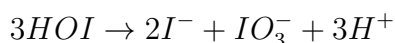
Cas n°2 : Influence du débit de dose sur la spéciation de l'iode en régime permanent

Le premier test effectué sur le calcul de la spéciation consiste à modifier le débit de dose. Nous remarquons que pour des débits de dose relativement faibles, (compris entre $2,0 \cdot 10^{-8} \text{ Gy.s}^{-1}$ et $2,0 \cdot 10^{-6} \text{ Gy.s}^{-1}$), seulement deux espèces sont présentes : l'iode injecté sous forme de I^- et l'acide hypoïodeux en plus grande proportion ($\frac{2}{3}$). Pour des débits de dose plus élevés, nous observons que la proportion de ces deux espèces a considérablement diminué au profit

des iodates. En effet, plus le débit de dose est important et plus le milieu devient oxydant (production importante de radicaux libres) ce qui favorise la création de IO_3^- , espèce d'iode la plus oxydée.

Cas n °3 : Influence de la température sur la spéciation de l'iode en régime permanent

Etudions à présent l'influence de la température du milieu sur la spéciation de l'iode. On observe une décroissance de la proportion de HOI au profit du IO_3^- lorsque la température augmente. Cette tendance peut s'expliquer par un accroissement du potentiel oxydant de l'eau avec la température ($G(\text{OH})$ augmente avec T) et une constante de vitesse accélérée pour la réaction globale :



Cas n °4 : Influence du pH sur la spéciation de l'iode en régime permanent

Notons que les quatre paramètres susceptibles d'évoluer au cours d'un transitoire sont le débit de dose, la température du liquide primaire, la concentration d'iode (pic d'iode) et la concentration de dioxygène dissout. Cependant, nous avons réalisé des tests sur l'influence du pH sur une gamme relative étroite. Nous observons que lorsque le milieu est plus alcalin ($\text{pH} = 8,2$), la proportion de IO_3^- est plus importante à cause du déplacement de la réaction de décomposition du HOI.

Cas n °5 : Influence de la concentration de I^- sur la spéciation de l'iode en régime permanent

Nous avons vu dans l'introduction de ce chapitre, que lors d'un transitoire (de pression, de température ou de puissance), le transfert des crayons de combustible vers l'eau du circuit primaire est plus intense. Ceci se traduit par une augmentation de la concentration d'iode dans le circuit primaire. Nous avons donc étudié l'influence de cette concentration sur la spéciation de l'iode en régime permanent. Pour des concentrations très faibles en iode ($< 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$), nous sommes dans le cas de la chimie de traces, on observe que la présence de radicaux est plus marquée. Pour des concentrations plus élevées que la concentration de référence ($5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$), on observe une augmentation de la proportion de HOI car on déplace l'équilibre dans le sens retour de la réaction globale.

Cas n °6 : Influence de la concentration de O_2 sur la spéciation de l'iode en régime permanent

Nous avons également testé l'influence du dioxygène dissout dans l'eau. Le premier cas correspond à une concentration nulle de dioxygène. Nous constatons que l'espèce majoritaire est I^- . Nous observons également la présence de HOI. Une faible quantité d'oxygène produit par la radiolyse de l'eau est présente et permet de former de l'iode moléculaire qui conduit ensuite à la production de l'acide hypoïodeux. On peut constater qu'au delà d'un certain seuil en oxygène, de l'ordre de la concentration en iode, l'impact de la variation de concentration de O_2 reste minime.

Cas n °7 et n °8 : Influence de la concentration de Fe^{2+} et de Cu^{2+} sur la spéciation de l'iode en régime permanent

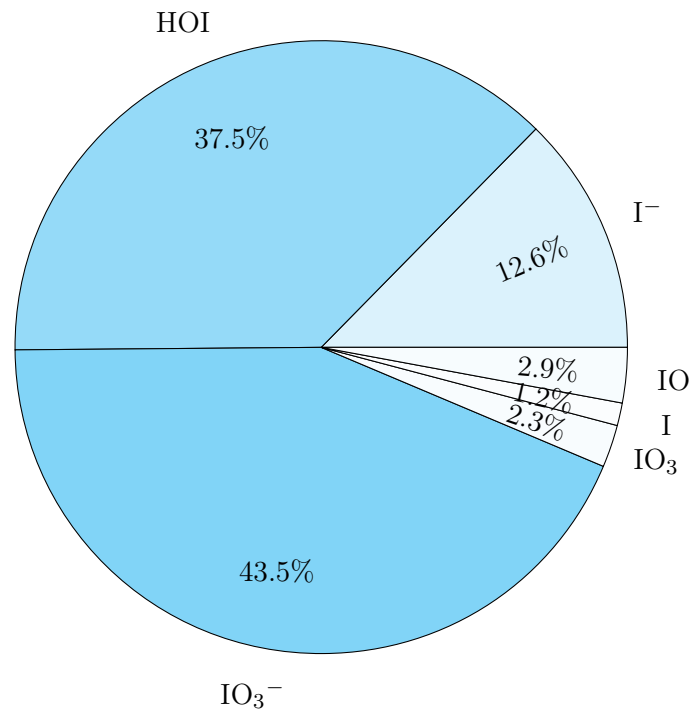
Enfin, les deux derniers tests de sensibilité réalisés sont dédiés à l'influence des impuretés présentes dans l'eau du circuit primaire. Nous avons testé dans un premier temps l'influence du Fer. Il est injecté sous forme de Fe^{2+} . Dans ces conditions, nous observons une oxydation du

Fe^{2+} en Fe^{3+} par les radicaux libres issus de la radiolyse de l'eau. En présence de Fe^{2+} , le milieu est donc légèrement moins oxydant. Nous observons que pour la concentration de Fer la plus élevée ($[\text{Fe}^{2+}] = 1,0 \cdot 10^{-4} \text{ mol.m}^{-3}$) l'impact est plus significatif et la proportion de IO_3^- diminue. Pour des variations modérées en Fe^{2+} , nous retrouvons sensiblement la même répartition.

La concentration initiale de Cuivre est identique à la concentration de I^- . Nous remarquons comme pour le Fer que l'impact sur la partition $\text{HOI-IO}_3^--\text{I}^-$ est très faible.

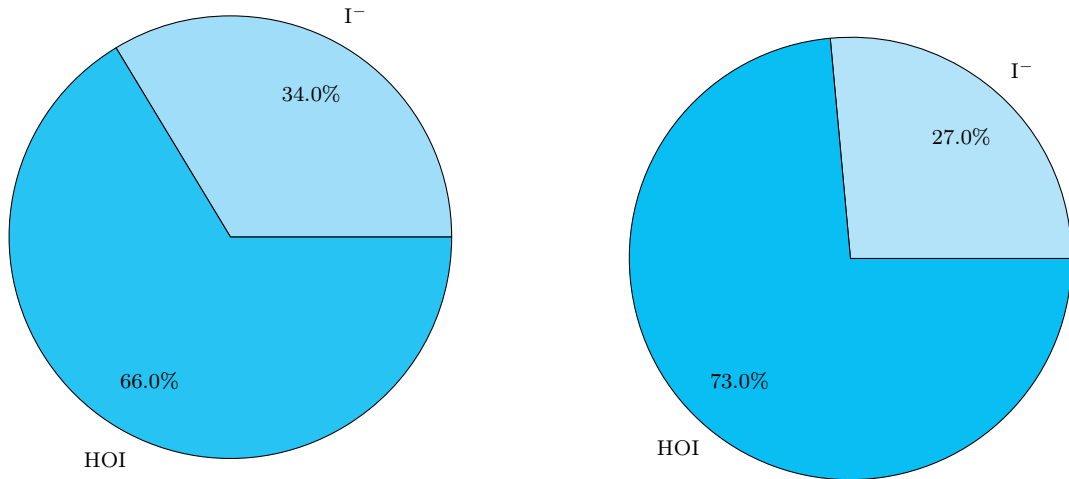
En résumé, la présence de Fer et de Cuivre a un impact relativement modéré sur la partition $\text{HOI-IO}_3^--\text{I}^-$.

A l'issue de ces calculs de spéciation qui tiennent compte des sources d'incertitude, il apparaît sans ambiguïté que les trois espèces majoritaires sont I^- , HOI et IO_3^- . Pour ces trois espèces, seul HOI est susceptible de se volatiliser en raison de son caractère moléculaire. La proportion de HOI peut varier de 10 % à 50 % de l'inventaire en iode dans le circuit primaire. Après avoir caractérisé la chimie du primaire, pour calculer le transfert de l'iode vers la phase gazeuse du secondaire lors du flashing, il faut connaître les coefficients de partage des différentes espèces volatiles présentes, ce qui est l'objet du paragraphe suivant.

Cas n °1 : référence

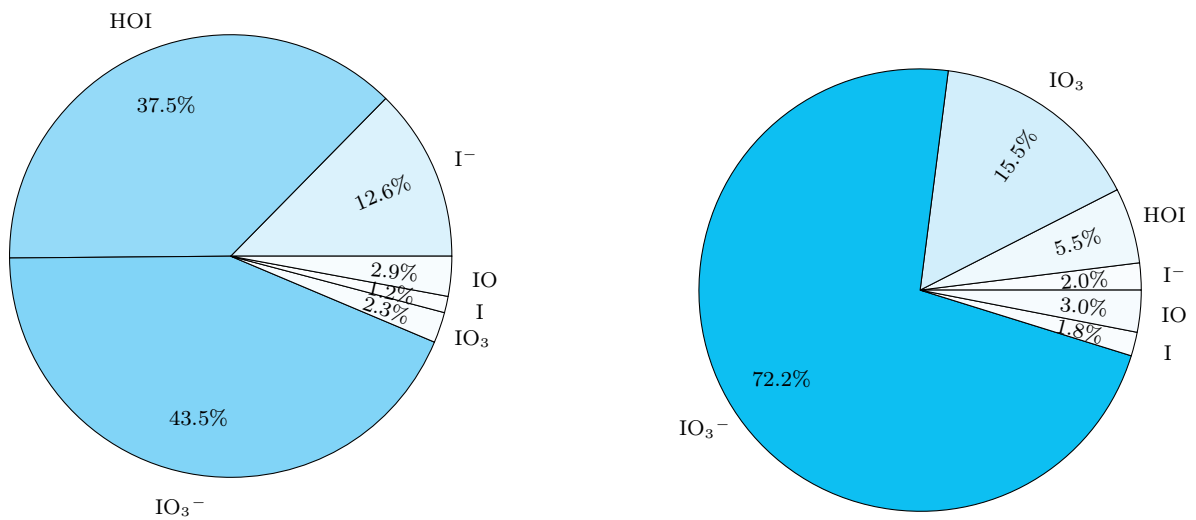
Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	$pH = 7.2$
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I] = 5.0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2.3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1.875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe] = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$
débit de dose = $2.0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu] = 5 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °2 : Influence du débit de dose sur la spéciation de l'iode



a) $ddd = 2,0 \cdot 10^{-8} \text{ Gy.s}^{-1}$

b) $ddd = 2,0 \cdot 10^{-6} \text{ Gy.s}^{-1}$



c) $ddd = 2,0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$

d) $ddd = 2,0 \cdot 10^{-2} \text{ Gy.s}^{-1}$

FIGURE 59 – Spéciation de l'iode = f(ddd)

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	$pH = 7,2$
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2,3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1,875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe^{2+}] = 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$
ddd	$[Cu^{2+}] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °3 : Influence de la température liquide sur la spéciation de l'iode

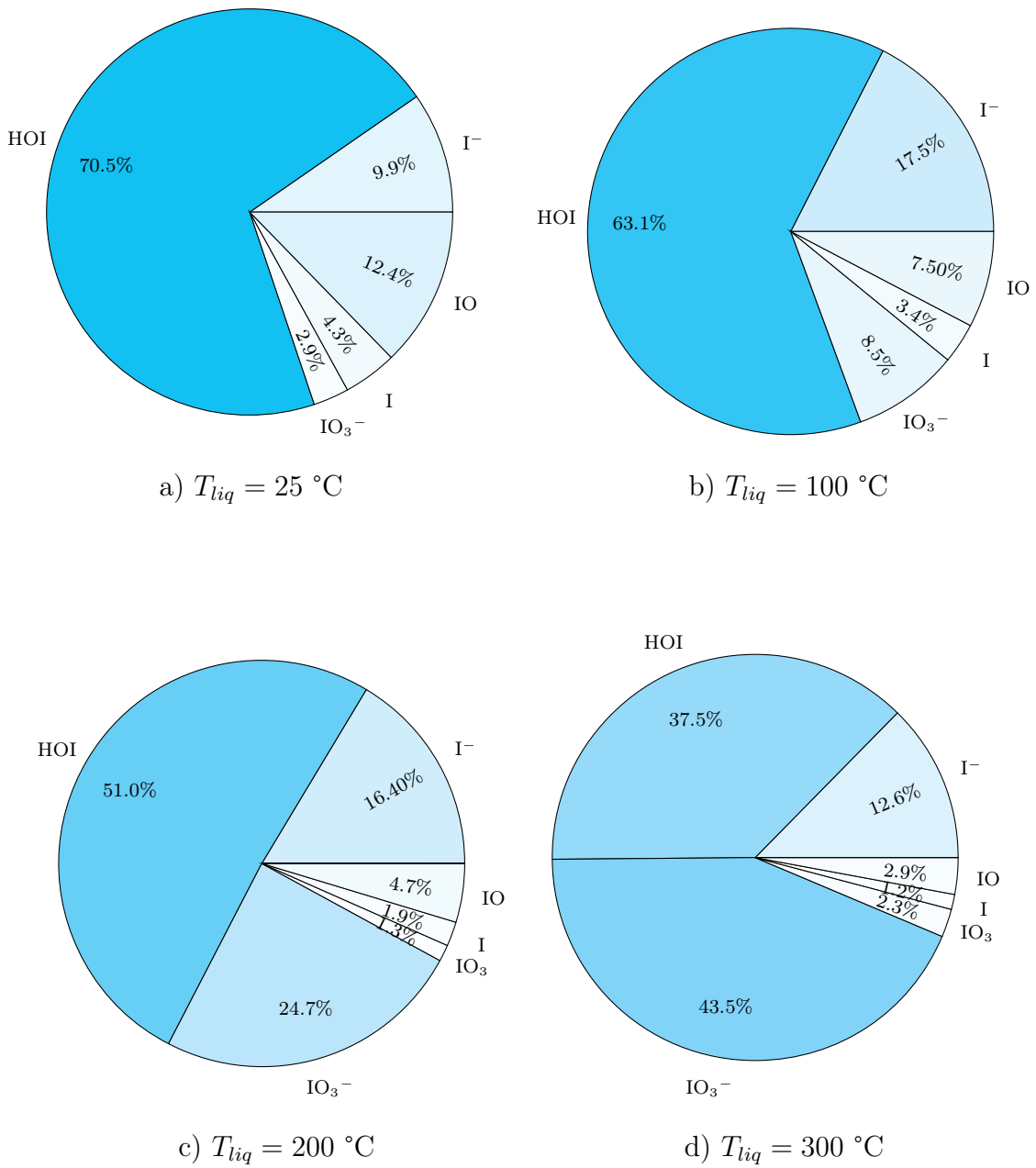


FIGURE 60 – Spéciation de l'iode = $f(T_{liq})$

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155\text{ bar}$	$pH = 7.2$
T_{liq}	$[I] = 5.0 \cdot 10^{-7}\text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730\text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2.3 \cdot 10^{-6}\text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1.875 \cdot 10^5\text{ kg}$	$[Fe^{2+}] = 1 \cdot 10^{-5}\text{ mol.m}^{-3}$
débit de dose = $2.0 \cdot 10^{-4}\text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu^{2+}] = 5 \cdot 10^{-7}\text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °4 : Influence du pH sur la spéciation de l'iode

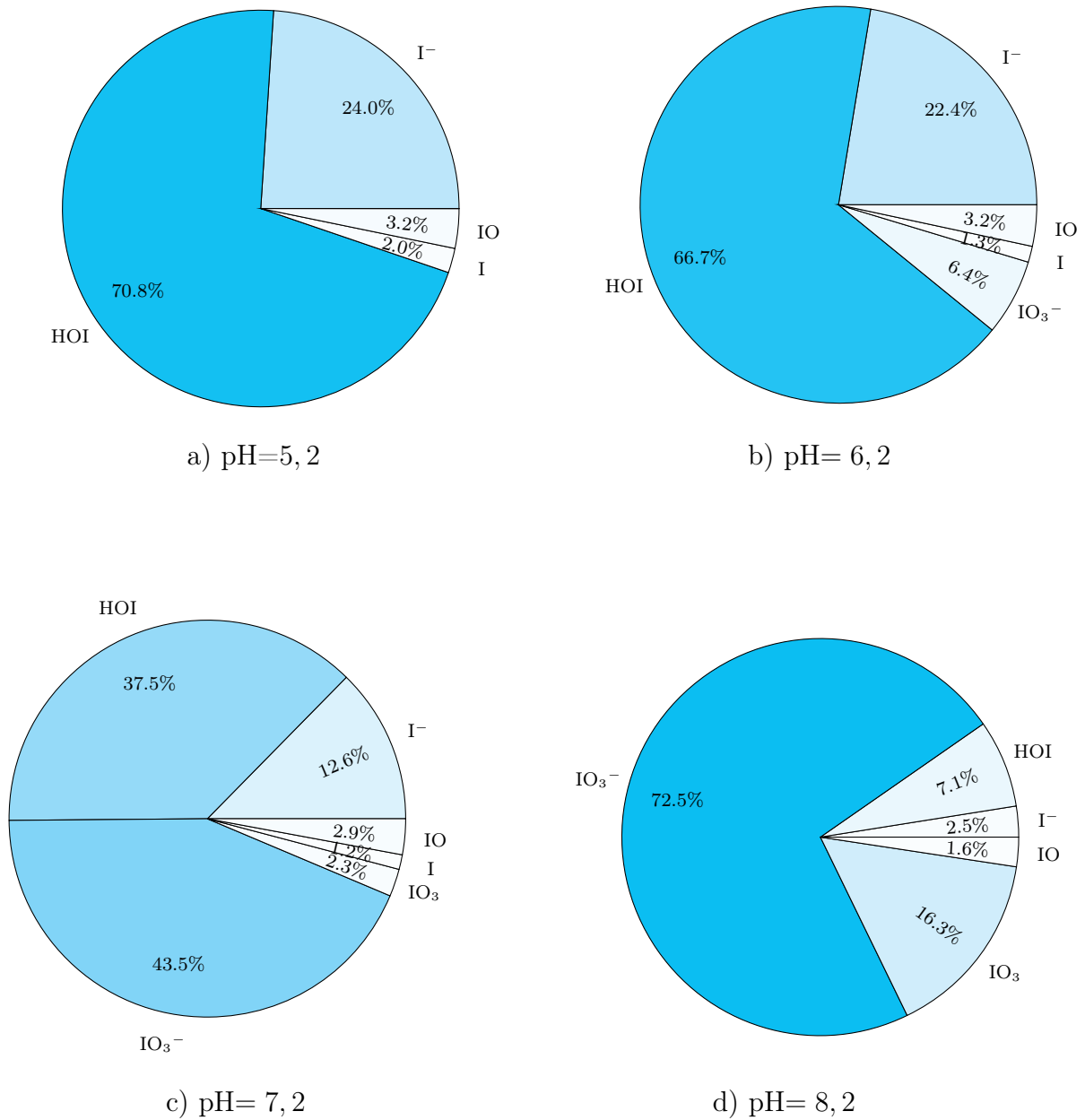


FIGURE 61 – Spéciation de l'iode = f(pH)

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	pH
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I] = 5.0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2.3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1.875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe^{2+}] = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$
débit de dose = $2.0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu^{2+}] = 5 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °5 : Influence de $[I^-]$ sur la spéciation de l'iode

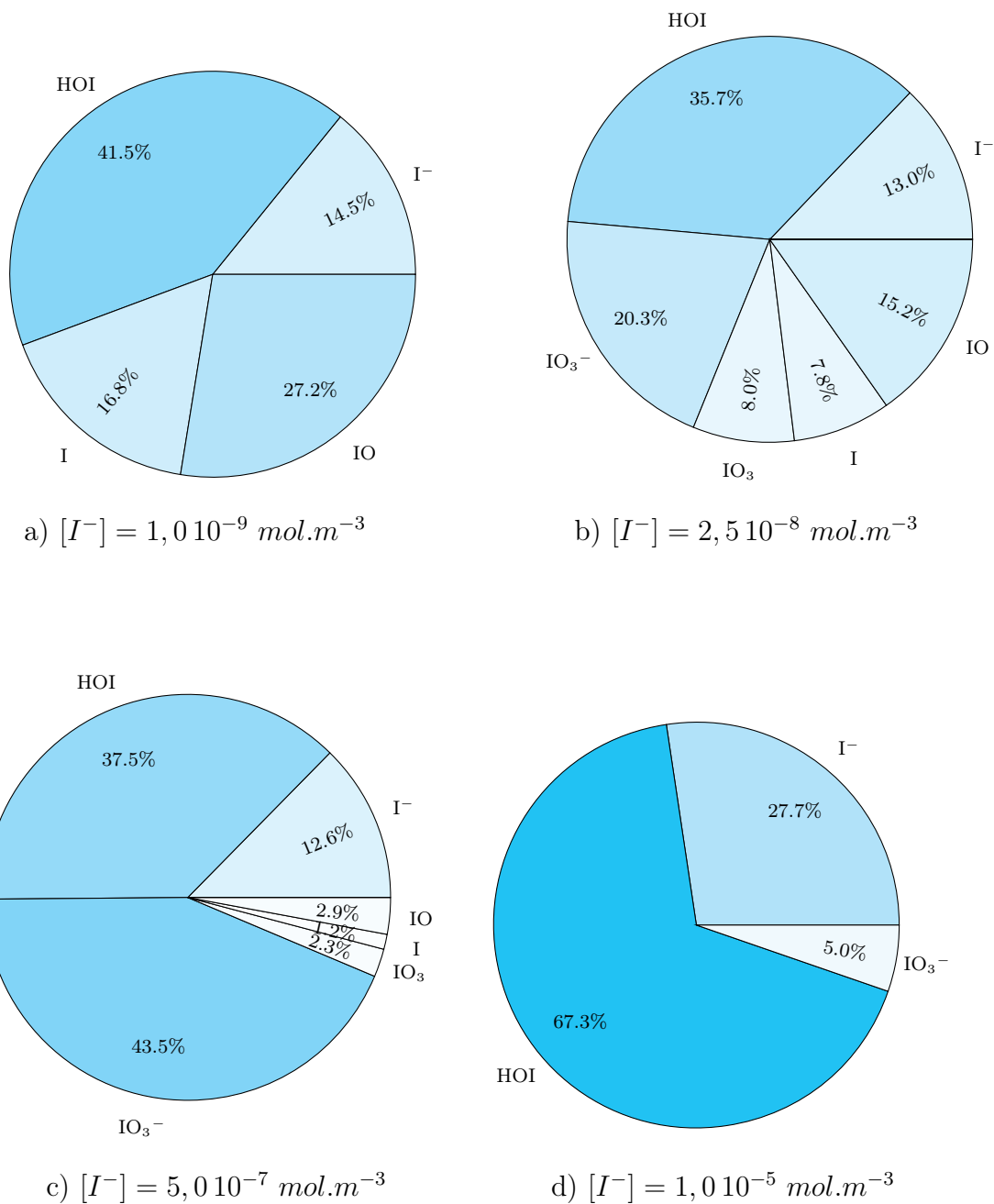


FIGURE 62 – Spéciation de l'iode = $f([I^-])$

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	pH= 7, 2
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I^-]$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2,0 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1,875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe^{2+}] = 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$
débit de dose = $10^{-2} \text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu^{2+}] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °6 : Influence de $[O_2]$ sur la spéciation de l'iode

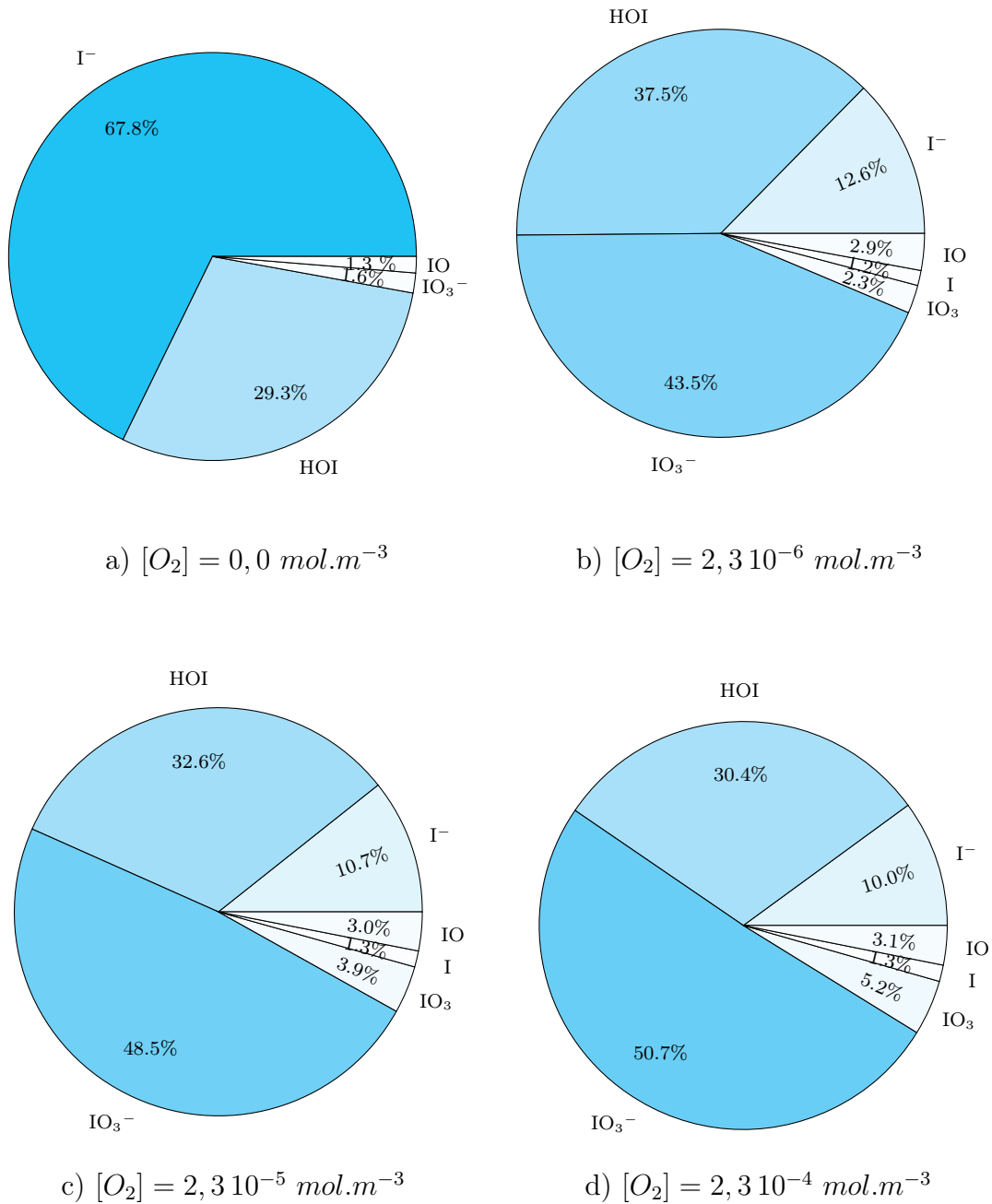


FIGURE 63 – Spéciation de l'iode = $f([O_2])$

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	pH= 7.2
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2]$
$m_{liq} = 1,875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe^{2+}] = 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$
débit de dose = $2,0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu^{2+}] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °7 : Influence de $[Fe^{2+}]$ sur la spéciation de l'iode

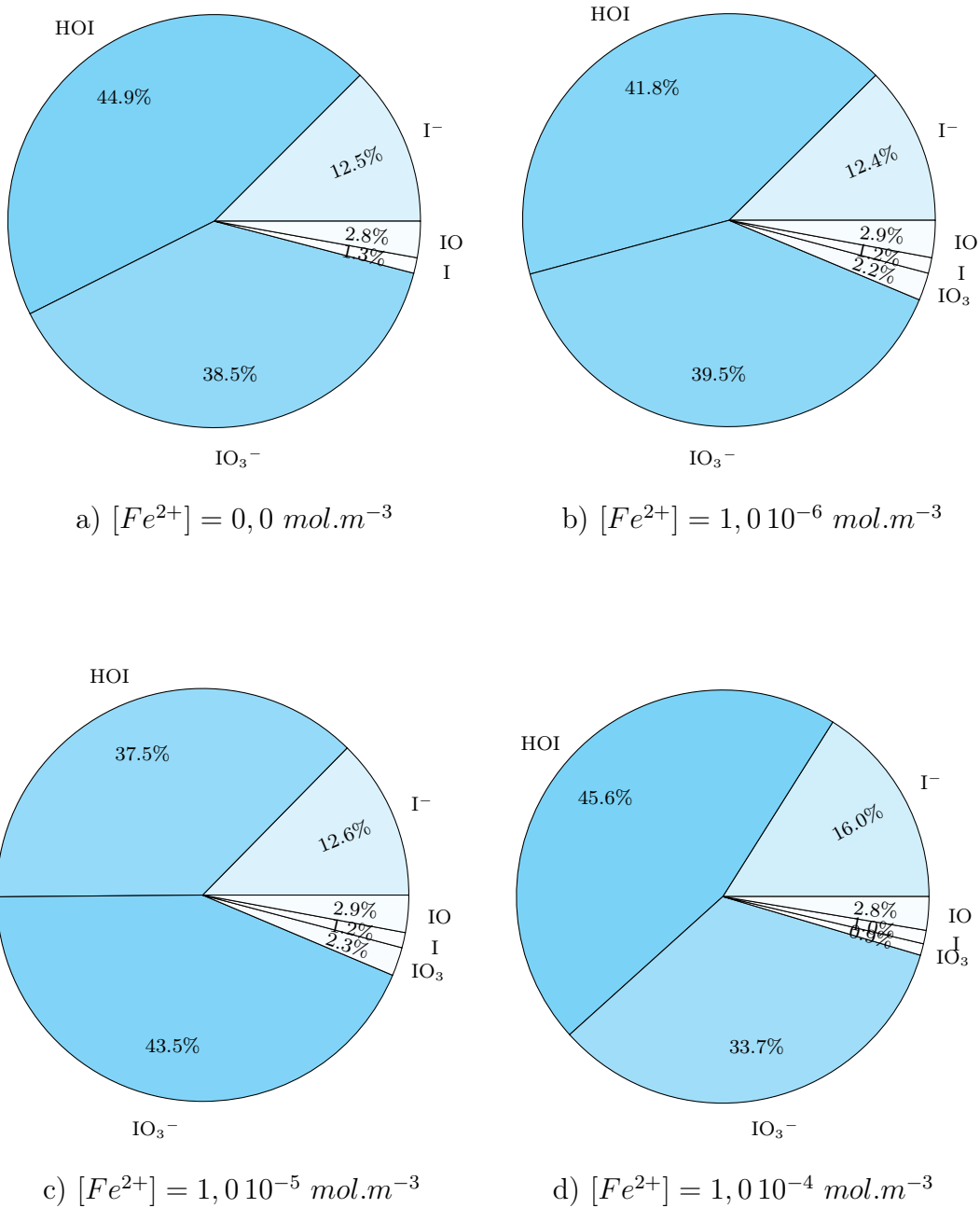


FIGURE 64 – Spéciation de l'iode = $f([Fe^{2+}])$

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	pH= 7,2
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2,3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1,875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe^{2+}]$
débit de dose = $2,0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu^{2+}] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$

⇒ Cas n °8 : Influence de $[Cu^{2+}]$ sur la spéciation de l'iode

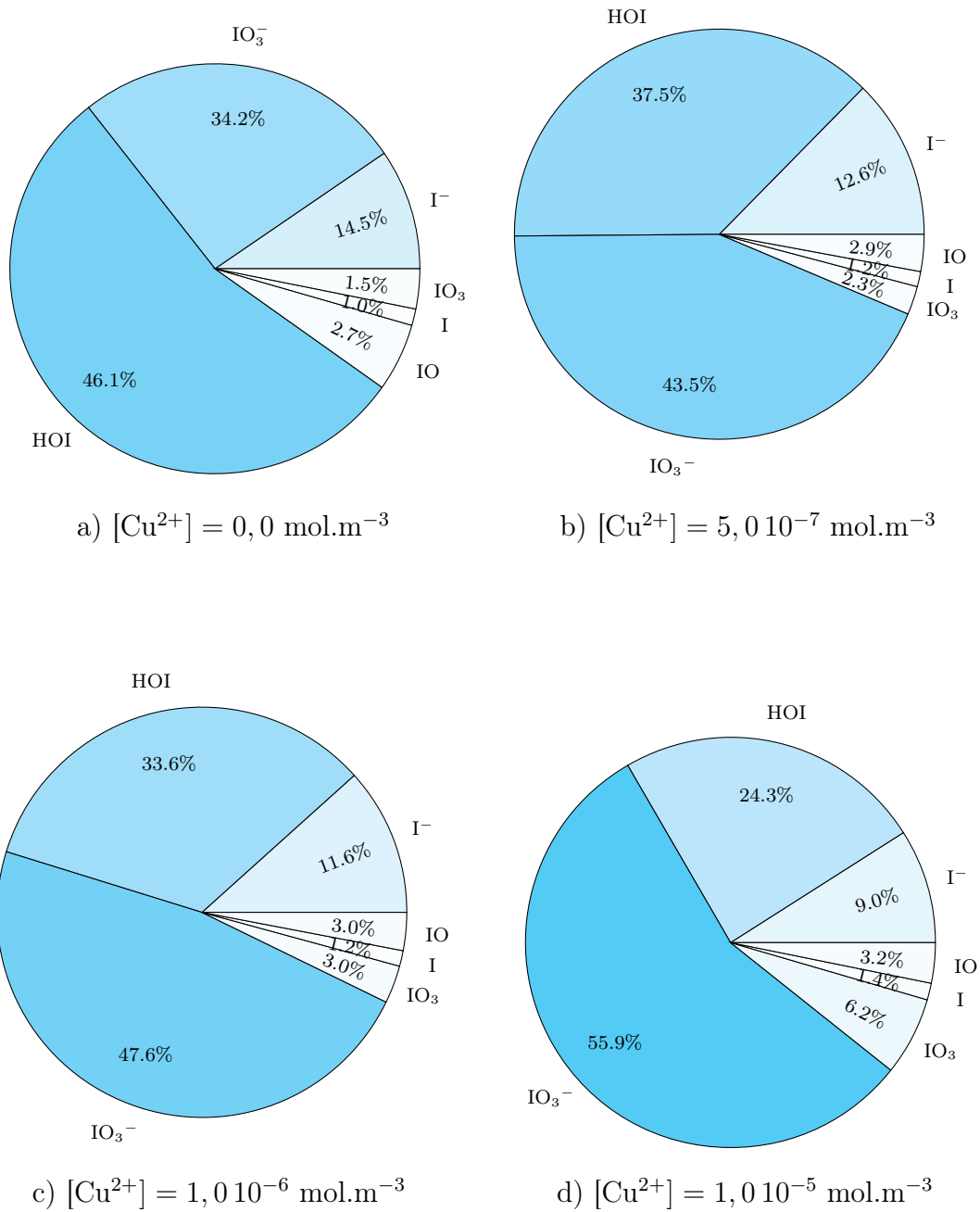


FIGURE 65 – Spéciation de l'iode = $f([Cu^{2+}])$

Conditions initiales	
$P_{liq} = 155 \text{ bar}$	$pH = 7.2$
$T_{liq} = 573 \text{ K}$	$[I] = 5.0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$
$\rho_{liq} = 730 \text{ kg.m}^{-3}$	$[O_2] = 2.3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$
$m_{liq} = 1.875 \cdot 10^5 \text{ kg}$	$[Fe^{2+}] = 1.0 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$
débit de dose = $2.0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$	$[Cu^{2+}]$

4 Détermination des coefficients de partage de HOI, IO₃, I, I₂ et IO

La connaissance des coefficients de partage des espèces iodées va nous permettre de calculer la fraction d'iode transférée en phase gazeuse lors du flashing à la brèche. Ce coefficient de partage dépend de l'espèce considérée ainsi que de la température.

4.1 Bibliographie

Pour IO₃ nous n'avons pas trouvé de valeur du coefficient de partage dans la littérature. Pour l'atome d'iode I, il est reporté dans la littérature comme étant volatil avec un coefficient de partage égal à 0,2 à 298,15 K (Sander [83]).

Pour l'iode moléculaire I₂, ce coefficient est bien connu, il vaut environ 80 à 298 K et 9 à 373 K (Palmer et al. [84]). I₂ sera donc considéré comme totalement volatil à 573 K avec un coefficient de partage inférieur à 0,01.

Pour HOI, les valeurs disponibles dans la littérature sont rassemblées dans le tableau 16 ci-dessous et sont éparées. Cartan et al. [85] a évoqué pour la première fois la présence de HOI en phase gazeuse. L'acide hypoïodeux est un intermédiaire de réaction. Il est donc difficile de l'étudier avec précision car, en solution, il est simultanément présent avec d'autres espèces iodées.

T (°C)	Coefficient de partage K	Références
21	300	Vinson [86] (1978)
80	30	Vinson [86] (1978)
21	3913	Lin [87] (1981, val. expérimentales)
72	823	Lin [87] (1981, val. expérimentales)
100	243	Lin [87] (1981)
150	69	Lin [87] (1981)
200	27,7	Lin [87] (1981)
250	14,1	Lin [87] (1981)
300	8,5	Lin [87] (1981)
100	1,7	Furrer et Cripps [88] (1985)
150	1,1	Furrer et Cripps [88] (1985)
20	≥ 10000	Palmer et al. [84] (1985)
20	930 ± 220	Harrell et al. [89] (1988)
80	≥ 300	Cantrel [90] (1997)

TABLE 16 – Coefficients de partages extraits de la littérature

Compte tenu des fortes proportions de HOI dans le CP et l'absence de données pour le trioxyde

d'iode, les coefficients de partage de ces deux composés doivent être déterminés. Il existe des méthodes semi-empiriques telles que QSAR, Quantitative Structure-Activity Relationship (Nirmalakhandan et Speece, [91] (1998)), ou BCM, Bond Contribution Method (Meylan et Howard, [92] (1991)) mais celles-ci sont uniquement applicables et validées pour des composés organiques et ne seront donc pas mises en œuvre dans le cadre de ce travail. La méthode de choix reste la dynamique moléculaire pour calculer l'enthalpie libre de solvation.

⇒ Lien entre l'énergie de solvation et le coefficient de partage

Un principe fondamental de la thermodynamique stipule que, à l'équilibre, les potentiels chimiques d'un constituant quelconque sont égaux dans toutes les phases du système. Appliqué à un constituant dans un système liquide-gaz, ce principe conduit à la relation :

$$\Phi_{ig} = \phi_{ig} + RT \ln(x_{ig}) = \Phi_{il} = \phi_{il} + RT \ln(x_{il}) \quad (1)$$

où, ϕ_{ig} et ϕ_{il} représentent la partie des potentiels chimiques qui ne dépend que des conditions thermodynamiques du soluté et du solvant. x_{ig} et x_{il} sont les fractions molaires du constituant i en phase gaz et en phase liquide. Dans les conditions très diluées qui nous concernent, les activités se confondent avec les concentrations molaires. On a donc :

$$x_{ig} = x_{il} \exp\left(\frac{\phi_{il} - \phi_{ig}}{RT}\right) = x_{il} \exp\left(-\frac{\Delta G_{solv}}{RT}\right) \quad (2)$$

La molécule solvatée se trouve dans un niveau d'énergie plus bas, à cause des forces attractives. La différence $\phi_{ig} - \phi_{il}$ est appelée enthalpie libre de solvation. Cette relation conduit à la constante de Henry dont la définition est :

$$P_{ig} = x_{il} H \quad (3)$$

Cette relation exprime que la pression partielle du constituant i est proportionnelle à sa fraction molaire en phase liquide (loi de Henry). On a donc la relation :

$$H = P \exp\left(-\frac{\Delta G_{solv}}{RT}\right) \quad (4)$$

où P est la pression totale du mélange. De la même façon, nous pouvons exprimer le coefficient de partage en fonction de l'énergie de solvation par la relation :

$$\boxed{\frac{1}{K} = \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \exp\left(-\frac{\Delta G_{solv}}{RT}\right)} \quad (5)$$

En effet, la relation (2) peut s'écrire :

$$\frac{N_{ig}}{N_{gaz,tot}} = \frac{N_{il}}{N_{liq,tot}} \exp\left(-\frac{\Delta G_{solv}}{RT}\right) \quad (6)$$

Ramenée au volume molaire, cette relation donne :

$$C_{ig} = C_{il} \frac{V_{mol,liq}}{V_{mol,gaz}} \exp\left(-\frac{\Delta G_{solv}}{RT}\right) \quad (7)$$

4.2 Méthodologie

La dynamique moléculaire (DM) est, comme son nom l'indique, une méthode permettant de simuler l'évolution temporelle (dynamique) d'un système moléculaire. Elle repose généralement sur l'utilisation de la loi de Newton. Le mouvement atomique, entraînant le mouvement moléculaire, est associé à la loi de Newton :

$$F_i = m_i a_i \quad (8)$$

où F_i représente la somme des forces exercées sur l'atome de masse m_i , et a_i est son accélération. On note bien que la notion de mouvement est ancrée dans cette relation car l'accélération est reliée à la vitesse, elle-même reliée à la position de la particule considérée. La force sur un atome est obtenue à partir du calcul de l'énergie du système, généralement par une approche de type « champ de force ». La DM repose sur des principes de mécanique moléculaire. Chaque molécule est représentée par un ensemble de champs de forces comme indiqué en figure 66.


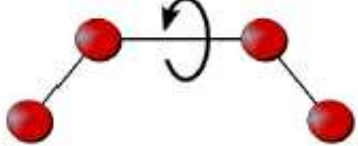

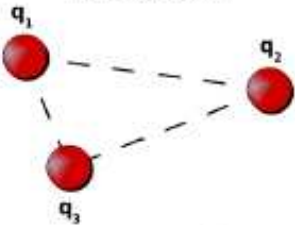
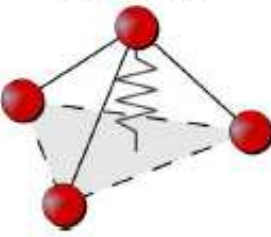
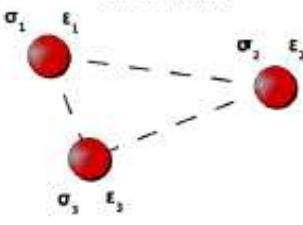
<p style="text-align: center;">Elongation</p>  $V_{\text{elongation}} = k_{\text{elongation}} (r - r_{\text{eq}})^2$ $V_{\text{elongation}} = k_{\text{elongation}} \left[1 - e^{-A(r - r_{\text{eq}})} \right]^2$	<p style="text-align: center;">Torsion</p>  $V_{\text{torsion}} = k_{\text{torsion}} [1 + \cos(m\phi - \phi)]$ <p>avec $m = 1, 2, \dots, 6$</p>
<p style="text-align: center;">Flexion</p>  $V_{\text{flexion}} = k_{\text{flexion}} (\theta - \theta_{\text{eq}})^2$	<p style="text-align: center;">Electrostatique</p>  $V_{\text{electrostatique}} = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}}$
<p style="text-align: center;">Torsion impropre</p>  $V_{\text{impropre}} = k_{\text{impropre}} (\omega - \omega_{\text{eq}})^2$	<p style="text-align: center;">Van der Waals</p>  $V_{\text{van der Waals}} = \frac{B}{r^{12}} - \frac{A}{r^6} = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right]$

FIGURE 66 – Potentiels d'interactions possibles d'une molécule

A partir des potentiels d'interaction entre les particules, on obtient les accélérations, puis les

vitesses et enfin les positions. Un algorithme mathématique, Verlet ou leap frog le plus généralement, permet l'obtention de ces données. La DM est une méthode largement usitée pour calculer l'énergie de solvation d'une molécule en phase liquide. Ce type de travail a parfaitement été illustré par divers articles (Soetens et al. [93], Taylor et Shields [94]).

Ces études portent sur la détermination de l'enthalpie libre standard de solvation par l'emploi d'un potentiel de champ de forces moyen (PMF= Potential of Mean Force) ou par une méthode perturbative énergie (FEP = Free Energy Perturbation) du soluté dans le solvant comme largement illustré dans la littérature (Shivakumar et al. [95]). La méthode FEP permet de calculer les variations d'énergie libre d'un système chimique qui évolue d'un état A vers un état B comme l'illustre la figure 67.

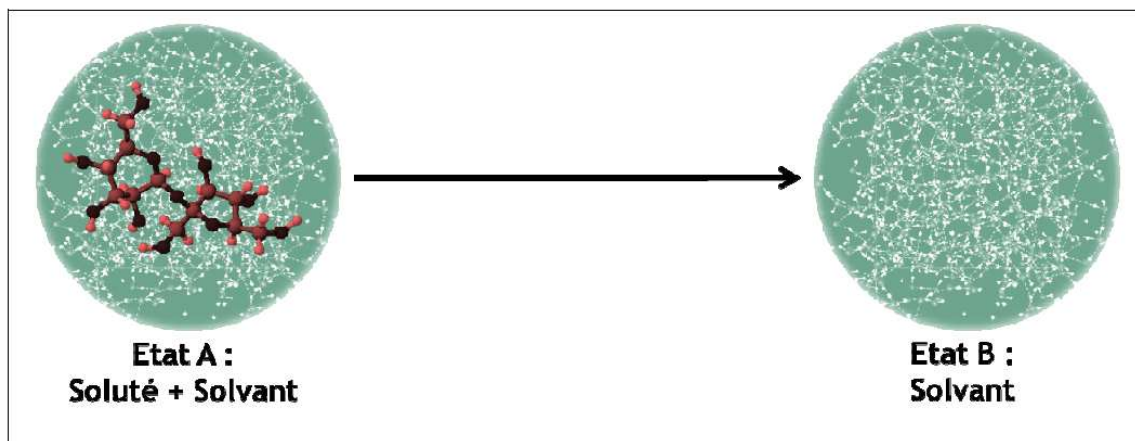


FIGURE 67 – Evolution d'un système soluté-solvant vers un système avec solvant pur

Le calcul est essentiellement basé sur l'équation de Zwanzig [96] (1954) :

$$\Delta G_{A \rightarrow B} = -k_B T \left\langle \exp \left(\frac{U_B - U_A}{k_B T} \right) \right\rangle \quad (9)$$

où U_A et U_B sont les énergies potentielles des états A et B et le terme $\left\langle \exp \left(\frac{U_B - U_A}{k_B T} \right) \right\rangle$ représente la moyenne des énergies échantillonnées pour passer de A à B. Cette transition est réalisée par un échantillonnage qui comporte environ 10 états intermédiaires comme représentés schématiquement en figure 68.

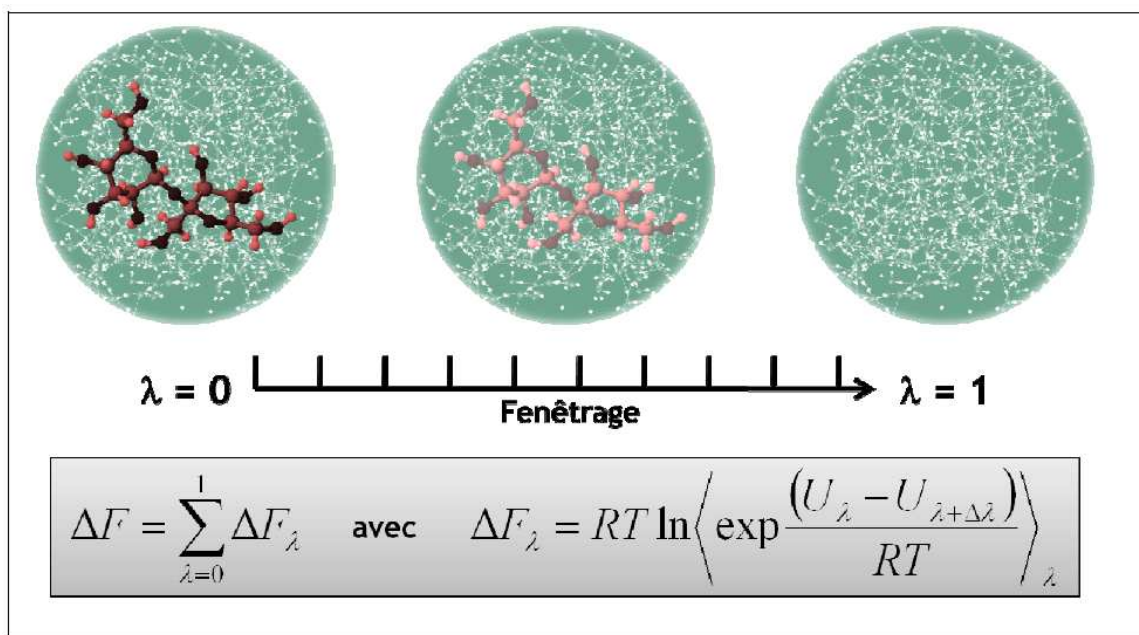


FIGURE 68 – Fenêtrage pour le calcul de l'énergie libre de solvation

La solvation peut être vue comme un processus de transfert où la molécule de soluté, initialement en phase gazeuse, pénètre dans le solvant. L'enthalpie libre de solvation de la molécule HOI est donnée par la relation :

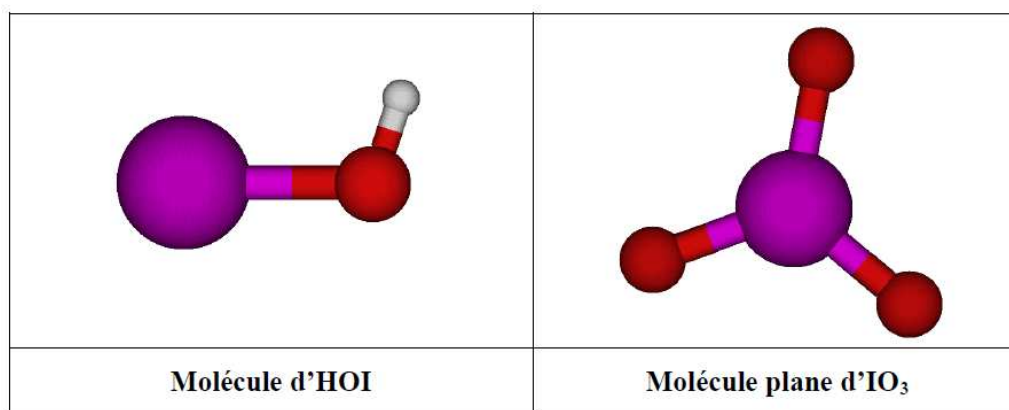
$$\Delta G_{\text{solv}} = \Delta G_{\text{HOI-H}_2\text{O}} - \Delta G_{\text{H}_2\text{O}} - \Delta G_{\text{HOI}} \quad (10)$$

Le code de dynamique mis en œuvre est le code SPyDERS (Software in Python for Dynamics Energetics and Restrained Simulations) qui a été qualifié sur une série de composés (Cantrel, [97]). La précision que l'on peut attendre pour l'énergie libre de solvation est de l'ordre de 0,5 kcal.mol⁻¹. Les équations du mouvement sont résolues par un intégrateur Verlet vitesses (Swope et al., 1982 [98]). Les paramètres du champ de forces sont issus du champ AMBER (Wang et al., 2004[99]). Pour le potentiel électrostatique, les charges partielles sur les atomes des molécules iodées sont obtenues à partir d'un fit du potentiel de Merz-Kollman au niveau de théorie RHF/6 – 311G* en utilisant le logiciel de chimie GAUSSIAN 03. Les interactions de type solvant-solvant ont été prises en compte par un modèle d'eau type TIP3P de géométrie rigide. Le barostat et le thermostat sont de type Berendsen (Berendsen et al., 1987 [100]).

4.3 Paramètres de calcul

La figure 69 illustre la géométrie des molécules HOI et IO₃, optimisée par le logiciel GAUSSIAN.

En milieu aqueux donc polarisable, il faut savoir que les interactions électrostatiques vont conditionner en bonne partie la valeur de l'énergie de solvation. La distribution de charges considérée est décrite ci-dessous :

FIGURE 69 – Géométries des molécules HOI et IO₃

	O	H ₁ et H ₂	
H ₂ O (TIP3P)	-0,834	+0,417	
	I	O ₁ , O ₂ et O ₃	
IO ₃	+1,593	-0,531	
	I	O	H
HOI	+0,408	-0,528	+0,121

Les paramètres du calcul sont les suivants :

- Boite de simulation d'environ 20 Å de côté contenant environ 200 molécules d'eau ;
- Pas d'intégration 0,5 fs ;
- Temps de thermalisation 20 ps (37500 pas dynamique) ;
- 12 fenêtres ;
- Temps d'intégration pour chaque fenêtre 56 ps (112500 pas dynamique)
- Cutoff de 20 Å

Les énergies de solvation obtenues à l'issue des simulations sont reportées dans le tableau 17. Pour chaque température, trois simulations ont été réalisées et c'est la valeur moyenne qui figure dans le tableau 17.

Composé	Exp		SPyDERS		
	298 K	373 K	298 K	373 K	473 K
Trioxyde d'iode (IO ₃)	Pas de données		-(13,9 ± 0,4)	-(9,1 ± 0,4)	(-)
Acide hypoïodeux (HOI)	-5,0 [88]	-3,2 [88]	-(3,6 ± 0,2)	-(2,3 ± 0,3)	-(1,6 ± 0,4)
	-4,1 [87]				
	-4,2 [90]	-1,0 [87]			

TABLE 17 – Enthalpie libre standard de solvatation (kcal.mol⁻¹)

Le trioxyde d'iode est clairement un composé non volatil. Pour HOI, la valeur obtenue à 373 K est intermédiaire entre les valeurs proposées dans la littérature. Elle correspond à un coefficient de partage égal à 22. A partir des valeurs à 298 K, 373 K et 473 K, on peut calculer la dépendance du coefficient de partage en fonction de la température suivant une loi exponentielle du type :

$$\ln(K) = \left(\frac{A}{T} + B \right) \quad \chi^2 = 0,976 \quad (11)$$

avec $A = 3,552 \cdot 10^3$, $B = -6.02$ et T est exprimée en K. On obtient $K(523 \text{ K}) = 2,2$ et $K(573 \text{ K}) = 1,2$. On peut en conclure que lors du flashing, l'acide hypoïodeux est volatil et sera transféré en grande partie vers la phase gazeuse du secondaire.

Dans le paragraphe suivant nous allons détailler les équations aboutissant au calcul de la quantité d'iode transférée dans la phase gaz du secondaire.

5 Flashing de l'iode et transfert primaire

Pour une espèce iodée volatile, on peut définir le "taux de flashing" à chaque instant de la séquence accidentelle, et finalement le rejet à l'environnement de cette espèce sous forme gazeuse, s'il existe un chemin de transfert direct.

Soit \dot{m}_{il0} , le débit massique de cette espèce en phase liquide à la brèche, $\dot{m}_{i \rightarrow g}$, le débit de production de cette espèce en phase gaz. Avec certaines hypothèses qui sont précisées dans ce qui suit, le taux de flashing, ou taux de transfert primaire de cette espèce est donné par la relation :

$$\boxed{\frac{\dot{m}_{i \rightarrow g}}{\dot{m}_{il0}} = \frac{\tau_{th} \rho_{liq0}}{K_i \rho_{gaz}^{sat}}} \quad (1)$$

où τ_{th} est le **taux de flashing thermodynamique**, K_i le **coefficient de partage** de cette espèce, ρ_{liq0} la masse volumique du liquide à la brèche, ρ_{gaz}^{sat} la masse volumique à saturation à la pression P_2 du secondaire. On proposera plus loin une formulation plus précise.

La fraction qui reste en phase liquide à l'issue du flashing peut éventuellement être transférée en partie à la ligne vapeur si elle franchit l'étage cyclone-sécheur (taux de by-pass). Ceci dépend de la granulométrie des gouttes produites par le flashing.

5.1 Le transfert primaire et le transfert secondaire

Dans la terminologie utilisée pour décrire les séquences RTGV, on parle de taux de by-pass et de taux de carry-over (ou taux de primage). Ces termes ne recouvrent pas la même réalité que les termes que nous utilisons. C'est pourquoi il est utile de le préciser. Le jargon des séquences RTGV est parfois obscur. Pour simplifier, on désigne par taux de by-pass la fraction qui part directement à la ligne vapeur sans passer par le bouchon d'eau ou en empruntant un chemin direct à travers le bouchon d'eau (bulles de vapeur ou partage). Ceci inclut aussi bien l'iode produit à la brèche que l'iode qui a transité par le condenseur pour ce qui concerne le GV accidenté, et l'iode qui a transité par le condenseur pour les GV sains. On désigne par taux de carry-over (ou taux de primage) la fraction qui est transportée par les gouttes qui sont dans le secondaire GV et qui franchit l'étage cyclone-sécheur. Par construction, en fonctionnement normal, le taux de primage des gouttes est 0,25 %. Dans les analyses EDF [101], on attribue le même taux à l'iode parce qu'on considère qu'il y a très peu d'espèces volatiles dans la phase liquide. Ceci concerne aussi bien l'iode qui provient de la brèche (via les gouttes d'eau qui n'ont pas contribué au by-pass, GV accidenté) que l'iode qui a transité par le condenseur (cas du GV accidenté et cas des GV sains). On applique donc toujours la même terminologie, que la brèche soit submergée ou pas.

Dans ce travail, on considère le cas d'une brèche non submergée au début de l'accident, et en partie haute du faisceau d'épingles. C'est la séquence la plus pénalisante a priori, car c'est celle qui offre un chemin de transfert direct pendant la durée la plus longue. On désigne par **transfert primaire** le transfert qui est réalisé entre le début de l'accident et la submersion de la brèche. Après cet évènement, l'iode est relâché dans la ligne vapeur à partir du bouchon d'eau par partage et primage, qu'il provienne directement de la brèche ou qu'il ait transité par le condenseur. Nous désignons cette phase par transfert secondaire.

Le présent travail se limite à la description du **transfert primaire**.

Equation de bilan

On écrit le bilan de masse pour une espèce iodée contenue dans une goutte particulière de la distribution :

$$\frac{d}{dt} (V_l C_{il} M_i) = -S k_{gi} (C_{ig} - C_{i\infty}) M_i - \frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} C_{ig} M_i \quad (2)$$

Avec,

- V_l : volume liquide de la goutte considérée
- C_{il} : concentration molaire en phase liquide de l'espèce considérée
- M_i : masse molaire de l'espèce considérée
- S : surface de la goutte
- k_{gi} : coefficient de transfert de masse en phase gaz de l'espèce considérée
- C_{ig} : concentration molaire en phase gaz à l'interface de l'espèce considérée
- $C_{i\infty}$: concentration molaire en phase gaz dans la fluide secondaire de l'espèce considérée
- \dot{m}_{ev} : débit massique d'évaporation
- $\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}$: masse volumique à saturation à la pression P_2 du secondaire

Dans le second membre, on distingue le terme de transfert lié à la convection-diffusion dans la phase gaz et le terme de transfert lié au débit d'évaporation \dot{m}_{ev} . Ce dernier terme comprend d'une part l'évaporation de surface, et d'autre part l'évaporation dans les germes internes à la goutte.

Pour expliciter le terme de convection-diffusion $S k_{gi} (C_{ig} - C_{i\infty})$, il faut connaître la valeur de $C_{i\infty}$ qui nécessite le suivi du transport de l'espèce considérée dans le secondaire, ce qui n'est pas possible dans le module DROPLET en raison de l'organisation modulaire du code ASTEC. Néanmoins, en règle générale, ce terme est négligeable devant le terme lié à l'évaporation. On écrira donc l'équation simplifiée :

$$\frac{d}{dt} (V_l C_{il} M_i) = -\frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} C_{ig} M_i \quad (3)$$

$$\frac{d}{dt} (V_l) C_{il} + V_l \frac{d}{dt} (C_{il}) = -\frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} C_{ig} \quad (4)$$

On suppose que la masse volumique du liquide varie peu (pour simplifier). Nous obtenons :

$$\frac{1}{\rho_l} \frac{dm_l}{dt} C_{il} + \frac{m_l}{\rho_l} \frac{dC_{il}}{dt} = -\frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} C_{ig} \quad (5)$$

C_{ig} est la concentration dans le gaz à l'interface. On fait la simplification supplémentaire de supposer que le transfert en phase liquide est suffisamment rapide pour que l'on puisse considérer la concentration dans cette phase comme homogène. On peut donc considérer C_{il} comme la concentration à l'interface côté liquide. Dans le cas contraire, il faudrait ajouter un terme de transfert supplémentaire. C_{ig} et C_{il} sont reliés entre eux par le coefficient de partage inter facial, qui n'est autre que le coefficient de partage thermodynamique.

$$C_{ig} = \frac{C_{il}}{K_i} \quad (6)$$

Ceci est rendu possible par le fait que, même pour les mécanismes de transfert très rapides (dans notre cas, nous avons vu que les temps caractéristiques se situent entre 10^{-8} et 10^{-3} s), l'équilibre interfacial s'établit en un temps petit devant ces temps caractéristiques. C'est une procédure usuelle dans les problèmes de transfert.

Nous pouvons donc écrire :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\rho_l} \frac{dm_l}{dt} C_{il} + \frac{m_l}{\rho_l} \frac{dC_{il}}{dt} &= - \frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} \frac{C_{il}}{K_i} \\ \frac{dC_{il}}{dt} &= - \frac{\dot{m}_{ev}}{m_l} \left(\frac{\rho_l}{K_i \rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} \right) C_{il} - \frac{1}{m_l} \frac{dm_l}{dt} C_{il} \end{aligned} \quad (7)$$

Le premier terme du membre de droite est lié au flux d'Iode et le deuxième terme est lié à la variation du volume liquide.

$$\frac{dC_{il}}{dt} = \frac{1}{m_l} \frac{dm_l}{dt} \left(\frac{\rho_l}{K_i \rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} - 1 \right) C_{il} \quad (8)$$

Posons :

$$\alpha_i = \frac{\rho_l}{K_i \rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}}$$

Il est impossible d'évaluer a priori l'importance de ce terme. Typiquement, dans des conditions RTGV, $\frac{\rho_l}{\rho_{\text{gaz}}^{\text{sat}}} \approx 23$. Plus le coefficient de partage est petit, plus l'espèce est volatile. Pour quelle valeur de K_i peut-on estimer qu'une espèce est volatile? Ceci dépend aussi des conditions aux limites et des cinétiques de transfert. D'autre part, le coefficient de partage peut varier de façon significative avec la température (c'est le cas par exemple pour les espèces I2 et HOI).

Si on connaît pour l'espèce considérée la loi $K_i(T)$ (ce qui est rarement le cas), sachant que le terme $\frac{1}{m_l} \frac{dm_l}{dt}$ résulte des équations du flashing développées dans la deuxième partie, on a une expression du second membre de l'équation (8). Les équations différentielles de type (8) (une pour chaque espèce) permettent d'obtenir la concentration en phase liquide C_{il} pour une goutte qui a atteint l'équilibre avec le secondaire.

Le taux de flashing de l'espèce considérée est, par définition, pour une goutte :

$$\tau_i = \frac{V_{l0} C_{il0} - V_l C_{il}}{V_{l0} C_{il0}} = 1 - \frac{V_l C_{il}}{V_{l0} C_{il0}} \quad (9)$$

5.2 Solution simplifiée

Le résultat (9) peut donc être obtenu en couplant pour n espèces les n équations (8) aux équations de la relaxation thermodynamique d'une goutte. Une solution simplifiée est évidente si on prend un coefficient de partage moyen (pendant le transit de la goutte), pris à la valeur

$$\bar{T} = \frac{T_{liq0} + T_{sat}(P_2)}{2} \quad (10)$$

Dans ce cas, la solution évidente de l'équation (8) est :

$$\frac{C_{il}}{C_{il0}} = \left(\frac{m_l}{m_{l0}} \right)^{\alpha_i - 1} \quad (11)$$

Par conséquent,

$$\frac{m_l C_{il}}{m_{l0} C_{il0}} = \left(\frac{m_l}{m_{l0}} \right)^{\alpha_i} \quad (12)$$

Remarque importante : C_{il} est la concentration courante dans la goutte et donc finalement la concentration dans la goutte en fin de relaxation.

Par définition : $\tau_i = 1 - \frac{V_l C_{il}}{V_{l0} C_{il0}} \approx 1 - \frac{m_l C_{il}}{m_{l0} C_{il0}}$ (ρ constant).

Donc $\tau_i \approx 1 - \left(\frac{m_l}{m_{l0}} \right)^{\alpha_i}$, d'autre part, par définition, $\tau_{th} = 1 - \frac{m_l}{m_{l0}}$.

Finalement, nous arrivons à l'expression :

$$\boxed{\tau_i \approx 1 - (1 - \tau_{th})^{\alpha_i}} \quad (13)$$

Les hypothèses simplificatrices sont que la masse volumique du liquide varie peu et que l'on prend un coefficient de partage établi pour une température moyenne pendant le transit d'une goutte.

Dans la limite où le taux de flashing thermodynamique est faible, on obtient $\tau_i \approx \tau_{th} \alpha_i$ qui n'est autre que la formule (1). Dans les calculs de séquence RTGV, on a en général (voir troisième partie) un taux de flashing thermodynamique de l'ordre de 10%, ce qui nous autorise à appliquer cette formule.

D'après la formule (13), si $\tau_{th} \rightarrow 0$, $\tau_i \rightarrow 0$ ($\forall \alpha_i$) et si $\tau_{th} \rightarrow 1^-$, $\tau_i \rightarrow 1^-$ ($\forall \alpha_i$), ce qui est logique (si on flashe 100% du liquide, on flashe 100% de l'Iode dissout dans le liquide et on ne peut pas dépasser cette limite, même pour un coefficient de partage très petit). Par conséquent, si on fait usage de l'approximation $\tau_i \approx \tau_{th} \alpha_i$, on doit la compléter par la condition $\tau_i \leq 1$.

5.3 Application à une distribution en tailles des gouttes

Nous avons considéré le cas d'une goutte particulière. Nous généralisons ce raisonnement au cas réel d'une distribution. La concentration initiale dans la phase liquide d'une espèce iodée est indépendante de la taille des gouttes : elle est égale à la concentration dans le fluide primaire. En effet, la spéciation n'a pas le temps d'évoluer pendant la phase de fragmentation mécanique. De même, on considère que cette spéciation n'évolue, pendant le transit d'une goutte, qu'en raison du transfert à la phase gaz, ce qui veut dire que l'on suit chaque espèce indépendamment.

Le taux de flashing d'une espèce pour l'ensemble de la distribution est :

$$\tau = \frac{\sum n_j m_{lj0} C_{l0} - \sum n_j m_{lj} C_{lj}}{\sum n_j m_{lj0} C_{l0}} = 1 - \frac{\sum n_j m_{lj} C_{lj}}{\sum n_j m_{lj0} C_{l0}} \quad (14)$$

De ce qui précède, $m_{lj}C_{lj} = m_{lj0}C_{l0} (1 - \tau_{thj})^\alpha$ où τ_{thj} est le taux de flashing thermodynamique pour une goutte de la classe de taille j.

Par conséquent, nous avons finalement :

$$\tau = 1 - \frac{\sum n_j m_{lj0} C_{l0} (1 - \tau_{thj})^\alpha}{\sum n_j m_{lj0} C_{l0}} = 1 - \frac{\sum n_j m_{lj0} (1 - \tau_{thj})^\alpha}{\sum n_j m_{lj0}} \quad (15)$$

Par cette formule, de la distribution en tailles des gouttes et du taux de flashing pour chaque taille, on peut construire le taux de flashing Iode pour la distribution. On ne peut pas le relier directement au taux de flashing thermodynamique pour l'ensemble de la distribution, sauf dans certaines conditions pour lesquelles on peut faire des approximations supplémentaires.

Le taux de flashing thermodynamique pour l'ensemble de la distribution est :

$$\tau_{th} = \frac{\sum n_j m_{lj0} - \sum n_j m_{lj}}{\sum n_j m_{lj0}} = 1 - \frac{\sum n_j m_{lj}}{\sum n_j m_{lj0}} \quad (16)$$

Si le taux de flashing est à peu près indépendant de la taille des gouttes, ce qui est en général vérifié, on voit que l'on peut simplifier la formule (15) puisque le terme $(1 - \tau_{thj})^\alpha$ se factorise et on retrouve la formule (13).

D'autre part, si le taux de flashing est faible pour toutes les classes de taille, on peut remplacer (15) par $1 - \frac{\sum n_j m_{lj0} (1 - \alpha \tau_{thj})}{\sum n_j m_{lj0}} = \alpha \frac{\sum n_j m_{lj0} \tau_{thj}}{\sum n_j m_{lj0}}$.

Résumé :

n_j est le nombre de gouttes de la classe j entrant dans le système par unité de temps. m_{lj0} est la masse initiale de liquide dans une goutte de la classe j.

De sorte que : $\sum n_j m_{lj0}$ est le débit liquide à la brèche.

Si on fait l'hypothèse que le coefficient de partage varie peu pendant le transit de la goutte dans le jet, on obtient l'expression :

$$\tau = 1 - \frac{\sum n_j m_{lj0} (1 - \tau_{thj})^\alpha}{\sum n_j m_{lj0}} \quad (\tau_{thj} = \text{taux de flashing thermodynamique}) \quad (17)$$

Si on suppose que le taux de flashing thermodynamique est à peu près indépendant de la taille des gouttes, on a : $\tau \approx 1 - (1 - \tau_{th})^\alpha$.

Dans le cas où le taux de flashing thermodynamique est faible pour chaque classe de taille, on a :

$$\tau = \alpha \frac{\sum n_j m_{lj0} \tau_{thj}}{\sum n_j m_{lj0}} \quad (18)$$

En combinant les deux dernières hypothèses, on a : $\tau = \alpha \tau_{th}$

Dans les conditions d'une séquence RTGV, les calculs montrent que cette approximation est à peu près justifiée.

5.4 Cas de la formation de germes de vapeur suivie d'une micro-explosion

Dans l'équation (3) de bilan de masse d'une espèce : $\frac{d}{dt} (V_l C_{il} M_i) = -\frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{gaz}^{sat}} C_{ig} M_i$, nous avons considéré que le terme \dot{m}_{ev} comprend le débit d'évaporation de surface et le débit d'évaporation vers les germes contenus dans la goutte. En cas d'éclatement, la vapeur contenue dans les germes est transférée à la phase gaz et contribue par conséquent au taux de flashing thermodynamique. Dans ce cas, les relations établies plus haut entre le taux de flashing Iode et le taux de flashing thermodynamique sont exactes pour toute la phase de relaxation d'une goutte, incluant l'évaporation de surface et l'éclatement.

Il peut se trouver des situations très particulières (voir partie 1, section 4, exemples de calcul) pour lesquelles la croissance des germes ne conduit pas au seuil de rupture. On a alors des gouttes qui ont atteint l'équilibre avec le secondaire, sans surchauffe, tout en contenant encore des germes stables. Ce résultat, pas très réaliste, est lié à la simplicité du modèle. En réalité, il y a des mouvements de convection et de coalescence qui aboutissent tôt ou tard à la disparition des germes. Dans ces conditions, le taux de flashing de l'Iode établi avec les bilans (9) ou (14) conduit à une surestimation puisque l'on comptabilise en phase gaz une quantité qui reste piégée dans les gouttes. Si on écrit plus précisément le bilan sous la forme :

$$\tau_i = \frac{V_{l0} C_{il0} - V_l C_{il} - V_g C_{ig}}{V_{l0} C_{il0}} \quad (19)$$

Où V_g et C_{ig} sont respectivement le volume des germes et la concentration molaire de l'espèce considérée dans les germes en fin de relaxation, les relations précédentes sont alors correctes. La quantité $V_g C_{ig} M_i$ doit être affectée au transfert secondaire.

5.5 Les corrections à l'expression du taux de flashing

Dans l'examen de l'équation (2) de la cinétique de transfert pour une espèce :

$$\frac{d}{dt} (V_l C_{il} M_i) = -S k_{gi} (C_{ig} - C_{i\infty}) M_i - \frac{\dot{m}_{ev}}{\rho_{gaz}^{sat}} C_{ig} M_i \quad (20)$$

Nous avons dit précédemment qu'il était possible de négliger le terme de convection-diffusion tant que le liquide est en évaporation. Ceci est lié au fait que le coefficient de transfert de masse de la vapeur est beaucoup plus grand que celui de l'espèce iodée considérée. Ceci n'est plus le cas lorsque la goutte, ou les fragments consécutifs à l'éclatement, ont atteint l'équilibre avec les conditions du secondaire, auquel cas il ne reste que le terme $S k_{gi} (C_{ig} - C_{i\infty})$. Le volume de la goutte étant alors constant, on aura :

$$\frac{d}{dt} (C_{il} V_l M_i) = -S k_{gi} (C_{ig} - C_{i\infty}) M_i = -S k_{gi} \left(\frac{C_{il}}{K_i} - C_{i\infty} \right) M_i \quad (21)$$

$$\frac{d}{dt} (C_{il}) = -\frac{3}{r_G} k_{gi} \left(\frac{C_{il}}{K_i} - C_{i\infty} \right) \quad (22)$$

Qui donne lieu à la décroissance exponentielle habituelle si $C_{i\infty}$ est constant. En fait, ceci implique une description du jet qui sort du cadre de cette étude (modélisation de $C_{i\infty}$).

Des gouttes sont présentes dans le secondaire en dehors des gouttes produites par le flashing (le titre de vapeur est entre 0.2 et 0.4). Le taux de vide est proche de 1, mais on peut se poser la question du rabattement de l'iode gazeux issu du flashing à la brèche par ces gouttes en suspension, qui sont beaucoup plus grosses que les gouttes secondaires dues à l'éclatement (le taux de carry-over est de 0.25 %). Une estimation rapide montre que ce transfert est loin d'être négligeable. En fait, un calcul réaliste de cet effet nécessiterait une modélisation précise du jet. Ces deux corrections ne sont pas prises en compte dans cette étude.

5.6 Cas de plusieurs espèces volatiles

Si plusieurs espèces volatiles sont en solution dans le circuit primaire, le débit de production d'iode en phase gaz est :

$$\dot{m}_{I \rightarrow g} = \sum \dot{m}_{i \rightarrow g} = \sum \frac{\dot{m}_{l0}}{\rho_l} C_{il0} \tau_i M_i = \frac{\dot{m}_{l0}}{\rho_l} \sum C_{il0} \tau_i M_i \quad (23)$$

Le débit massique total de transfert primaire de l'iode dépend du débit volumique à la brèche $\frac{\dot{m}_{l0}}{\rho_l}$, de la concentration molaire de chaque espèce, de son taux de flashing propre et de sa masse molaire. Le taux de flashing Iode est alors :

$$\tau_{Iode} = \frac{\sum \dot{m}_{i \rightarrow g}}{\sum \frac{\dot{m}_{l0}}{\rho_l} C_{il0} M_i} = \frac{\sum C_{il0} \tau_i M_i}{\sum C_{il0} M_i} \quad (24)$$

Dans le cas où on peut faire l'approximation (1), à savoir : $\tau_i = \frac{\tau_{th}}{K_i} \frac{\rho_{liq0}}{\rho_{gaz}^{sat}}$, on obtient simplement :

$$\tau_{Iode} = \tau_{th} \frac{\rho_{liq0}}{\rho_{gaz}^{sat}} \frac{\sum \frac{C_{il0} M_i}{K_i}}{\sum C_{il0} M_i} \quad (25)$$

Il est également utile d'exprimer la fraction de l'inventaire en Iode du circuit primaire relâchée.

Elle s'exprime par :
$$F_{Iode} = \frac{\int \sum \dot{m}_{i \rightarrow g} dt}{V_{primaire} \sum C_{il0} M_i} = \frac{\int \frac{\dot{m}_{l0}}{\rho_l} \sum C_{il0} \tau_i M_i dt}{V_{primaire} \sum C_{il0} M_i}.$$

$V_{primaire}$ est le volume liquide du primaire. L'intégrale porte sur l'intervalle de temps entre le déclenchement de l'accident et l'équilibrage des pressions primaire-secondaire ou le renoyage de la brèche. En cas de renoyage de la brèche, de l'iode continue à être transféré au secondaire, dans le bouchon d'eau. Le transfert du bouchon d'eau à la phase gaz est géré par le module SOPHAEROS.

5.7 Taux de transfert primaire de l'iode (ou taux de by-pass)

Pour cette phase de l'accident, le taux de transfert primaire, tel que nous l'avons défini, peut être assimilé approximativement au taux de by-pass. Nous avons la partie transférée sous forme gazeuse et la partie transférée sous forme liquide. Il ressort de l'équation (13) que la fraction d'iode non flashée, donc qui se trouve en solution dans les gouttes produites à la brèche est $(1 - \tau_{th})^{\alpha_i}$.

Soit F_{goutte} la fraction en masse des gouttes produites à la brèche qui franchit l'étage cyclone-sécheur. Nous n'avons pas actuellement de modèle qui permette de calculer ce paramètre. Dans

les calculs de séquence, il est déterminé en fonction de la granulométrie des gouttes calculée à chaque instant et de données expérimentales (Essais ARTIST [5], [6]).

On en déduit le taux de transfert primaire (pour une espèce, sachant que la spéciation due aux déplacements d'équilibres chimiques, pendant ce laps de temps, est négligeable) :

$$\tau_{p,i} = 1 - (1 - \tau_{th})^{\alpha_i} + F_{goutte} (1 - \tau_{th})^{\alpha_i} \quad (26)$$

Troisième partie

Application à une séquence RTGV (accident de dimensionnement)

Sommaire

1	Description phénoménologique d'une RTGV de dimensionnement	174
1.1	Fonctionnement normal	174
1.2	Fonctionnement accidentel	175
1.3	Transfert primaire et transfert secondaire	177
2	Applications à un transitoire RTGV	178
2.1	Organisation du calcul	178
2.2	Données d'entrée du calcul	179
2.3	Présentation des résultats et discussion	180
2.3.1	Séquence accidentelle : vanne GCTC indisponible	180
2.3.2	Séquence accidentelle : vanne GCTC disponible	191
2.4	Synthèse	196

1 Description phénoménologique d'une RTGV de dimensionnement

Cette section a pour objectif de présenter, dans un premier temps, de manière synthétique, le fonctionnement normal d'un générateur de vapeur et plus particulièrement la place qu'il occupe dans l'architecture globale d'un réacteur à eau pressurisée (REP). D'autre part, lors d'une séquence accidentelle, un transfert de fluide primaire vers le circuit secondaire se produit, ce qui entraîne un transfert de radioéléments. Pendant cette phase, différentes actions sont réalisées, de manière automatique et sur ordre de l'opérateur, afin de conduire le réacteur dans un état d'arrêt sécurisé. Nous proposons de décrire le déroulement des principales étapes survenant depuis la détection de la brèche sur un tube GV jusqu'à l'équilibrage des pressions entre les deux circuits, c'est-à-dire la fin de l'accident.

1.1 Fonctionnement normal

Le générateur de vapeur, situé dans l'enceinte de confinement, se trouve à l'interface entre le circuit primaire et le circuit secondaire. Le circuit primaire est composé principalement, du coeur où ont lieu les réactions de fission nucléaire, de pompes permettant au fluide de transporter la chaleur produite au niveau du coeur vers les générateurs de vapeur (échangeurs de chaleur) et d'un pressuriseur permettant de contrôler la pression du fluide primaire. En effet, il est primordial que le fluide primaire reste sous forme liquide afin d'évacuer la chaleur produite sans endommager les crayons combustible. La chaleur dégagée par les réactions de fission étant très importante ($T_{\text{liq}} = 595 \text{ K}$), il est donc nécessaire d'imposer une pression très élevée. Typiquement, pour un REP 900, la pression de fonctionnement du circuit primaire est $P_{\text{liq}} = 155 \text{ bar}$. Le fluide primaire est ensuite acheminé via les pompes primaires vers les boîtes à eau côté branche chaude des différents GV (3 GV pour un REP 900). Une boîte à eau permet de répartir le débit liquide dans les différents tubes composant le faisceau tubulaire du générateur de vapeur. Le fluide primaire va transmettre son énergie au fluide secondaire par conduction à travers les différents tubes (très grande surface d'échange).

Le circuit secondaire est composé principalement d'une conduite vapeur permettant d'acheminer la vapeur générée à l'intérieur des GV vers la turbine, d'un condenseur permettant de transformer la vapeur basse pression sortant de la turbine en eau liquide et d'une alimentation d'eau permettant au fluide secondaire sous forme liquide de retourner aux générateurs de vapeur. La pression et la température du gaz dans le générateur de vapeur sont respectivement $P_{\text{gaz}} = 58 \text{ bar}$ et $T_{\text{gaz}} = 546 \text{ K}$.

Deux dispositifs de sécurité, disposés en amont de la turbine, entrent en jeu dans les séquences accidentelles type RTGV :

La vanne **GCTC**, groupe contournement turbine condenseur, permet de by-passer la turbine en redirigeant toute la vapeur produite par les générateurs de vapeur vers le condenseur.

Les vannes **GCTA**, groupe contournement turbine atmosphère, disposées sur chacune des branches vapeur des trois générateurs permettent, si la vanne GCTC est indisponible, d'évacuer la vapeur produite vers l'environnement .

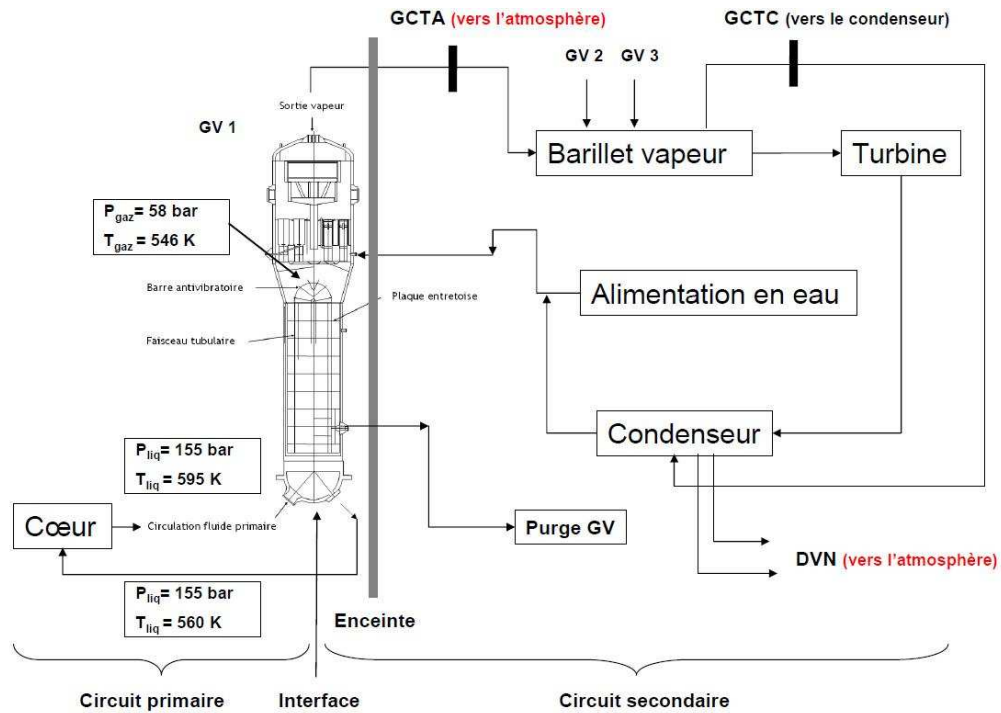


FIGURE 70 – Schéma du circuit primaire et secondaire d'un REP

1.2 Fonctionnement accidentel

Contrairement aux accidents graves (accident conduisant à une fusion partielle ou complète du cœur), un accident de dimensionnement est une séquence accidentelle intégrée dès la conception du réacteur. L'étude d'une telle séquence a pour objectif d'évaluer le fonctionnement des systèmes de sauvegarde, l'impact des actions de l'opérateur et les conséquences éventuelles. Ces accidents ont une probabilité d'occurrence bien plus grande que celle des accidents graves.

Nous étudions dans le cadre de ce travail une séquence accidentelle de type RTGV survenant dans un REP 900 et en supposant dans un premier temps la vanne GCTC indisponible (en position fermée), et dans un deuxième temps la vanne GCTC disponible.

L'ouverture d'une brèche sur un tube du générateur de vapeur provoque une chute de pression du circuit primaire et conduit à un transfert d'une certaine quantité de fluide primaire dans le GV (circuit secondaire). Le débit à la brèche a fait l'objet d'un important travail de modélisation et de validation sur des expériences analytiques dans le cadre du développement des codes de thermohydraulique CATHARE et CESAR.

⇒ Temps caractéristiques pour un scénario avec la vanne GCTC indisponible

Les temps caractéristiques indiqués dans cette section proviennent des données thermohydrauliques des deux séquences étudiées (respectivement figures 73 à 76 et figures 84 à 87).

Pendant cette première phase de diminution de pression, le pressuriseur compense le débit d'eau liquide perdu à la brèche en injectant de l'eau dans le circuit primaire. Lorsque la pression du circuit primaire chute en dessous de 131 bar (figure 73 à 76), le signal d'arrêt automatique du réacteur (AAR) est envoyé aux opérateurs ($t = 433$ s). Suite au signal d'arrêt automatique du réacteur, le signal d'isolement de la turbine est déclenché. L'isolement effectif de la turbine est réalisé quasi instantanément ($t=434$ s).

On observe alors une diminution importante des niveaux d'eau dans les trois GV (arrêt du soutirage de la vapeur, alors que le réacteur est encore en fonctionnement, 100 % PN). Ceci s'accompagne d'une augmentation brutale de la pression du gaz côté secondaire (environ 72 bar). Cette pression correspond à la pression de tarage de la vanne GCTA. Il se produit alors un premier rejet à l'environnement.

Pour répondre aux objectifs de ce travail (étude du rejet pour la cas d'une brèche située au dessus du bouchon d'eau), on considère une brèche située en partie haute du faisceau tubulaire. De plus, on initie la rupture de la brèche avec un niveau d'eau dans le générateur de vapeur égal à 25% de la gamme étroite. Ceci conduit au déclenchement du signal bas niveau GV (ASG) à 436 s, puis à l'arrêt automatique du réacteur (AAR) à $t=437$ s pour un niveau d'eau à 15% de la gamme étroite. Normalement, le niveau d'eau initial est à 44% de la gamme étroite, ce qui fait que la brèche n'est pas dénoyée pendant cette première phase. Néanmoins, le présent scénario est considéré comme réaliste.

La pression du circuit primaire continue de chuter et passe en dessous 120 bar. Il s'agit de la pression seuil de déclenchement du signal de l'injection de secours (IS) pour le circuit primaire ($t=450$ s). La mise en service effective de l'injection de secours se produit quelques secondes après ($t=461$ s).

A ce stade de l'accident, la pression du circuit primaire continue de chuter tandis que la pression de la ligne vapeur est maintenue constante grâce aux vannes GCTA (pression de tarage de 72 bar). L'injection de secours conduit à une augmentation de la pression du circuit primaire et par conséquent à une augmentation du débit liquide au niveau de la brèche. (L'alimentation de secours des trois GV est encore opérationnelle). Le niveau d'eau dans le GV accidenté augmente et la brèche se retrouve immergée au bout de 566 secondes. Au bout de 1050 secondes, l'alimentation en eau du GV accidenté (ASG) est coupée (risque de débordement).

A ce stade, l'isolement de ce GV sur la ligne vapeur est effectif. Le refroidissement du coeur débute alors. Un refroidissement rapide est demandé par l'opérateur jusqu'à l'arrêt de l'injection de secours ($t=1350$ s). Puis débute une phase de refroidissement plus lent (-56 °C.h⁻¹) jusqu'aux conditions d'arrêt à froid du réacteur.

Dans ce scénario, la ligne de décharge de la vapeur vers le condenseur contrôlée par la vanne GCTC est fermée. De plus, la turbine, ainsi que le générateur de vapeur accidenté, sont également isolés. On observe alors une augmentation de la pression dans la ligne vapeur. Les deux GV sains sont interconnectés par le barillet vapeur. Dans ces conditions, la pression devient supérieure à la pression de tarage des deux vannes GCTA et la masse de vapeur produite au niveau des deux générateurs en marche est évacuée vers l'environnement jusqu'à l'arrêt à froid du réacteur.

⇒ Scénario pour lequel la vanne GCTC est disponible

Dans ce cas, le refroidissement s'effectue par la condenseur, et la vapeur produite au niveau des deux générateurs en fonctionnement est acheminée par la ligne vapeur jusqu'au barillet vapeur. Elle est ensuite envoyée directement au condenseur par la ligne qui by-passe la turbine (vanne GCTC ouverte, turbine isolée). Dans ces conditions, la pression de la ligne vapeur est plus faible que la pression de tarage des vannes GCTA ($P=72$ bar). Deux cheminées de soutirage (débit de 50 kg.h⁻¹ chacune) permettent de réguler la pression au niveau du condenseur (pression de fonctionnement très faible, quelques mbar). Notons que le code de thermohydraulique CESAR ne tient pas compte du condenseur dans la modélisation du circuit secondaire (condition aux limites). Les temps caractéristiques de ce scénario sont pratiquement identiques à ceux du scénario précédent, sauf pour le temps d'immersion de la brèche ($t=603$ s).

1.3 Transfert primaire et transfert secondaire

L'objet de ce travail est l'évaluation des rejets liquide et gazeux qui se produisent avant l'immersion de la brèche. Ces rejets sont constitués de l'iode à l'état gazeux produit à la brèche (flashing de l'iode) et de l'iode contenu dans les gouttelettes qui franchissent l'étage supérieur du GV accidenté (cyclone et sécheurs). Ceci constitue le **transfert primaire**. Jusqu'à l'ouverture de la vanne GCTA du générateur de vapeur accidenté, ces rejets vont contaminer l'ensemble du circuit secondaire. Une partie peut s'échapper à l'environnement pendant le laps de temps qui sépare l'ouverture de cette vanne et l'immersion de la brèche.

La proportion des gouttelettes liquides qui ne franchissent pas la partie supérieure du GV se retrouve dans le bouchon d'eau ou sur les structures. Cette fraction contribue au **transfert secondaire**. Après l'immersion de la brèche, la contamination apportée par le débit à la brèche reste en phase liquide. Ceci contribue également au **transfert secondaire**.

⇒ Cas où la vanne GCTC est indisponible

Pendant la première phase de l'accident, c'est-à-dire jusqu'à l'isolement de la turbine, tous les rejets primaires sont contenus dans le circuit secondaire : les trois générateurs de vapeur communiquent via le condenseur, et il se produit alors une contamination de toute la ligne vapeur ainsi que des deux autres générateurs de vapeur.

Jusqu'à l'isolement de la turbine, la majorité des rejets contamine le condenseur et il y a possibilité de rejet à l'environnement par les cheminées de soutirage (DVN). A l'arrêt automatique du réacteur, la turbine est isolée et la vanne GCTC est indisponible. Jusqu'à l'isolement du générateur de vapeur accidenté, les trois GV communiquent par l'intermédiaire du barillet vapeur. Ils permettent le refoidissement du coeur via les vannes GCTA. La majorité des rejets pendant cette phase s'effectue par la vanne GCTA du GV accidenté. Lorsque le générateur de vapeur accidenté est isolé, seule la contamination résiduelle présente dans les deux GV en fonctionnement est susceptible d'être relâchée à l'environnement.

⇒ Cas où la vanne GCTC est disponible

Dans ces conditions, nous avons vu précédemment qu'il était possible d'assurer le refroidissement du coeur sans solliciter les vannes GCTA. Toutes la vapeur contaminée est acheminée vers le condenseur et les seuls rejets à l'environnement possible se font par les cheminées DVN (soutirage du condenseur).

2 Applications à un transitoire RTGV

2.1 Organisation du calcul

Le module de thermohydraulique utilisé pour modéliser les circuits primaire et secondaire dans ASTEC est le **module CESAR**. Il s'agit d'un modèle composé de 5 équations : équations de conservation de la masse et de l'énergie pour la phase liquide et la phase gaz et une équation de transport pour le mélange liquide-gaz (relation de fermeture, flux de dérive). CESAR est un module structuré en volumes de contrôle (figure 71). Notons que CESAR ne calcule pas la thermohydraulique du condenseur et s'arrête au niveau de la turbine : la turbine et le condenseur sont considérés comme des conditions aux limites, de même que les vannes GCTA.

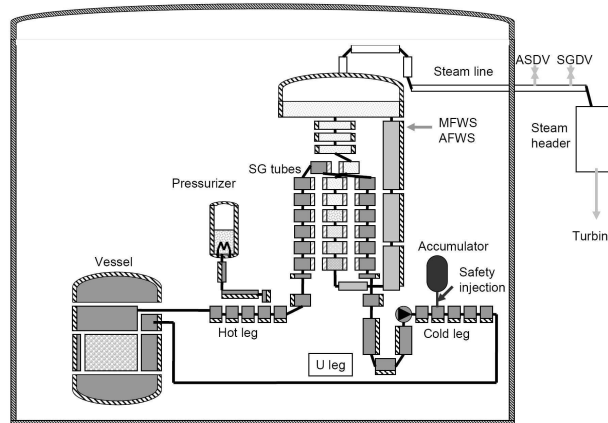


FIGURE 71 – Volumes de contrôle du module CESAR

Le module CESAR communique au module DROPLET les différentes conditions thermohydrauliques nécessaires pour le calcul côté primaire (**débit liquide à la brèche, pression et température du liquide**) ainsi que les conditions aux limites côté secondaire (**pression et température du gaz, fraction molaire de vapeur**).

Il est très important de souligner que CESAR ne considère que les conditions du secondaire en vapeur pure (pas de gaz incondensables). En réalité, au niveau des épingles GV, on a un titre de vapeur compris entre 0.2 et 0.4 ce qui correspond à un taux de vide proche de 1. L'hypothèse de la vapeur pure est justifiée par le fait que, très rapidement au cours d'un cycle, les gaz incondensables (principalement de l'azote) sont soutirés au niveau du condenseur. Comme nous l'avons montré dans la première partie, cette situation conduit au flashing isenthalpique qui est pris en compte par CESAR. Pour d'autres types d'accident, comme les **séquences RTV** (rupture tuyauterie vapeur située dans l'enceinte de confinement ou dans un bâtiment annexe) ou les **séquences V-LOCA** (rupture de piquage primaire dans l'enceinte de confinement), cette hypothèse n'est plus justifiée mais le module DROPLET peut également prendre en compte ce type d'accident de dépressurisation. Enfin, comme nous l'avons vu précédemment, l'hypothèse de la vapeur pure n'est pas justifiée dans les conditions expérimentales (NRC, INERIS,...).

Le module DROPLET, développé dans le cadre de ce travail, calcule au niveau de la brèche, en champ proche, **l'évolution de la granulométrie des gouttes générées ainsi que la masse vaporisée pour chaque classe de taille (taux de flashing)**. Lorsque les gouttes liquides sont à l'équilibre thermodynamique avec le secondaire, l'information est transmise au module SOPHAEROS qui calcule leur transport dans le circuit secondaire (voir figure 72).

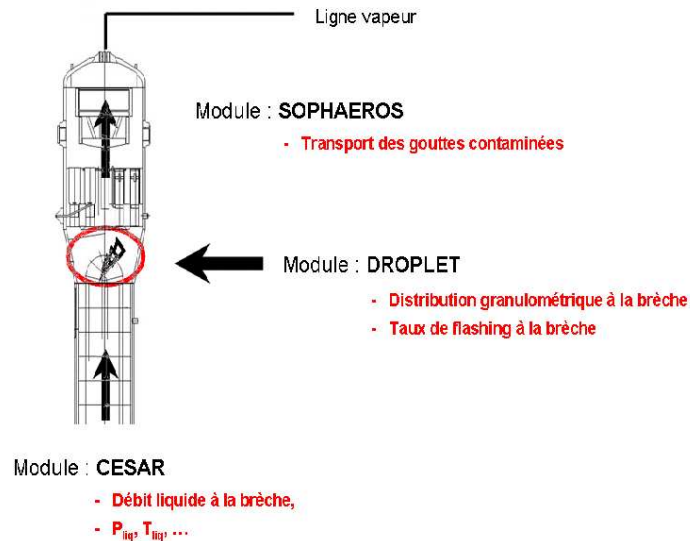


FIGURE 72 – Localisation des différents modules du calcul

Le module SOPHAEROS calcule la spéciation chimique des différentes espèces présentes dans le circuit primaire et secondaire ainsi que le transport des gouttelettes. La spéciation de l'iode est calculée à l'aide d'un solveur numérique et d'une base de données thermodynamiques regroupant les différentes constantes cinétiques nécessaires au calcul. En s'appuyant sur les données concernant le flashing et la granulométrie calculées par le module DROPLET, ainsi que sur les valeurs des coefficients de partage des différentes espèces iodées volatiles, SOPHAEROS évalue le transfert primaire de l'iode (ainsi que le transfert secondaire qui n'est pas étudié pour l'instant).

2.2 Données d'entrée du calcul

⇒ Données thermohydrauliques

Les principaux événements (AAR, IS,...) sont consignés dans un fichier **événements** que l'on peut éventuellement modifier, mais qui, dans le cas présent correspond aux recommandations de l'exploitant. Par exemple : envoi du signal d'AAR pour une pression pressuriseur inférieure à 131 bar, signal de l'IS sur très basse pression pressuriseur (120 bar),...

Les données thermohydrauliques qui restent à préciser sont donc :

- La localisation de la brèche : côté branche chaude en partie haute du faisceau tubulaire
- Diamètre de la brèche : $d = 2$ cm (diamètre interne d'un tube GV)
- Le niveau du GV à l'ouverture de la brèche : 25% de la gamme étroite
- La condition d'arrêt du calcul du transitoire : sur équilibrage des pressions circuit primaire-secondaire

⇒ Données thermochimiques

Le débit de dose ainsi que la concentration initiale d'iode actif sont calculés à partir des données communiquées par EDF (Spectres d'activité primaire et inventaire du coeur pour un REP 900, EDF SEPTEN, documents internes). Le débit de dose utilisé pour ce calcul est : $2.0 \cdot 10^{-4} \text{ Gy.s}^{-1}$ ($\text{J.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$). On considère ce débit de dose constant pendant toute la durée du transitoire. En particulier, il n'est pas modifié par le pic d'iode.

La quantité totale d'iode initialement en solution dans le circuit primaire est déduite de la quantité d'iode actif en tenant compte de la proportion d'isotopes stables (95% de l'inventaire isotopique en iode du coeur) qui est obtenue par un calcul DARWIN [102]. Le code DARWIN est un code de neutronique développé au CEA. En pratique, on obtient, avec le module SOPHAEROS, cette concentration en injectant une source de I^- sur une durée suffisamment longue pour obtenir un état permanent. Le calcul prend en compte le débit d'épuration du circuit RCV ($3,76 \text{ kg.s}^{-1}$). La concentration d'iode obtenue en régime permanent (équivalent en I^-) est $5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$.

En fait, la spéciation finale en régime permanent ne dépend pas de l'espèce injectée. Cependant, il est plus représentatif d'injecter une source de I^- car cet ion est produit suite à la solubilisation du CsI contenu dans le jeu combustible-gaine.

Pour compléter le calcul de la spéciation, il faut fournir comme données supplémentaires le pH (pH=7,2), la concentration d'oxygène dissout ($[\text{O}_2] = 2,3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.m}^{-3}$) et la concentration des impuretés présentes dans l'eau du circuit primaire, principalement le fer et le cuivre ($[\text{Fe}^{2+}] = 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ mol.m}^{-3}$, $[\text{Cu}^{2+}] = 5,0 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-3}$).

⇒ Données concernant le pic d'iode

On considère une loi pour l'évolution de la masse d'iode injectée correspondant au pic d'iode de type :

$$m_I = A \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right) \quad (1)$$

Avec $\tau = 3600$ secondes (t est compté à partir du début du pic d'iode) et A l'amplitude : $A = 7,7 \cdot 10^{-5} \text{ kg}$ (valeur à comparer au $1,75 \cdot 10^{-5} \text{ kg}$ de la contamination en régime permanent).

Cette amplitude correspond à $2,3 \cdot 10^{-9} \text{ mol.l}^{-1}$ à comparer au $5,0 \cdot 10^{-10} \text{ mol.l}^{-1}$ de la contamination en régime permanent. L'amplitude correspond à l'amplitude maximale du pic d'iode établie (Marc Philippot [70]) après analyse de 210 transitoires d'arrêt. La durée du pic correspond à la durée minimale observée sur ces 210 transitoires. Ces données ont été choisies dans le but de maximiser l'effet du pic d'iode.

Les coefficients de partage des espèces volatiles ne sont pas inclus dans les données d'entrée puisque qu'ils font partie des lois physiques (Partie 2 : Flashing de l'iode).

2.3 Présentation des résultats et discussion

2.3.1 Séquence accidentelle : vanne GCTC indisponible

On observe, dès les premiers instants du transitoire, une chute de pression du primaire consécutive à l'ouverture de la brèche. Le fait de considérer la vanne GCTC indisponible conduit, lors de l'isolement de la turbine, à une augmentation brutale de la pression dans le circuit secondaire (figure 73). L'arrêt automatique du réacteur, quasiment au même instant, entraîne

la chute de pression et de température du primaire observées sur les figures 73 et 74. Ceci a pour conséquence (figure 74) une diminution très rapide de la surchauffe (le ΔT passe de 20 °C à 3,5 °C). Cette situation entraîne une chute instantanée du taux de flashing thermohydraulique et donc du taux de flashing de l'iode à la brèche (figure 78).

On observe à cet instant, sur les figures 75 et 76 une diminution rapide du débit liquide et de la vitesse du liquide à la brèche, jusqu'au déclenchement de l'injection de secours. La réaugmentation du débit après le déclenchement de l'IS conduit à l'immersion de la brèche en un temps relativement court (à environ 600 secondes).

L'augmentation brutale de la température du secondaire GV suite à l'isolement de la turbine est une limitation de CESAR. La température du secondaire est mise instantanément à $T_{\text{sat}}(P_2)$, sans aucune inertie. D'autre part, on atteint la pression de consigne GCTA quasi instantanément.

Il faut souligner que l'ensemble des conduites vapeur représente un volume très important (le barillet vapeur se trouve à 100 m des sorties GV). Même en admettant une élévation de la pression secondaire aussi rapide, du fait que le titre de vapeur est relativement faible, on devrait observer une réduction du déséquilibre liquide-vapeur dans le GV accidenté grâce à une nucléation très rapide. Ceci contribuerait à limiter l'augmentation brutale de la pression.

Comme le module DROPLET a besoin des conditions aux limites fournies par CESAR, cette situation a des conséquences directes sur le taux de flashing. En effet, la très faible surchauffe calculée par CESAR conduit à des gouttes faiblement surchauffées contenant un très grand nombre de petits germes. Cependant, dans cette situation particulière (prévue dans la section exemples de calcul et dans la section taux de flashing iode), les gouttes atteignent l'équilibre avec le secondaire sans fragmentation. Comme l'évaporation de surface est quasi nulle car la croissance des germes a fait baisser la température de la goutte, le taux de flashing tombe à zéro (figure 77). Si on ne tient pas compte des germes, on retrouve le taux de flashing isenthalpique de CESAR qui montre un faible taux de flashing subsistant entre l'isolement de la turbine et l'immersion de la brèche.

Notons que le taux de flashing calculé jusqu'à l'AAR (7,7 %) est sensiblement inférieur au taux de flashing mesuré dans les essais NRC, ce qui est logique puisque, à juste titre, on considère que le secondaire est en vapeur pure.

Si on tient compte des germes, le taux de flashing est nul pendant cette phase mais l'iode gazeux emprisonné dans les gouttes est susceptible d'être transféré à la ligne vapeur par la fraction des gouttes qui franchit l'étage supérieur du GV comme on le verra plus loin.

On voit que le taux de flashing iode tombe aussi brutalement à zéro à environ 400 secondes pour les raisons discutées juste avant. On remarque qu'il est supérieur au taux de flashing thermodynamique, ce qui est tout à fait possible (voir discussion dans la section flashing de l'iode). Ce résultat est lié au fait que l'espèce iodée volatile majoritaire est l'acide hypoïdeux HOI qui a un coefficient de partage très faible.

Les figures 79 et 80 montrent la répartition entre les espèces volatiles et non volatiles au cours de ce transitoire. L'espèce majoritaire volatile est le HOI. On trouve également sous forme de traces trois espèces volatiles, IO, IO₃ et I (iode atomique). Pour cette phase, on constate également que l'effet du pic d'iode est marginal.

On voit, sur la figure 91, que le pic d'iode, qui débute à l'arrêt automatique du réacteur, a un impact relativement faible sur le transfert primaire (immersion de la brèche très rapide). Cependant, ce pic aura probablement un impact majeur sur le transfert secondaire.

En ce qui concerne le transfert primaire sous forme liquide, on voit sur la figure 82 la granulométrie (courbes de masse cumulée) pour différents instants qui correspondent :

- Au début de la séquence
- A un temps juste avant l'arrêt automatique du réacteur
- Juste après le démarrage de l'IS
- Juste avant l'immersion de la brèche

On observe deux situations très distinctes : pendant la phase précédant l'AAR, nous avons d'une part un débit liquide élevé et d'autre part un degré de surchauffe supérieur à 20 °C (cas typique des essais NRC). Nous avons donc une fragmentation mécanique significative accompagnée d'une fragmentation thermique efficace. Ceci conduit à un mmd de l'ordre de 20 μm . Presque instantanément, dès que le taux de flashing tombe à zéro, on obtient des gouttes non fragmentées mais contenant environ 40 % de vapeur. On constate (figure 82) que la distribution obtenue pendant la première phase est très analogue aux distributions expérimentales de la NRC. La dispersion est relativement faible (entre 10 et 60 μm). Pendant la seconde phase (de l'AAR jusqu'à l'immersion de la brèche), la distribution granulométrique (issue la fragmentation mécanique), montre une dispersion beaucoup plus grande (entre 30 et 500 μm).

Pour quantifier l'évaluation de la rétention des gouttes par l'étage cyclone-sécheur du générateur de vapeur, on utilise les résultats provenant des essais ARTIST, indiqués par L.Cantrel [103]. Bien que les essais ARTIST [5], [6], aient été réalisés pour des débits de gaz beaucoup plus faibles (entre 10 et 800 $kg \cdot h^{-1}$), on constate un comportement asymptotique en fonction du débit gazeux. Dans ces conditions, les facteurs de rétention obtenus pour des ammd (diamètre aérodynamique médian en masse) de respectivement 59,9 μm , 30,1 μm et 18,5 μm , nous permettent de donner une estimation de la fraction en masse des gouttes retenue dans le GV. En se servant des ces résultats, et de la distribution en taille des gouttes obtenue avant l'arrêt automatique du réacteur (figure 82), qui correspond à un ammd :

$$ammd = \sqrt{\frac{\rho_{liq}}{1000}} mmd \quad (2)$$

soit un $ammd = \frac{20}{1,2} = 16,7 \mu m$, on détermine un facteur de rétention moyen des gouttes égal à 0,7. Au final, la taux de transfert de l'iode lié aux gouttes est :

$$\tau_{goutte} \approx 0.3(1 - \tau_{iode}) \approx 0.3(1 - 0.22) \approx 0.23 \quad (3)$$

En revanche, après l'ARR et jusqu'à l'immersion de la brèche, d'après la figure 82, la fraction liquide qui est transférée à la ligne vapeur est nulle.

La figure 83 synthétise les différents rejets en terme de masse d'iode pour cette séquence. On montre sur la même figure le rejet obtenu dans le cadre de l'hypothèse rejet de base [101] (1% de l'activité en iode transférée au secondaire), le rejet lié au flashing (rejet gazeux), le rejet liquide obtenu en tenant compte de la distribution granulométrique calculée (taux de by-pass) et le rejet total calculé.

L'hypothèse rejet de base [101] considère que 1 % de l'activité en iode qui a transité par la brèche est rejetée à l'environnement pendant toute la durée du transitoire, sans distinction

entre le cas brèche non immergée et le cas brèche noyée. Dans cette hypothèse, il n'y a pas de distinction entre le transfert primaire et le transfert secondaire. Cette dernière phase (transfert secondaire) n'est pas traitée dans la présente étude.

Dans la présente étude, le rejet est obtenu essentiellement pendant la première phase de l'accident (jusqu'à l'arrêt automatique du réacteur) et la contribution du transfert en phase liquide (en fonction de la granulométrie calculée) est comparable à celle du transfert en phase gaz. On voit que le résultat de notre calcul donne un rejet d'iode en masse supérieur à celui obtenu avec l'hypothèse rejet de base [101], même sans tenir compte du transfert secondaire. Il faut noter que le calcul avec l'hypothèse rejet de base met en évidence l'effet du pic d'iode (hypothèse maintenue après l'immersion de la brèche).

Résumé :

Concentration en iode total (circuit primaire)	$5,0 \cdot 10^{-10} \text{ mol.l}^{-1}$
Masse totale liquide (circuit primaire)	187,5 tonnes
Masse d'iode total dans le circuit primaire en régime permanent	$1,75 \cdot 10^{-5} \text{ kg}$
Masse de liquide injectée jusqu'à l'immersion de la brèche	17,7 tonnes
Masse de liquide injectée jusqu'à l'équilibrage des perssions	43,8 tonnes
Masse d'iode total transférée au secondaire (jusqu'à l'immersion de la brèche)	$1,6 \cdot 10^{-6} \text{ kg}$
Masse d'iode total transférée au secondaire jusqu'à la fin du transitoire, pic d'iode compris	$1,14 \cdot 10^{-5} \text{ kg}$
Masse liée au pic d'iode (de l'AAR à la fin du transitoire)	$1,0 \cdot 10^{-5} \text{ kg}$
Taux de flashing thermodynamique	7,7 %
Taux de flashing iode	22,0 %
Taux de transfert des gouttes (by-pass)	23,0 %
Masse d'iode transférée sous forme gaz (jusqu'à l'immersion de la brèche)	$3,9 \cdot 10^{-7} \text{ kg}$
Masse d'iode transférée par les gouttes (jusqu'à l'immersion de la brèche)	$4,1 \cdot 10^{-7} \text{ kg}$
Transfert primaire (en sortie du GV)	$8,0 \cdot 10^{-7} \text{ kg}$
Rejet de base (hypothèse EDF)	$1,14 \cdot 10^{-7} \text{ kg}$
Rejet d'activité calculé par le modèle (activité spécifique de ^{131}I : $4,6 \cdot 10^{18} \text{ (Bq.kg}^{-1}\text{)}$)	185 GBq
Rejet d'activité (hypothèse rejet de base, EDF) (activité spécifique de ^{131}I : $4,6 \cdot 10^{18} \text{ (Bq.kg}^{-1}\text{)}$)	26 GBq

Remarque : Activité calculée pour 95 % d'isotopes stables.

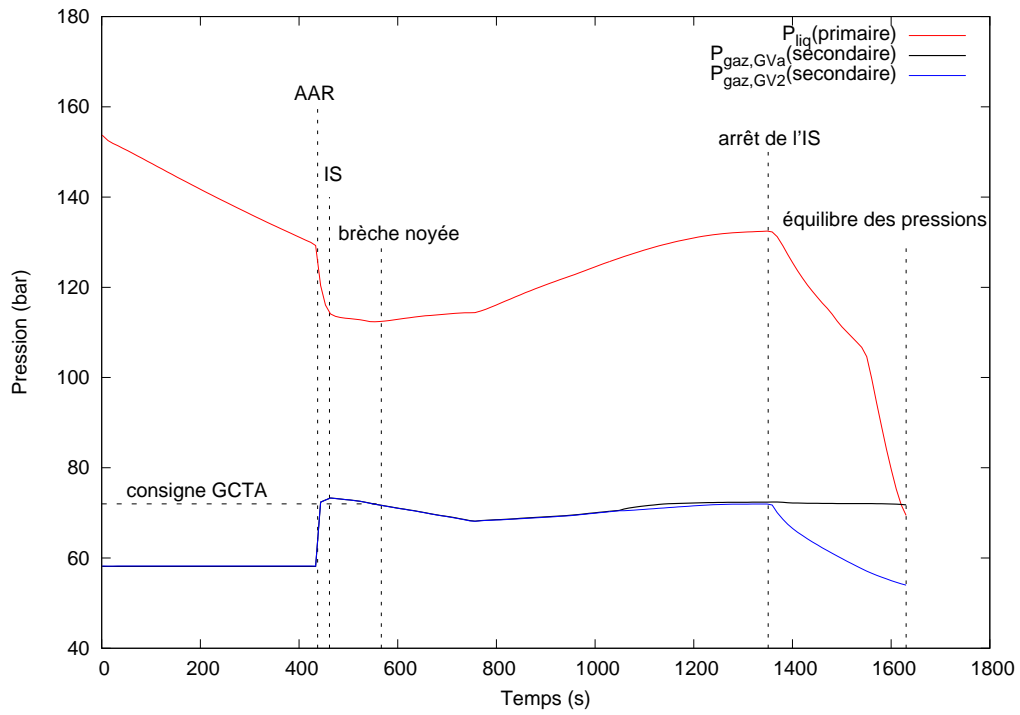


FIGURE 73 – Evolution de la pression du circuit primaire et du circuit secondaire

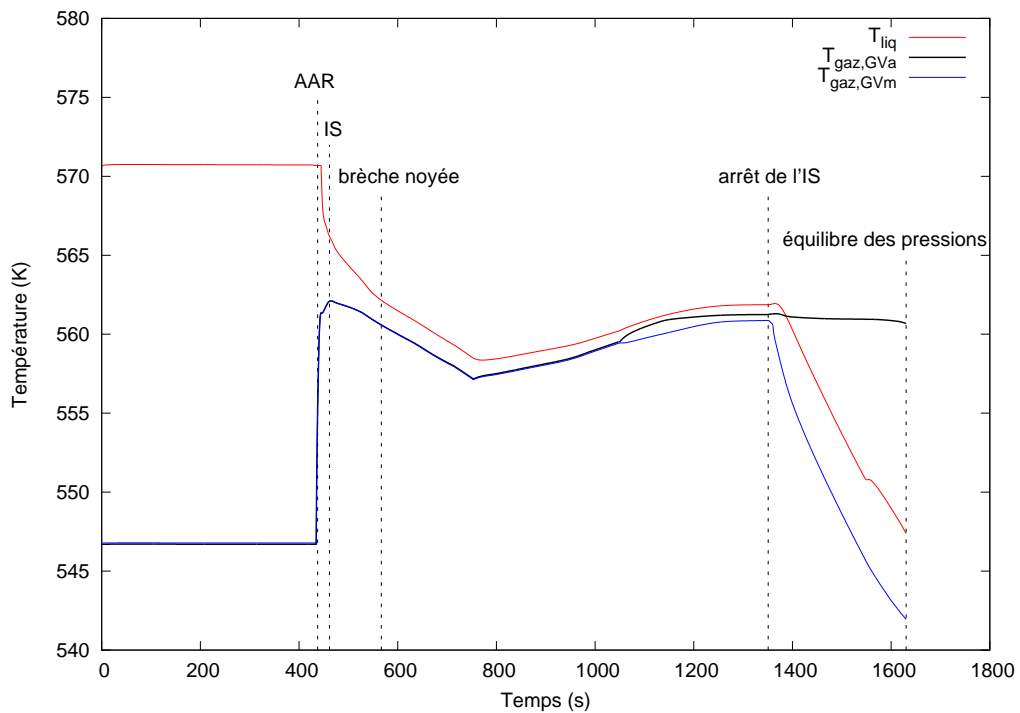


FIGURE 74 – Evolution de la température du circuit primaire et du circuit secondaire

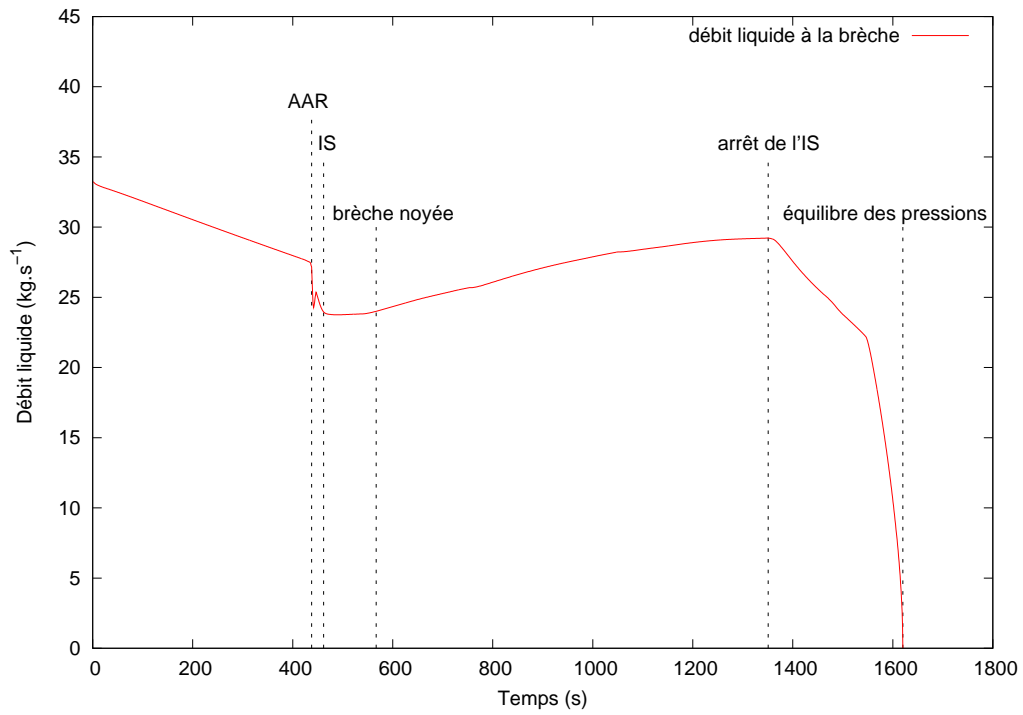


FIGURE 75 – Evolution du débit liquide au niveau de la brèche

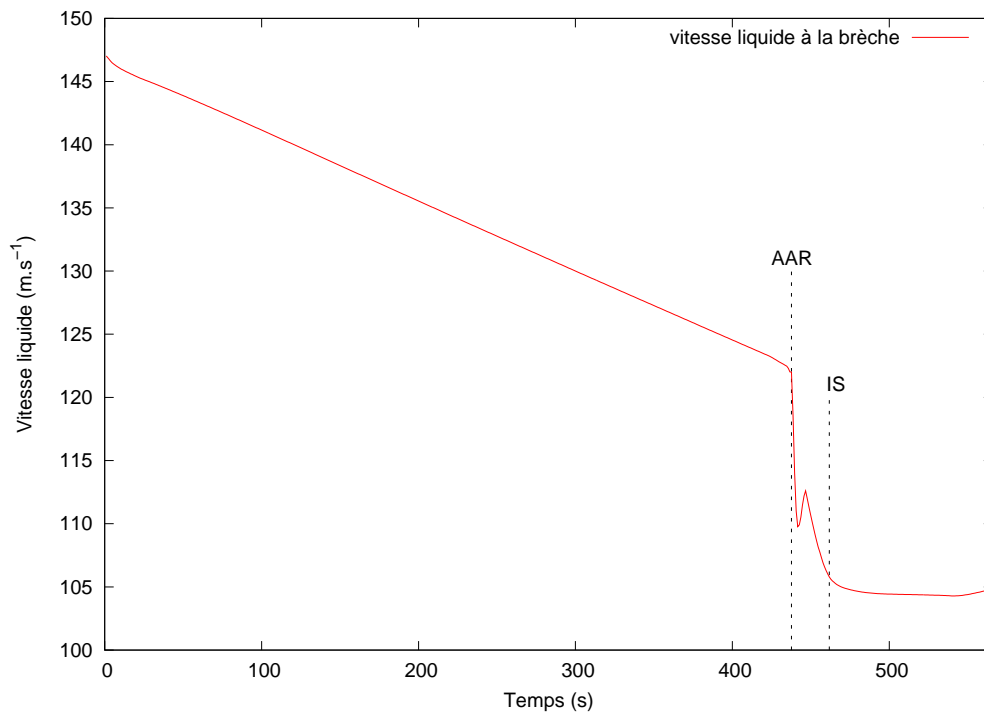


FIGURE 76 – Evolution de la vitesse liquide au niveau de la brèche

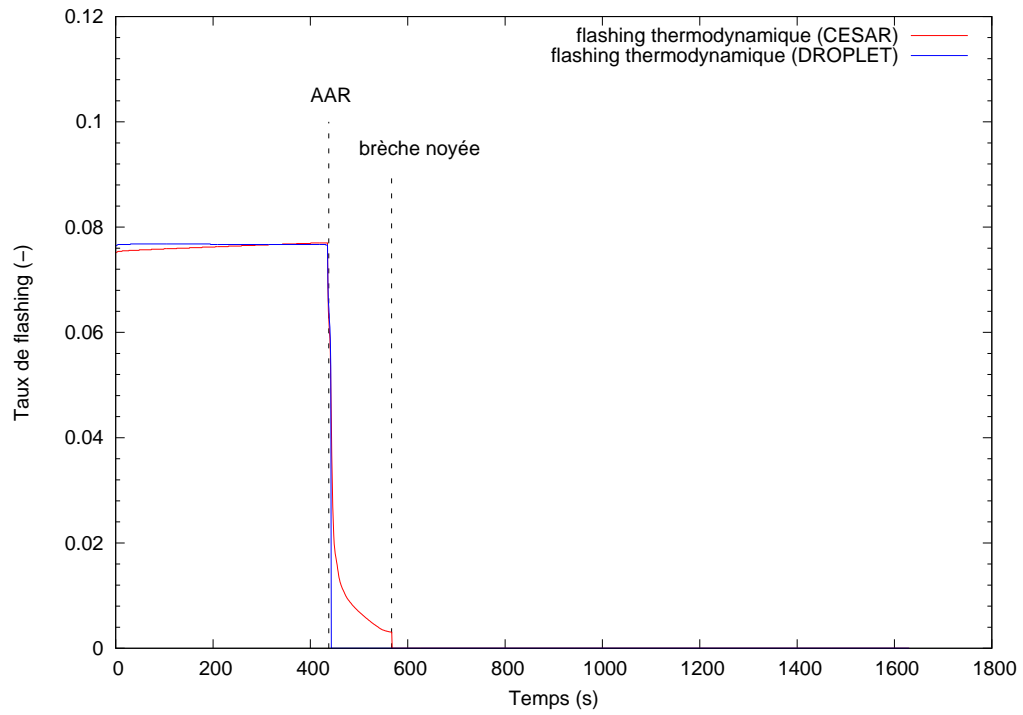


FIGURE 77 – Taux de flashing CESAR (ou DROPLET sans germes) et taux de flashing DROPLET

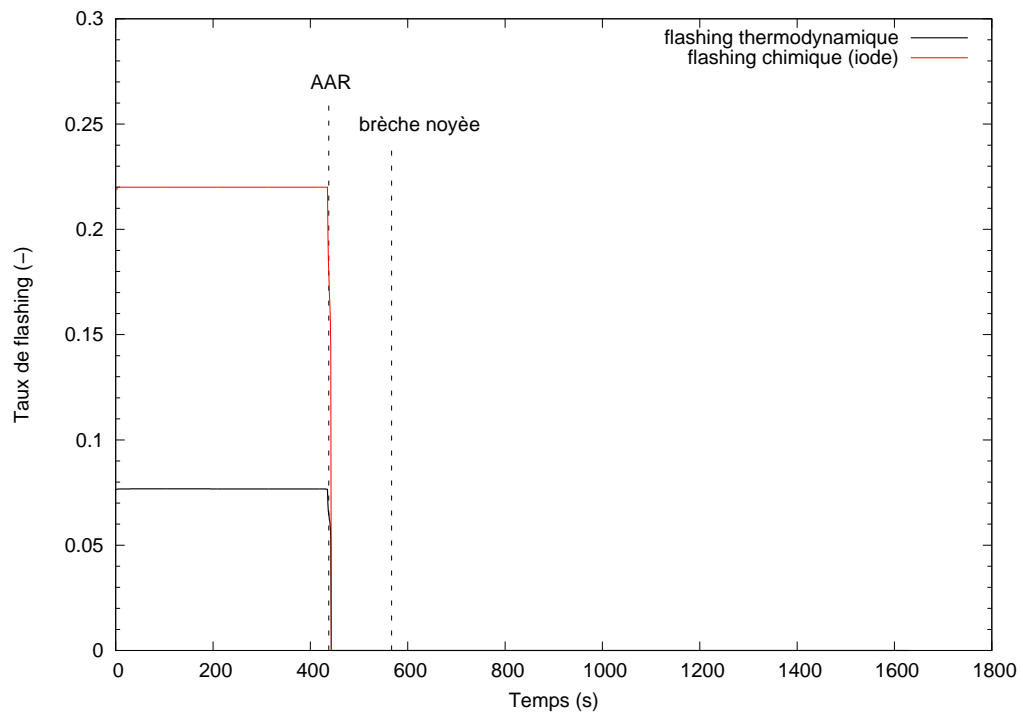


FIGURE 78 – Taux de flashing thermohydraulique et taux de flashing iode

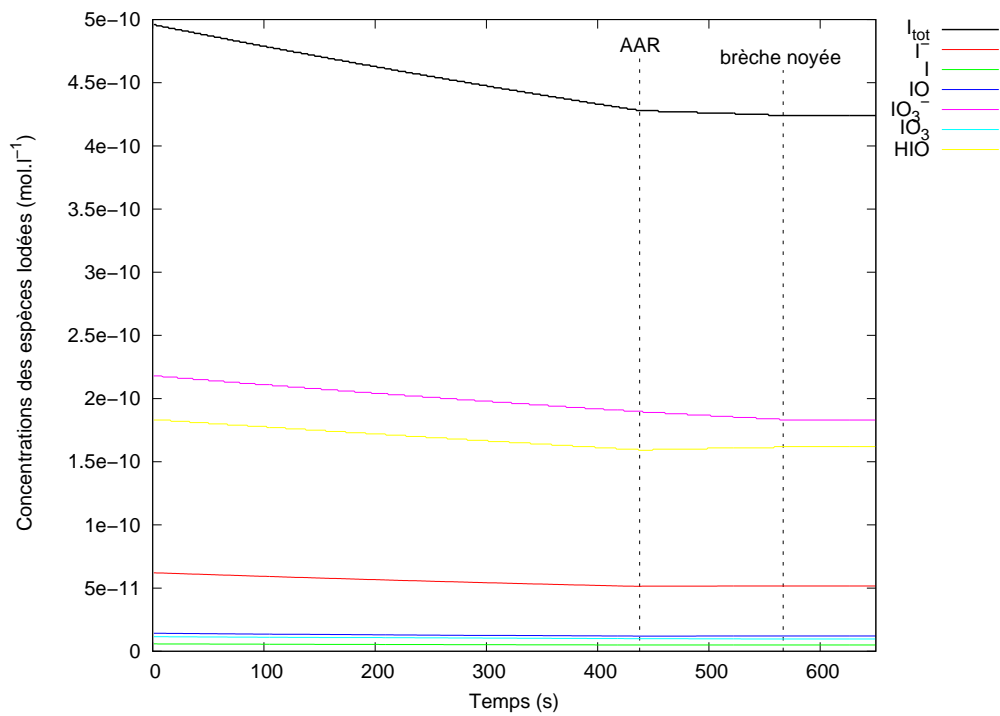


FIGURE 79 – Evolution de la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire

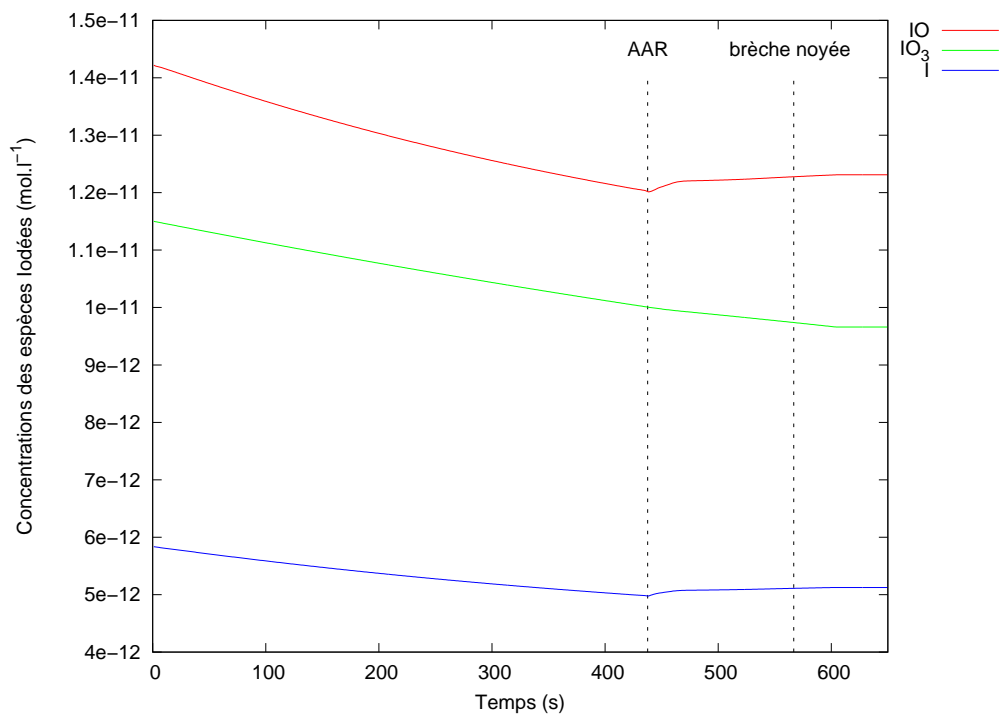


FIGURE 80 – Evolution de la spéciation chimique de l'iode (traces) dans le circuit primaire

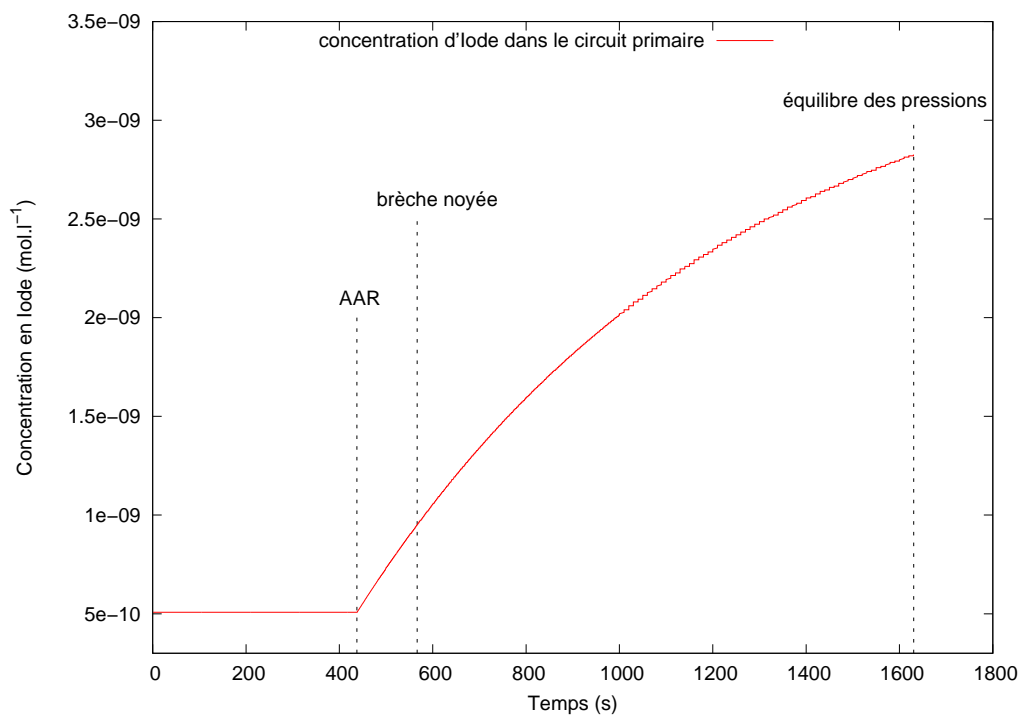


FIGURE 81 – Pic d'iode

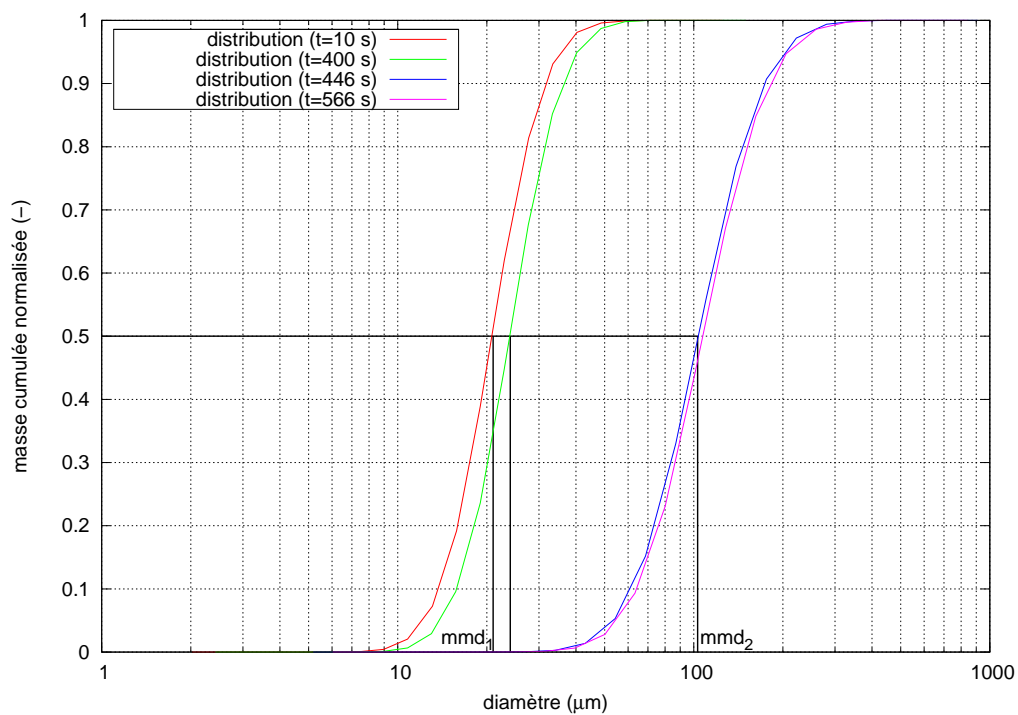


FIGURE 82 – Distribution granulométrique des gouttes générées au niveau de la brèche pour différents temps

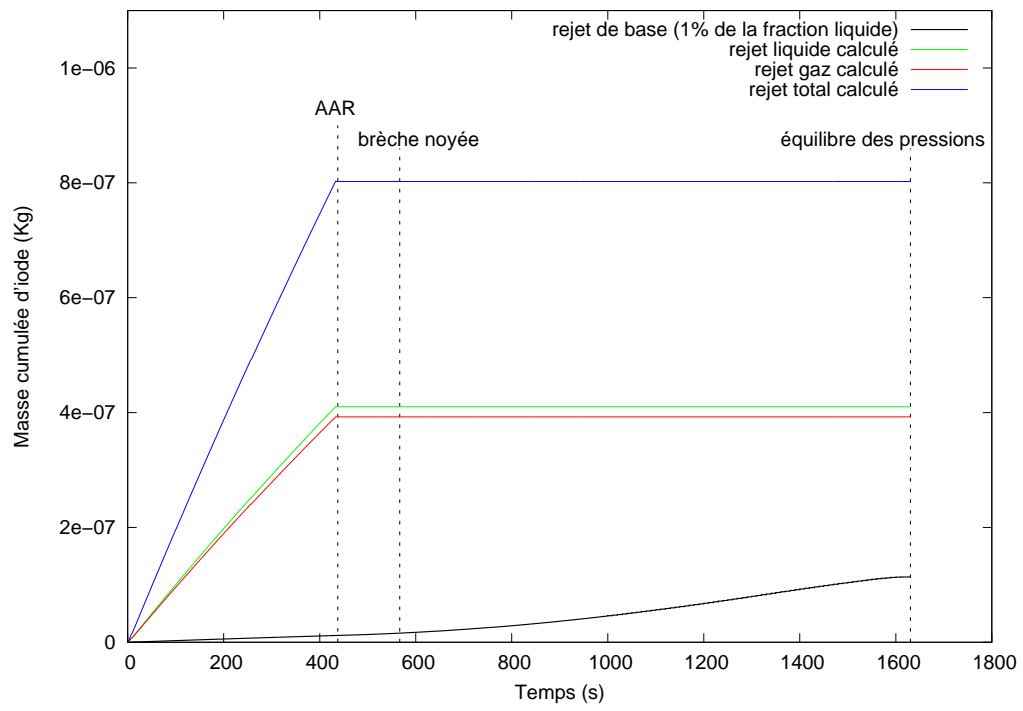


FIGURE 83 – Evolution du rejet en iode (transfert primaire)

2.3.2 Séquence accidentelle : vanne GCTC disponible

La principale différence avec le scénario précédent apparaît dans le laps de temps consécutif à l'isolement de la turbine. En effet, on constate sur la figure 84 que l'augmentation de la pression du secondaire est bien moindre que dans le cas précédent : on n'atteint pas la pression de tarage de la vanne GCTA. La vapeur est redirigée via la vanne GCTC au condenseur. Dans le même temps, la pression du primaire chute plus vite (pour les mêmes raisons). Finalement (figure 85), le degré de surchauffe à la fin de cette phase est pratiquement identique au cas précédent.

Pour le reste, on constate sur les figures 86 et 87 que le transitoire thermohydraulique est pratiquement identique. Notons que la chute de vitesse avant le déclenchement de l'IS est plus importante, ce qui induit une légère augmentation du diamètre médian en masse des gouttes produites.

Sur la figure 88, on constate que la granulométrie des gouttes change brutalement quand le taux de flashing tombe à zéro. On voit qu'en quelques secondes, la distribution passe d'une distribution de gouttes fragmentées thermiquement à une distribution de gouttes qui ne résulte que de la fragmentation mécanique. Ceci est également le cas pour la première séquence.

La figure 89 montre que les rejets cumulés sont identiques à ceux obtenus pour le transitoire précédent. Ceci est lié au fait que le degré de surchauffe calculé par CESAR au moment de l'arrêt automatique du réacteur est pratiquement identique.

Sur la figure 90, on compare le taux de flashing thermodynamique calculé par DROPLET (avec germes) à celui calculé par CESAR, qui est en fait identique au taux de flashing calculé par DROPLET sans les germes (voir exemples de calculs et validation).

Le rejet liquide est le même dans les deux cas. La différence est uniquement liée au rejet gazeux supplémentaire entre l'arrêt automatique du réacteur et l'immersion de la brèche. Ce rejet gazeux supplémentaire induit un effet marginal du pic d'iode. En fait, dans le cas avec germes, la quantité de vapeur qui n'a pas flashé est transportée par les gouttelettes contenant les germes (dans ce cas, le taux de vide n'a pas atteint le seuil de rupture). En réalité, de telles gouttes ont des diamètres aérodynamiques beaucoup plus faibles, et sont davantage susceptibles de franchir l'étage cyclone-sécheur. D'autre part, il est possible que ces gouttes éclatent pendant le franchissement du cyclone. On pourrait, finalement, retrouver un résultat global très similaire (vapeur provenant des germes).

Sur la figure 91, on montre le résultat obtenu en prenant en compte le taux de flashing donné par CESAR (ou DROPLET sans les germes) comparé à celui obtenu par DROPLET. Ces courbes montrent une influence marginale du pic d'iode. Ceci tient du fait que, pour cette séquence, le pic d'iode débute au moment de l'arrêt automatique du réacteur. Or les calculs montrent que, très rapidement après l'AAR, le taux de flashing thermodynamique tombe à zéro, et dans le même temps la fragmentation est réduite à la fragmentation mécanique, qui produit des gouttes qui ne passent pas l'étage cyclone-sécheur. Par conséquent, le pic d'iode n'a d'effet sur le transfert primaire que pendant un laps de temps très court.

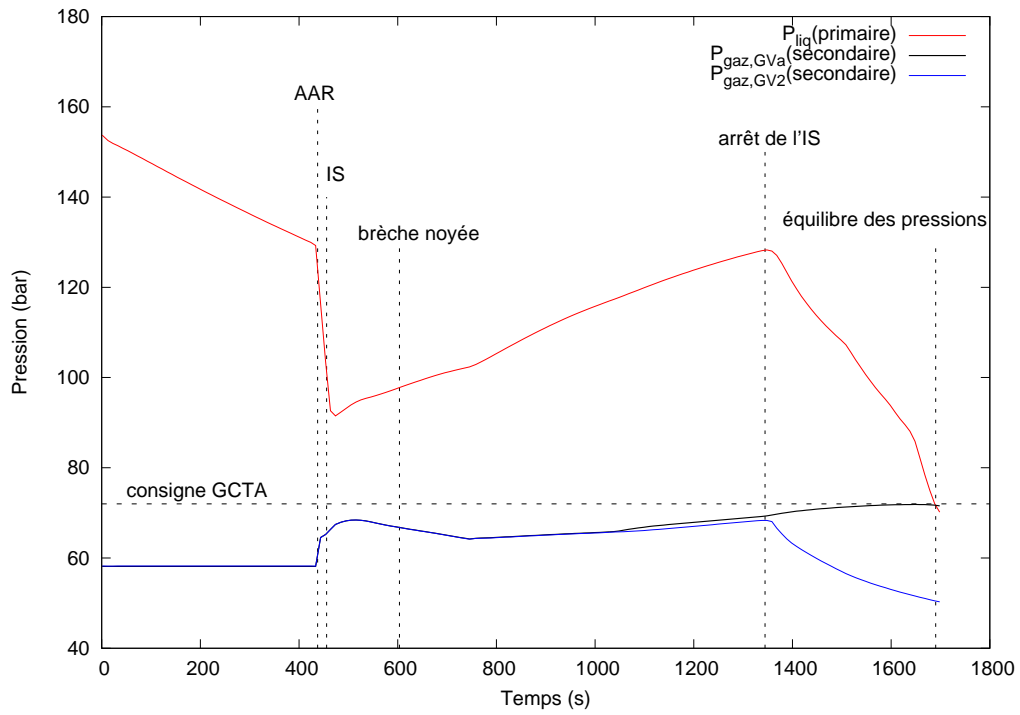


FIGURE 84 – Evolution de la pression du primaire et du secondaire

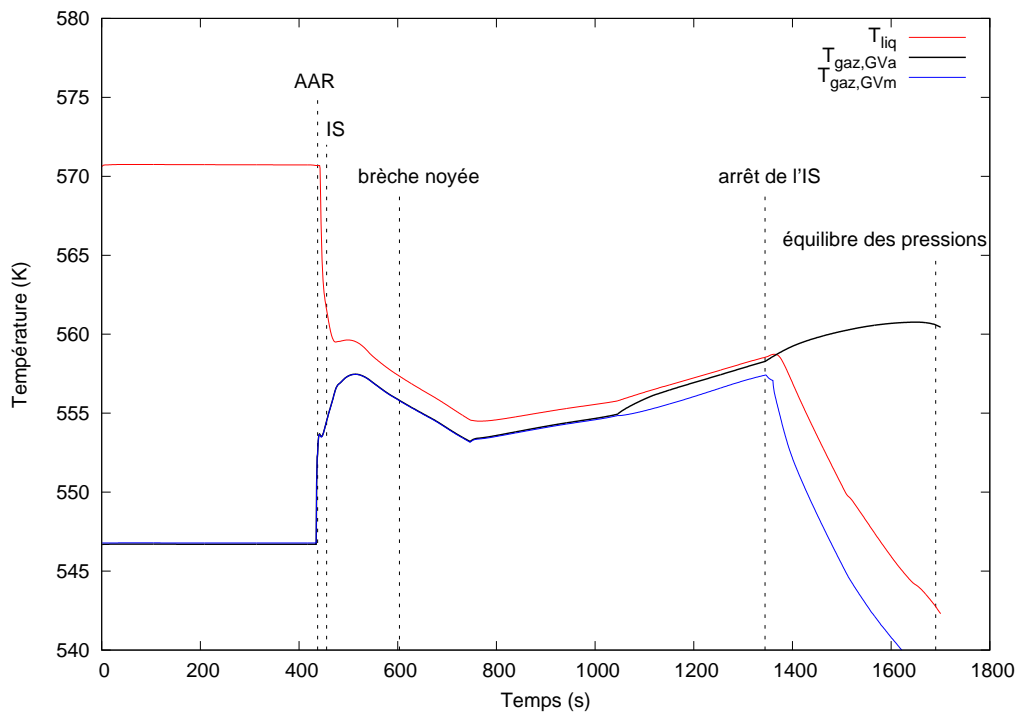


FIGURE 85 – Evolution de la température du primaire et du secondaire

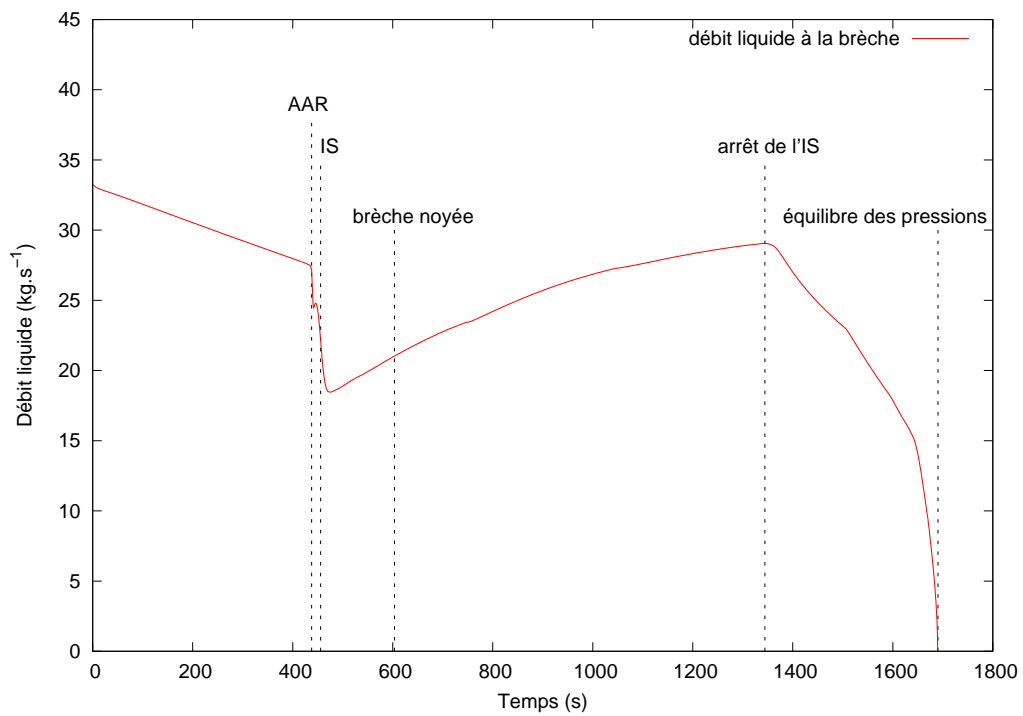


FIGURE 86 – Evolution du débit liquide au niveau de la brèche

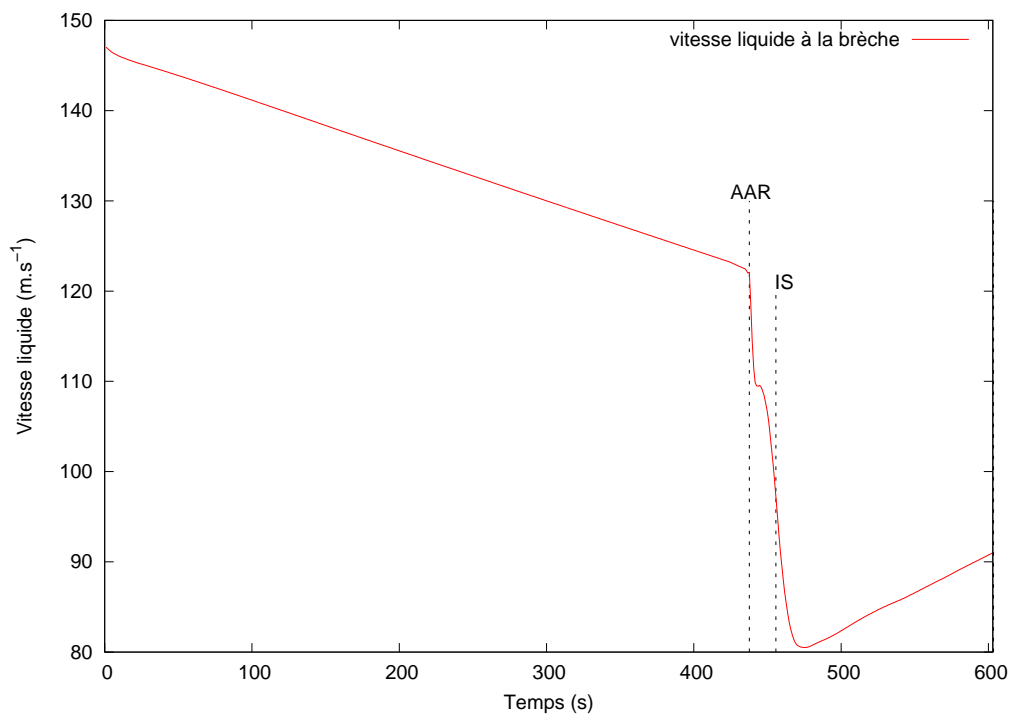


FIGURE 87 – Evolution de la vitesse liquide au niveau de la brèche

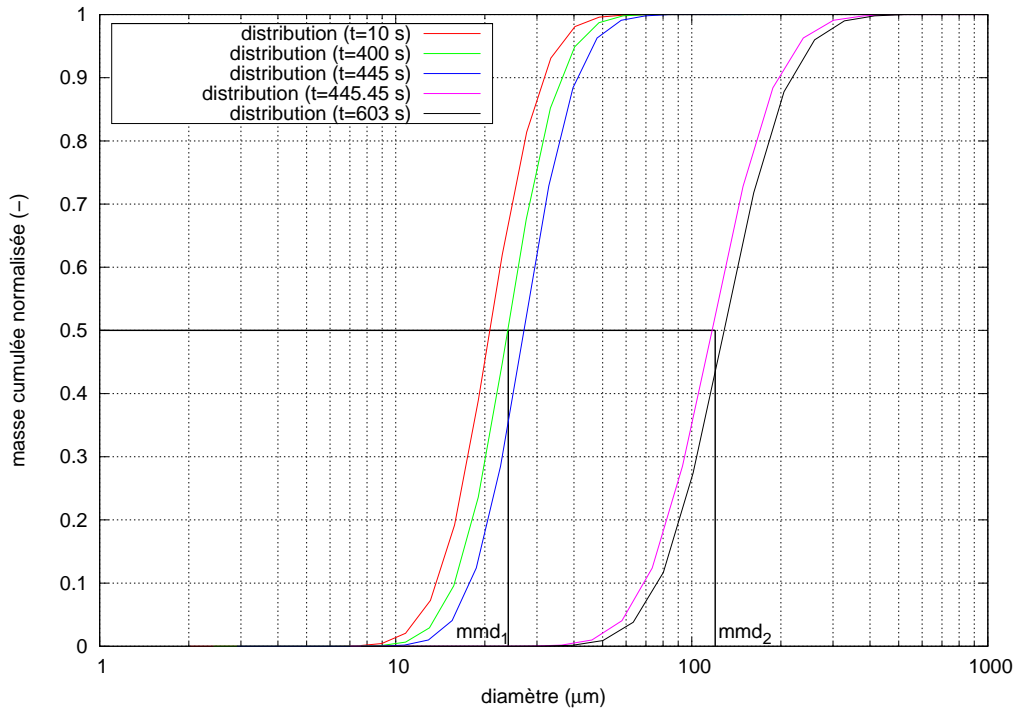


FIGURE 88 – Evolution de la distribution granulométrique des gouttes générées au niveau de la brèche

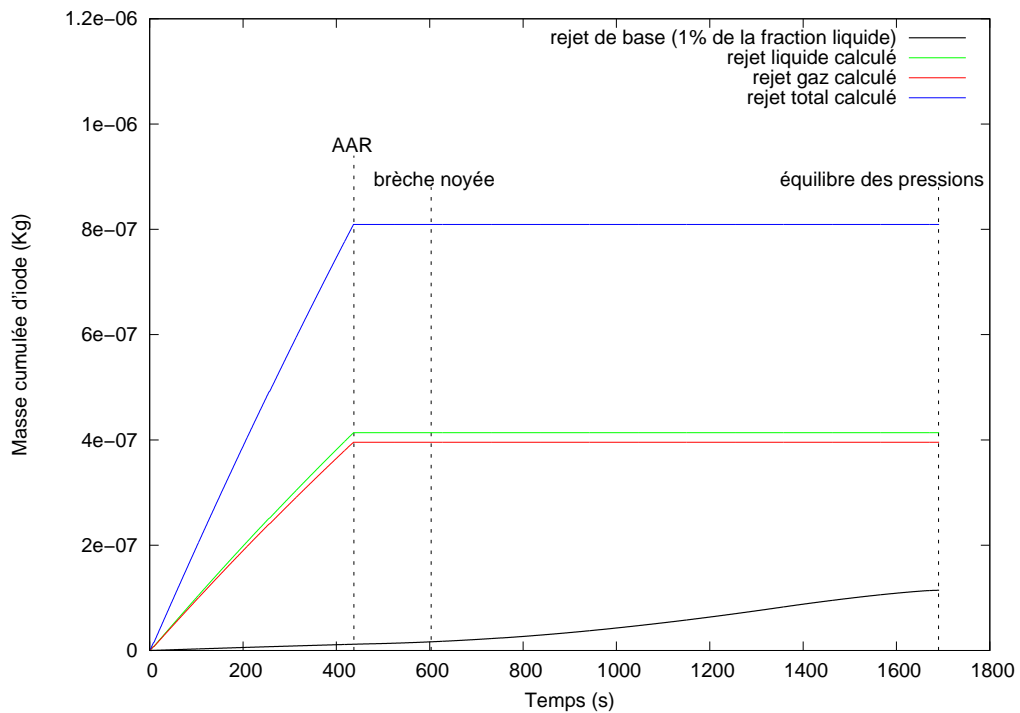


FIGURE 89 – Evolution de la masse d'iode rejetée au niveau de la brèche (transfert primaire)

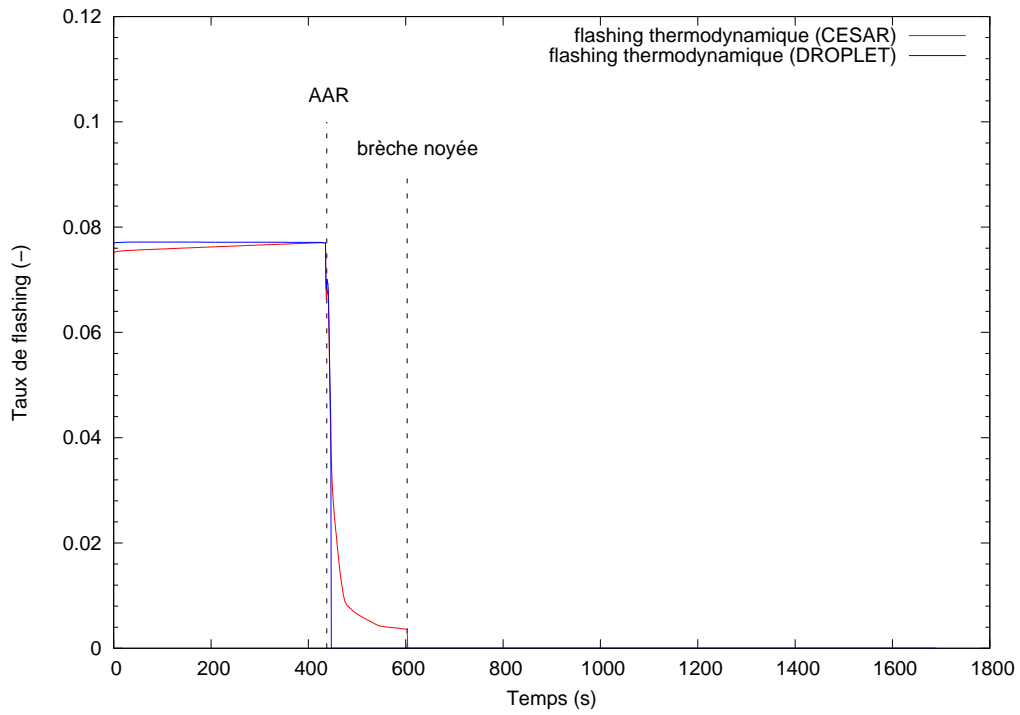


FIGURE 90 – Evolution du taux de flashing CESAR et DROPLET

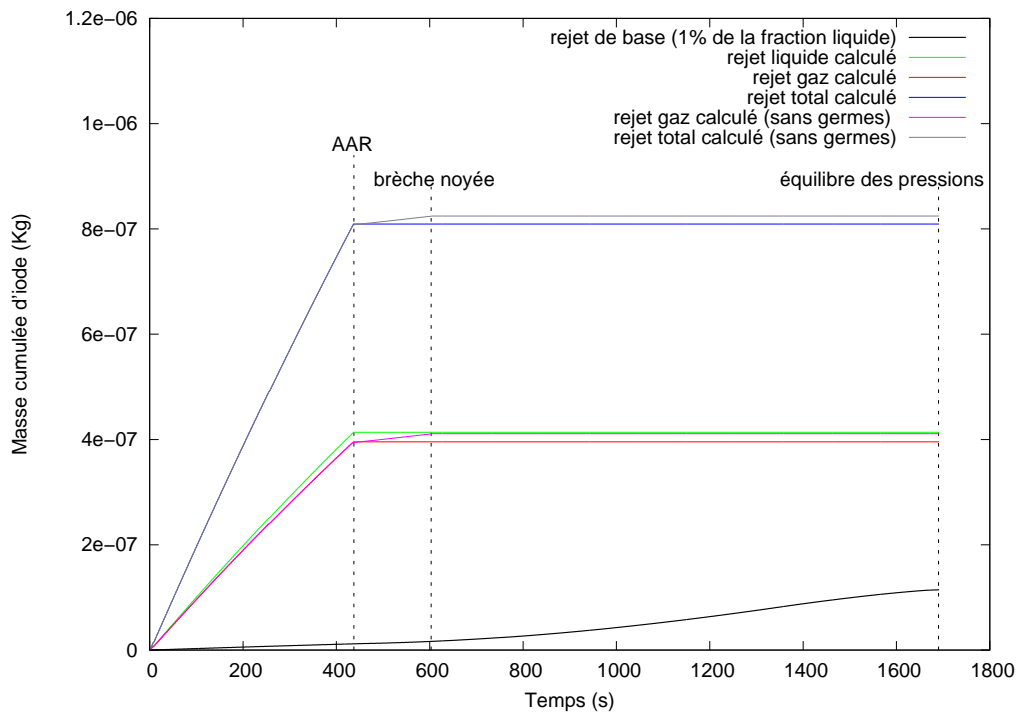


FIGURE 91 – Evolution du rejet en iode (transfert primaire) en prenant en compte le taux de flashing CESAR (ou DROPLET sans germes)

2.4 Synthèse

Les résultats sont très dépendants des conditions thermohydrauliques de la séquence. En particulier, le comportement prédit par CESAR pour la partie du transitoire qui se situe entre l'isolement de la turbine (sur signal AAR consécutif au critère basse pression pressuriseur) et l'immersion de la brèche est primordial pour l'évaluation du taux de flashing et de la granulométrie des gouttes. Les calculs de spéciation, pour lesquels les paramètres importants sont la concentration en iode en régime permanent, le débit de dose et la présence d'impuretés, montrent que l'espèce volatile majoritaire est l'acide hypoïodeux HOI.

On constate que, pour les conditions thermohydrauliques de cette séquence, le pic d'iode a un effet marginal sur le transfert primaire, pour les raisons expliquées plus haut. En revanche, il peut avoir un impact important sur la chimie de l'iode dans les volumes liquides du secondaire (bouchon d'eau, condenseur,...) et par conséquent sur le transfert secondaire. Pour ce qui concerne le transfert primaire, on note des différences mineures entre les deux séquences. Ces calculs montrent que, pour la séquence vanne GCTC fermée, étant donné que la moitié du transfert primaire est sous forme gazeuse, on peut avoir plus facilement un rejet à l'environnement via la vanne GCTA du GV accidenté.

La masse d'iode qui est transférée à la tuyauterie vapeur est égale à $8,0 \cdot 10^{-7}$ kg soit 50% de l'iode transféré au secondaire GV jusqu'à l'immersion de la brèche ou 4,6% de l'inventaire en iode du circuit primaire en régime permanent. La moitié de cette quantité, qui est sous forme gazeuse, est relâchée à l'environnement par la vanne GCTA. Afin de quantifier le rejet sous forme liquide au niveau de cette vanne, il serait nécessaire d'effectuer un calcul de transport des gouttelettes. Il convient d'insister sur le fait que le relâchement à partir des deux autres GV contaminés (vanne GCTC disponible) ne rentre pas dans le cadre de ce travail.

On constate que le transfert primaire calculé est supérieur à l'hypothèse rejet de base [101]. Il faut cependant noter que cette application particulière ne rend pas compte de l'effet du pic d'iode (transfert secondaire).

Conclusion et perspectives

Le rejet primaire des espèces iodées volatiles lors d'une séquence RTGV de dimensionnement dépend de plusieurs facteurs. Le premier est la quantité d'eau qui fuit du circuit primaire avant l'équilibrage des pressions. Le second est le niveau de la contamination en iode du circuit primaire et la spéciation de l'iode. Le troisième est le taux de séparation liquide-vapeur (taux de flashing thermodynamique) en champ proche ainsi que la granulométrie des gouttes produites. Le quatrième facteur est le coefficient de partage des différentes espèces iodées volatiles.

L'évaluation du rejet ne porte pas uniquement sur la masse (ou activité) rejetée. Il est important de connaître la forme chimique et éventuellement la forme physique (liquide, vapeur).

Une connaissance précise du déroulement d'une séquence est donc indispensable. Cette connaissance s'appuie sur l'analyse des scénarii accidentels, incluant les défaillances de composants et les éventuelles interventions de l'opérateur, et sur des calculs de thermohydraulique.

Il est facile de montrer que, si les coefficients de partage des espèces iodées volatiles sont connus, le taux de flashing de l'iode est alors directement lié au taux de flashing thermodynamique. On emploie ce terme pour signifier le taux de séparation liquide-vapeur de l'eau (bien que son emploi soit par nature réducteur puisque le partage liquide-vapeur de l'iode est lui aussi un équilibre thermodynamique). Dans le texte, on a utilisé simplement le terme " taux de flashing ", comme le font les thermohydrauliciens. D'autre part, il est important de connaître la granulométrie de la fraction liquide à l'issue du flashing, de façon à pouvoir évaluer quelle part de celle-ci est susceptible d'être piégée dans les structures du GV, transportée dans le secondaire, ou sédimentée dans le bouchon d'eau.

L'évaluation du taux de flashing est donc une partie essentielle de ce travail. Dans ce domaine, on dispose de résultats expérimentaux auxquels le modèle peut être confronté. Ces résultats contiennent essentiellement une information sur la granulométrie des gouttes produites. Peu de résultats donnent directement le taux de flashing. Les tests expérimentaux couvrent un domaine de conditions aux limites suffisamment larges en terme de débit à la brèche, différence de pression et différence de température primaire-secondaire, pour qu'une validation réussie donne une confiance raisonnable dans l'utilisation de ce modèle pour des calculs de séquence. En particulier, presque tous les tests NRC ont été réalisés pour des conditions qui sont typiquement celles d'une séquence RTGV.

Un module a été développé pour être couplé au code d'accident modulaire ASTEC. Dans cet esprit, il ne pouvait s'agir que d'un modèle relativement simple (en ce sens qu'il était hors de question de faire appel à l'arsenal de la CFD), mais qui repose sur les lois élémentaires de la thermodynamique. On a fait le choix de séparer le mécanisme de fragmentation mécanique des gouttes dans une zone proche de la brèche, qui produit une distribution en classes de tailles, fournie par une corrélation empirique, et le mécanisme de fragmentation thermique qui se produit ultérieurement. Au vu de la confrontation avec les résultats expérimentaux, ce choix s'avère justifié.

Un traitement des transferts de chaleur et de masse goutte-atmosphère permet de décrire de façon continue les situations de flashing pur et les situations de mélange vapeur-incondensables au secondaire. Les coefficients de transfert sont calculés en faisant une moyenne sur le temps de transit d'une goutte, à l'aide d'un modèle simple de jet. Nous avons montré que la dépressurisation initiale des gouttes conduit le plus souvent à la formation d'un très grand nombre de germes de vapeur de très petite taille (10 nm). Une équation différentielle originale pour décrire la croissance des germes, qui est une extension du modèle MRG, a été développée. De même, une description théorique originale de la micro-explosion des gouttes a été développée,

qui aboutit à une distribution en taille des fragments. Cette description prédit une évolution continue et cohérente quand on passe de situations avec une faible surchauffe et une production de gros fragments à une situation avec une forte surchauffe et une forte fragmentation ce qui, comparé à ce qui existe dans la littérature, est un gros progrès.

Il serait intéressant par la suite de comparer ce type d'approche très simplifiée avec une approche plus mécaniste (qui n'a jusqu'à présent jamais été réalisée et n'est peut-être pas réalisable avec les moyens actuels). En premier lieu, il conviendrait de développer une approche plus mécaniste du seuil de rupture. La seule tentative d'approche mécaniste du seuil de rupture est celle de Zeng : il considère que le seuil est atteint quand l'amplitude du mode instable qui a le taux de croissance le plus rapide est égale à cinq fois l'épaisseur du film liquide qui entoure la bulle de vapeur. Cependant, d'une part, ce critère n'est pas adapté à la situation réelle que nous rencontrons, à savoir de petites gouttes contenant un très grand nombre de germes nanométriques, d'autre part la taille des fragments prédite par ce modèle n'est pas compatible avec la granulométrie mesurée.

En dépit de sa simplicité, le modèle qui a été développé ici donne un accord très encourageant avec les granulométries mesurées pour une large gamme de conditions (NRC, INERIS). Dans la littérature, on trouve des modèles qui passent de façon discontinue de l'absence de fragmentation pour de faibles degrés de surchauffe à des fragments trop petits pour de forts degrés de surchauffe (Witlox et al. [43]). Ce n'est pas le cas du présent modèle.

Un résultat remarquable, et quelque peu surprenant, est que, même pour de très fortes différences de pression primaire-secondaire, le degré de surchauffe obtenu en fin de détente adiabatique (état métastable) est très proche de la différence de température primaire-secondaire.

Dans une séquence RTGV, on considère que la phase gaz du secondaire GV est constituée de vapeur pure. Cette hypothèse étant justifiée par le fait que, au cours d'un cycle, les gaz incondensables sont très rapidement soutirés au condenseur. Cette condition aux limites justifie l'utilisation du modèle de flashing pur qui conduit au taux de flashing isenthalpique. Il faut comprendre que ces conditions aux limites sont propres aux séquences RTGV. D'autre part, pour l'interprétation des essais, elles sont inapplicables.

En ce qui concerne le taux de flashing, la seule donnée expérimentale est celle du rapport NRC [2] qui date des années 1980. La mesure directe du taux de flashing est une expérience complexe. Une tentative de quantification du flashing à l'aide d'un traceur n'a pas donné de résultat concluant, à cause de la complexité de l'installation. Une mesure indirecte, via la variation de pression dans le bidon secondaire a permis d'étudier le taux de flashing initial (dans les premiers instants). Seuls cinq essais ont été réalisés. Il n'a pas été possible de réaliser ces tests en vapeur pure (conditions très compliquées à obtenir en dehors du cas du circuit secondaire d'un réacteur).

On observe que le taux de flashing prédit par le modèle est comparable à la valeur expérimentale, et supérieur au taux de flashing isenthalpique. La valeur expérimentale, même pour les tests avec faible surchauffe, est toujours supérieure au taux de flashing isenthalpique, mais ceci est sans doute lié aux conditions du réservoir secondaire qui ne sont pas compatibles avec cette hypothèse (faible fraction de vapeur).

La masse d'iode contenue dans le circuit primaire a été obtenue en utilisant l'activité déduite des spectres EDF, la proportion des isotopes stables déduite de données neutroniques (DARWIN) et en tenant compte du circuit de filtration (RCV). On obtient une concentration en iode très faible (typiquement, $5.0 \cdot 10^{-10} \text{ mol.l}^{-1}$). Il s'agit donc de chimie de traces sous rayonnement et à haute température. Dans ces conditions, la présence d'impuretés joue un rôle déterminant. Dans ce travail, les principales impuretés sont le Fer et le Cuivre à l'état de traces. Le débit

de dose est également calculé à partir des spectres EDF. L'énergie déposée par le rayonnement induit un très grand nombre de réactions liées à la radiolyse de l'eau et un très grand nombre de réactions de déplacement d'équilibre entre espèces iodées liées à la radiolyse de l'iode. Les principales réactions ont été prises en compte pour le calcul de la spéciation de l'iode dans la circuit primaire. On a, d'une part, la spéciation en régime permanent, avant le déclenchement du transitoire et d'autre part, l'évolution de la spéciation due au pic d'iode. Pour les calculs de séquence, le pic d'iode a été pris en compte simplement par une loi exponentielle caractérisée par une amplitude et une constante de temps compatibles avec les mesures effectuées dans le circuit primaire de réacteurs en fonctionnement, suite à des transitoires de puissance. Ces calculs aboutissent à la conclusion très importante pour l'analyse des séquences accidentelles que des espèces volatiles sont présentes en proportion significative, notamment l'acide hypoïdeux HOI. De plus, ces calculs mettent en évidence la présence, sous forme de traces, d'iode atomique I, de IO et IO₃. La détermination du coefficient de partage des espèces volatiles majoritaires identifiées par ces calculs a été obtenue par un modèle de dynamique moléculaire (SPyDERS).

Un exemple d'application à un transitoire accidentel de type RTGV a été réalisé pour une séquence avec une brèche non immergée en début de transitoire (cas le plus pénalisant) et pour deux configurations réalistes : vanne GCTC indisponible et disponible. Le taux de transfert primaire calculé est légèrement supérieur à celui donné par l'hypothèse rejet de base (notons que cette hypothèse ne fait pas de distinction entre transfert primaire et transfert secondaire). Les leçons que l'on tire de cette analyse mettent en évidence d'une part, la nécessité incontournable de disposer d'une description fine de la thermohydraulique, surtout en ce qui concerne le circuit secondaire, d'autre part, de disposer d'une modélisation fine de tous les mécanismes de transfert. En règle générale, l'étude de ces scénarii repose sur des valeurs enveloppes provenant de compilations de données expérimentales ponctuelles, sans véritable lien théorique entre elles. Ceci montre la nécessité, toujours actuelle, de conforter les calculs de sûreté par un effort de modélisation dans lequel ce travail s'inscrit.

Parmis les améliorations envisageables, on peut citer :

- Une étude plus mécaniste des micro-explosions, notamment en ce qui concerne le seuil de rupture ;
- Une étude plus approfondie de la rétention des gouttelettes dans le système cyclone-séparateur-sécheur ;
- Une amélioration de la thermohydraulique du secondaire permettant de quantifier le transfert secondaire ;
- Améliorer les connaissances sur la chimie de l'iode sous rayonnement à l'état de traces et à haute température dans le circuit primaire ;
- Améliorer les connaissances sur la chimie de l'iode dans le circuit secondaire (principalement les transferts) ;
- Mesurer le coefficient de partage de l'acide hypoïdeux dans les conditions thermodynamiques du circuit primaire (expérience très difficilement réalisable).

Actuellement, un projet OCDE, THAI II, est en cours de réalisation. Ce projet a pour objectif de mesurer le relâchement de l'iode moléculaire en condition de flashing, en particulier dans les conditions typiques d'un accident de RTGV (conditions très proches de la séquence étudiée dans ce travail). Des mesures de granulométries et de taux de flashing en champ proche sont également prévues.

Quatrième partie

Annexes

Sommaire

A	Distributions granulométriques	201
A.1	Définition d'une distribution	201
A.2	Caractérisation d'une distribution	202
A.3	Distribution de Rosin-Rammler	206
B	Modélisation d'un jet diphasique et relaxation cinétique des gouttes	208
B.1	Le modèle d'Epstein	208
B.2	Prise en compte du glissement	210
B.3	Solution simplifiée : fonction d'essai	211
C	Equation de Rayleigh	215
D	Coefficients de transfert en régime transitoire	217
D.1	Conduction à travers une plaque plane	217
D.2	Conduction dans une sphère liquide	218
D.3	Conduction dans une sphère liquide avec modification du gradient	219
D.4	Coefficients de transfert thermique en phase liquide : nombre de Nusselt . . .	221
D.4.1	Cas de la goutte au repos (sphère rigide) : solution de Carslaw et Jaeger	222
D.4.2	Cas de la goutte en mouvement dans la limite des grands nombres de Péclet : la solution de Kronig et Brink	223
E	La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan	225
E.1	Transferts de chaleur et de masse (nombres de Nusselt et de Sherwood) . . .	225
E.2	L'analogie de Reynolds	225
E.3	La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan dans le cas monodimensionnel	227
E.4	La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan dans le cas bidimensionnel .	228

A Distributions granulométriques

A.1 Définition d'une distribution

Un spray est généralement composé d'un ensemble de gouttes de taille et de vitesse différentes. Il est donc impossible de suivre l'évolution de chacune des gouttes composant le jet. La caractérisation d'un tel système requiert l'utilisation d'outils statistiques. Une population de gouttes peut se décrire comme étant le nombre de particules dn par unité de volume dont le rayon est compris entre r et $r + dr$ rapporté au nombre total de particules par unité de volume composant cette distribution n . Cette définition (d'une distribution numérique) se traduit en langage mathématique par la relation :

$$\frac{dn}{n} = f(r)dr, \quad (1)$$

où $f(r)$ représente une fonction de densité de probabilité. Cette fonction est par définition continue et positive sur son intervalle d'étude et la condition de normalisation s'exprime par :

$$\int f(r)dr = 1 \quad (2)$$

Il existe différentes fonctions de densité de probabilité. Cependant, pour caractériser une population de gouttes, il est courant d'utiliser une distribution dite log-normale. Elle provient directement de la distribution normale ou gaussienne donnée par la relation :

$$f(r)dr = Ae^{-\frac{(r-r_g)^2}{2\sigma^2}} dr \quad (3)$$

Le coefficient A se détermine en effectuant le changement de variable $u = r - r_g$ et en utilisant la condition de normalisation citée précédemment :

$$A \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{u^2}{2\sigma^2}} du = A\sqrt{2\pi}\sigma = 1 \quad (4)$$

Au final, la fonction de densité de probabilité associée à une distribution normale s'exprime par :

$$f(r) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(r-r_g)^2}{2\sigma^2}} \quad (5)$$

Distribution log-normale

En remplaçant la variable r ainsi que les deux paramètres caractérisant la loi normale, c'est-à-dire, r_g et σ , par leurs logarithmes népériens ($r \Rightarrow \ln(r)$ et donc $d(\ln(r)) = \frac{dr}{r}$, $r_g \Rightarrow \ln(r_g)$ et $\sigma \Rightarrow \ln(\sigma)$), nous obtenons l'expression de la fonction de densité de probabilité d'une distribution log-normale :

$$f(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\ln(\sigma)r} e^{-\frac{(\ln(r)-\ln(r_g))^2}{2\ln^2\sigma}} \quad (6)$$

Il est également possible, à partir de cette fonction de densité, de définir une fonction cumulée numérique associée, notée $F(r)$, comprise entre 0 et 1, et définie par la relation :

$$F(r) = \int_0^r f(r)dr \quad (7)$$

Cette représentation permet très facilement, de visualiser le nombre ou le pourcentage de diamètres inférieurs à un diamètre donné. Le graphique suivant donne l'évolution de ces deux fonctions ($r_g = 10 \mu m$ et $\sigma = 1,5$) :

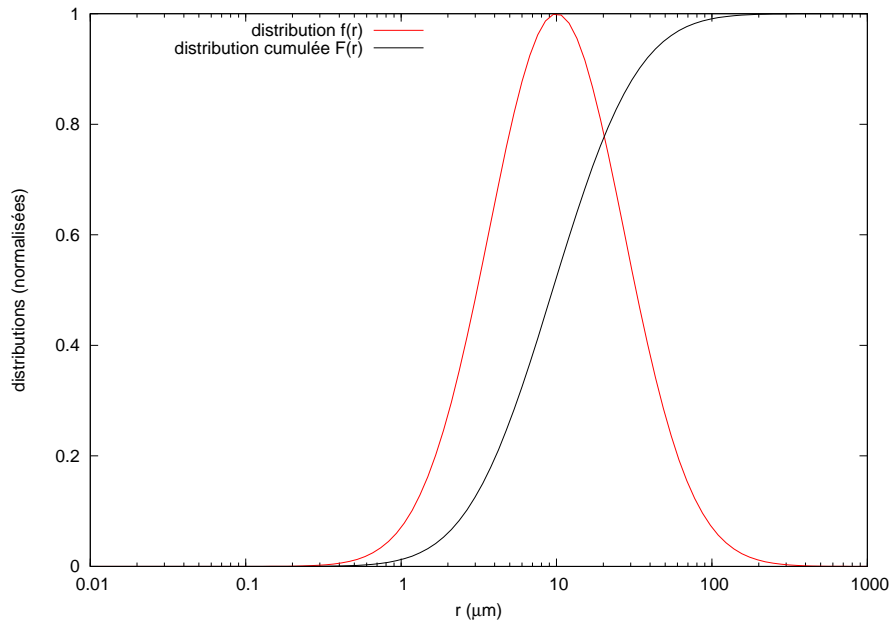


FIGURE 92 – Représentations graphiques d'une distribution log-normale

A.2 Caractérisation d'une distribution

Il existe différents indicateurs de position. Le premier correspond au pic de la distribution, r_{mode} . Ce rayon est centré sur la classe de taille présentant l'effectif maximal. On nomme ainsi une distribution avec un pic, une distribution unimodale, deux pics, une distribution bimodale,.... Il se détermine par la relation :

$$\left(\frac{df(r)}{dr} \right)_{r=r_{mode}} = 0 \quad (8)$$

Pour une distribution log-normale, en posant $u = \frac{r}{r_g}$, nous obtenons que :

$$\frac{df}{du} \alpha - \frac{1}{u^2} - \frac{1}{u^2} \frac{\ln(u)}{\ln^2(\sigma)}$$

Et donc, nous arrivons à l'expression suivante :

$$\boxed{r_{mode} = r_g e^{-\ln^2 \sigma}} \quad (9)$$

Il existe une multitude d'autres rayons caractéristiques, tous regroupés dans une relation générale qui est :

$$r_{ij} = \left(\frac{\int_0^\infty r^i f(r) d(r)}{\int_0^\infty r^j f(r) d(r)} \right)^{\frac{1}{i-j}} \quad (10)$$

La somme $(i + j)$ s'appelle l'ordre du rayon moyen. Si $i = 1$ et $j = 0$, alors le diamètre moyen vaut 1, il s'agit du rayon arithmétique ou numérique et son expression est :

$$r_{10} = \frac{\int_0^\infty r f(r) d(r)}{\int_0^\infty f(r) d(r)} \quad (11)$$

Déterminons à présent son expression. En effectuant le changement de variable suivant $u = \ln(r) - \ln(r_g)$, et donc $r = r_g e^u$, nous pouvons écrire :

$$r_{10} = r_g \cdot \frac{\int_0^\infty e^{-\frac{u^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot e^u \cdot du}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot du} = r_g \cdot \frac{\int_0^\infty e^{-\frac{(u^2 - 2u\ln^2(\sigma))}{2\ln^2(\sigma)}} du}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} du}$$

En posant $t = u - \ln^2(\sigma)$, la relation précédente peut s'écrire :

$$r_{10} = r_g \cdot \frac{\int_0^\infty e^{-\frac{t^2}{2\ln^2(\sigma)}} e^{\frac{\ln^2(\sigma)}{2}} dt}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} du} \quad (12)$$

Et donc :

$$\boxed{r_{10} = r_g \cdot e^{\frac{\ln^2(\sigma)}{2}}} \quad (13)$$

De la même manière, il nous est possible à l'aide de la formule générale, de déterminer le rayon surfacique :

$$r_{20} = \left(\frac{\int_0^\infty r^2 \cdot f(r) dr}{\int_0^\infty f(r) dr} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (14)$$

Nous arrivons à l'expression suivante (il apparaît au numérateur e^{2u}) :

$$r_{20} = r_g \cdot \left(\frac{\int_0^\infty e^{-\frac{u^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot e^{2u} \cdot du}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} du} \right)^{\frac{1}{2}} = r_g \cdot \left(\frac{\int_0^\infty e^{-\frac{(u^2 - 4u\ln^2(\sigma))}{2\ln^2(\sigma)}} du}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} du} \right)^{\frac{1}{2}}$$

En effectuant cette fois le changement de variable $t = u - 2\ln(\sigma)$, nous pouvons écrire :

$$r_{20} = r_g \cdot \left(\frac{\int_0^\infty e^{-\frac{t^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot e^{2\ln^2(\sigma)} dt}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} du} \right)^{\frac{1}{2}}$$

Et au final, nous arrivons à l'expression :

$$\boxed{r_{20} = r_g \cdot e^{\ln^2(\sigma)}} \quad (15)$$

Dans le calcul du rayon moyen volumique, il apparaît au numérateur e^{3u} . Le changement de variable devient alors $t = u - 3\ln^2\sigma$, et donc :

$$r_{30} = r_g \cdot \left(\frac{\int_0^\infty e^{-\frac{t^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot e^{\frac{9}{2}\ln^2(\sigma)} dt}{\int_0^\infty e^{-\frac{(u)^2}{2\ln^2(\sigma)}} du} \right)^{\frac{1}{3}}$$

Nous arrivons à l'expression :

$$\boxed{r_{30} = r_g \cdot e^{\frac{3}{2}\ln^2(\sigma)}} \quad (16)$$

L'expression de ces deux rayons va nous permettre de définir un rayon très utilisé pour caractériser la granulométrie des jets diphasiques. Il s'agit du rayon moyen de Sauter r_{32} . Il caractérise le rapport entre la masse M transportée par une distribution (inertie) et la surface développée S par cette même distribution (échanges). Pour une particule isolée, on peut écrire (ρ est la densité de matière) :

$$\frac{M}{S} = \frac{\rho\pi d^3}{6} \cdot \frac{1}{\pi d^2} = \frac{\rho d}{6}$$

Il en est de même pour une distribution :

$$\frac{M}{S} = \frac{\rho d_{32}}{6} \quad (17)$$

En réutilisant les rayons moyens surfacique et volumique, nous pouvons déterminer l'expression du rayon moyen de Sauter :

$$r_{32} = \frac{\int_0^\infty r^3 \cdot f(r) d(r)}{\int_0^\infty r^2 f(r) d(r)} = \frac{r_g^3 \cdot e^{\frac{9}{2}\ln^2(\sigma)}}{r_g^2 \cdot e^{2\ln^2(\sigma)}} \quad (18)$$

Et nous obtenons au final :

$$\boxed{r_{32} = r_g \cdot e^{\frac{5}{2}\ln^2\sigma}} \quad (19)$$

Enfin, il est possible de définir le rayon médian en masse (r_{50} où *rmm*). Le r_{50} est le rayon tel que la moitié de la masse totale portée par la distribution (par unité de volume) est portée par les particules ayant un rayon inférieur ou égal à r_{50} . On peut donc écrire la relation suivante :

$$\int_0^{r_{50}} r^3 f(r) dr = \frac{1}{2} \int_0^\infty r^3 f(r) dr \quad (20)$$

ce qui se traduit en variable u par :

$$r_g^3 \int_{-\infty}^{\ln(r_{50}) - \ln(r_g)} e^{-\frac{u^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot e^{3u} du = \frac{1}{2} r_g^3 \int_{-\infty}^\infty e^{-\frac{u^2}{2\ln^2(\sigma)}} \cdot e^{3u} du$$

En effectuant le même changement de variable que pour le rayon moyen volumique ($t = u - 3\ln^2(\sigma)$), on obtient :

$$r_g^3 e^{\frac{9}{2}\ln^2(\sigma)} \int_{-\infty}^{\ln(\frac{r_{50}}{r_g}) - 3\ln^2(\sigma)} e^{-\frac{t^2}{2\ln^2(\sigma)}} dt = \frac{1}{2} r_g^3 e^{\frac{9}{2}\ln^2(\sigma)} \int_{-\infty}^\infty e^{-\frac{t^2}{2\ln^2(\sigma)}} dt$$

On en déduit donc que :

$$\ln\left(\frac{r_{50}}{r_g}\right) - 3\ln^2(\sigma) = 0$$

On obtient finalement :

$$\boxed{r_{50} = r_g \cdot e^{3\ln^2\sigma}} \quad (21)$$

Le graphique suivant indique la position des différents rayons présentés précédemment :

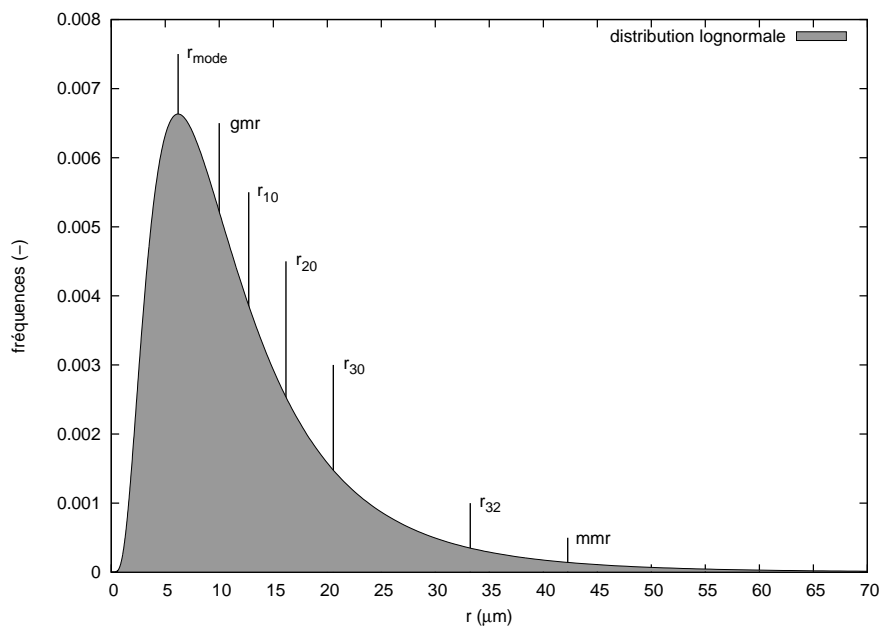


FIGURE 93 – Différents diamètres caractéristiques d'une distribution log-normale

Remarque : **Normalisation d'une distribution log-normale**

Il est souvent utile de normaliser la distribution de façon à ce que la masse totale par unité de volume corresponde à une donnée du calcul issue d'un bilan de masse. m étant la masse totale par unité de volume, on choisit donc la normalisation de sorte que :

$$m = \frac{4\pi}{3} \rho A \int_0^\infty e^{-\frac{\ln^2\left(\frac{r}{r_g}\right)}{2\ln^2(\sigma)}} r^3 \frac{dr}{r} \quad (22)$$

De ce qui précède, on déduit facilement que :

$$m = A \frac{4\pi}{3} \rho r_g^3 e^{\frac{9}{2}\ln^2(\sigma)} \quad (23)$$

A.3 Distribution de Rosin-Rammler

La distribution de Rosin-Rammler a été établie dans le but de caractériser des distributions massiques de poussières de charbon obtenues par tamisage. Elle s'exprime généralement par sa fraction volumique cumulée [104] :

$$F(r) = 1 - \nu(r) = e^{-\left(\frac{r}{\bar{r}}\right)^k} \quad (24)$$

où, $\nu(r)$ représente la fraction volumique occupée par les gouttes de rayon supérieur à r . Les coefficients \bar{r} et k , équivalents respectifs du rayon moyen et de la dispersion pour une distribution log-normale sont des paramètres ajustables et positifs. En pratique, le \bar{r} est égal au diamètre moyen de Sauter r_{32} . L'expression de la fonction de densité de probabilité volumique s'obtient en dérivant l'équation précédente :

$$f(r) = \frac{k r^{k-1}}{\bar{r}^k} e^{-\left(\frac{r}{\bar{r}}\right)^k} \quad (25)$$

Le graphique suivant fait apparaître la distribution cumulée log-normale caractérisée par $r_{10} = \bar{r} = 10 \mu m$ et $\sigma = 1,5$ ainsi que la distribution de Rosin-Rammler. En utilisant la formule permettant de convertir le diamètre géométrique en diamètre de Sauter, nous obtenons pour le premier paramètre de la distribution de Rosin-Rammler $\bar{r} = r_{32} = 15 \mu m$ et nous prenons $k = 1$.

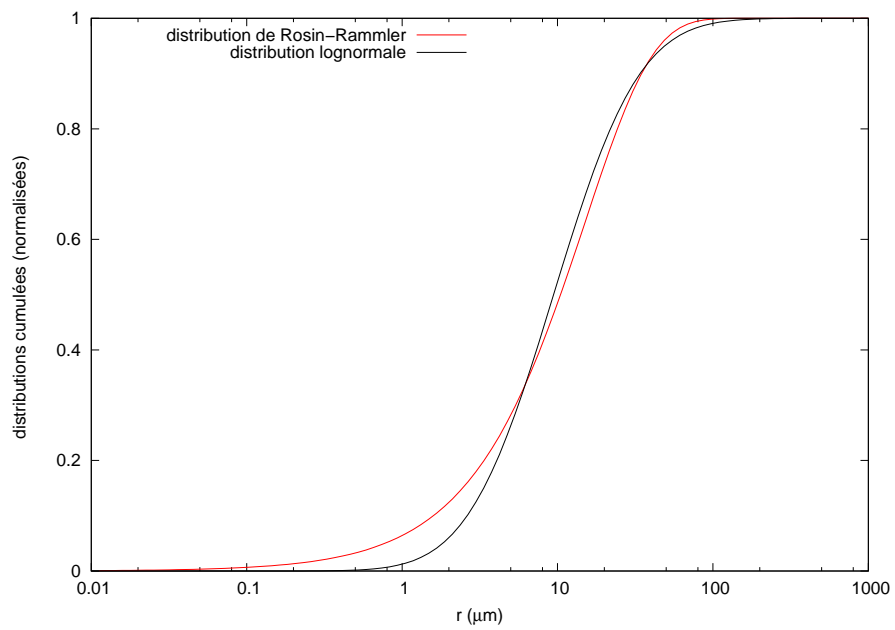


FIGURE 94 – Représentation des distributions cumulées normalisées log-normale et Rosin-Rammler

B Modélisation d'un jet diphasique et relaxation cinétique des gouttes

L'objectif est d'obtenir une évaluation des coefficients de transfert moyens. Il faut donc évaluer une vitesse de dérive en fonction de la localisation axiale dans le jet pour les gouttes dans chaque classe de taille.

B.1 Le modèle d'Epstein

Nous sommes partis de l'idée initiale d'Epstein et nous avons modifié ce modèle pour tenir compte du glissement [105]. Le modèle d'Epstein [53] a été développé pour calculer le facteur de décontamination de particules d'aérosol dans un jet gazeux pénétrant dans un bain liquide (Venturi Scrubber). Ces particules d'aérosol sont produites par la condensation brutale de vapeurs de produits de fission à l'entrée du jet. Après la phase de détente initiale, des gouttes sont arrachées à l'interface liquide-gaz par instabilité mécanique. Du fait de la différence entre la vitesse des gouttes et celle du gaz, les aérosols sont capturés, principalement par impaction. La taille et la vitesse des gouttes générées dépendent de la position axiale à laquelle elles ont été produites. Une équation de bilan de masse fournit également leur concentration numérique. Pour exprimer cette dépendance, il faut une évaluation de la vitesse locale du gaz. Epstein a proposé un modèle qui repose sur des hypothèses simples :

- Un profil de vitesse plat, (en créneau) ;
- Pas de glissement ;
- Loi d'entraînement de Ricou et Spalding ;
- Conservation du flux d'impulsion.

La loi d'entraînement de Ricou et Spalding est largement utilisée dans la modélisation des jets turbulents [54]. Elle exprime le fait que la loi de variation du flux de masse de la phase entraînée est :

$$\frac{d\dot{m}_e}{dz} = 0.282\sqrt{\rho_e M} \quad (1)$$

où \dot{m}_e est le flux de masse de la phase entraînée, ρ_e est la densité de la phase entraînée, M est le flux d'impulsion et 0.282 le coefficient établi par Ricou et Spalding.

L'hypothèse de conservation du flux d'impulsion, largement utilisée dans la modélisation des jets, est justifiée par le fait que l'on admet que les lignes de circulation pénètrent le jet avec une direction perpendiculaire à l'axe. Ce point a été étudié théoriquement par Kotsovinos et Angelidis [106] qui concluent que c'est justifié dans la plupart des cas.

Nous avons donc l'équation de la conservation du flux d'impulsion, l'équation de conservation du flux de masse de gaz et l'équation d'entraînement du liquide :

$$\begin{aligned}\frac{d}{dz} (\rho_{\text{gaz}} \alpha u^2 R^2 + \rho_{\text{liq}} (1 - \alpha) u^2 R^2) &= 0 \\ \frac{d}{dz} (\rho_{\text{gaz}} \alpha u R^2) &= 0 \\ \frac{d}{dz} (\rho_{\text{liq}} (1 - \alpha) u R^2) &= \frac{0.282}{\pi} \sqrt{\rho_{\text{liq}} M}\end{aligned}$$

où R est le rayon du jet, u la vitesse axiale, α le taux de vide et M le flux d'impulsion. Les conditions initiales sont les valeurs de u_0 et R_0 au début de la zone d'entraînement (fin de la zone de détente) et $\alpha_0 = 1$. On en déduit :

$$\begin{aligned}\rho_{\text{gaz}} \alpha u^2 R^2 + (1 - \alpha) \rho_{\text{liq}} u^2 R^2 &= \rho_{\text{gaz}} u_0^2 R_0^2 \\ \rho_{\text{gaz}} \alpha u R^2 &= \rho_{\text{gaz}} u_0 R_0^2 \\ \frac{0.282}{\pi} \sqrt{\rho_{\text{liq}} M} &= \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_{\text{gaz}} \rho_{\text{liq}}} u_0 R_0 \\ \rho_{\text{liq}} (1 - \alpha) u R^2 &= \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_{\text{gaz}} \rho_{\text{liq}}} u_0 R_0 z\end{aligned}$$

Introduisant les variables sans dimension $u^* = \frac{u}{u_0}$, $R^* = \frac{R}{R_0}$ et $z^* = \frac{z}{R_0}$, nous avons les trois équations algébriques :

$$\begin{aligned}\alpha u^{*2} R^{*2} + \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} (1 - \alpha) u^{*2} R^{*2} &= 1 \\ \alpha u^* R^{*2} &= 1 \\ \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} (1 - \alpha) u^* R^{*2} &= \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}}\right)} z^*\end{aligned}$$

D'où on tire immédiatement :

$$u^* = \frac{1}{1 + \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}}\right)} z^*} \quad (2)$$

En combinant les relations précédentes, on trouve facilement les lois $\alpha(z^*)$ et $R^*(z^*)$. Epstein définit la longueur de pénétration du jet en introduisant une vitesse limite en dessous de laquelle l'entraînement n'est plus possible. Cette limite est en fait une valeur limite du nombre de Kutateladze. Remarquons que l'absence de glissement dans ce modèle est quelque peu en contradiction avec l'utilisation qui en est faite ensuite (captation des aérosols par impaction). Dans le cas qui nous intéresse, c'est-à-dire un jet liquide entraînant du gaz, nous n'avons pas un tel critère. Si on fait les mêmes hypothèses, on aura des équations analogues, avec la condition limite telle que $\alpha_0 = 0$.

$$\begin{aligned} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \alpha u^{*2} R^{*2} + (1 - \alpha) u^{*2} R^{*2} &= 1 \\ \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \alpha u^* R^{*2} &= \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}}\right)} z^* \\ (1 - \alpha) u^* R^{*2} &= 1 \end{aligned}$$

Ce qui conduit à :

$$u^* = \frac{1}{1 + \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}}\right)} z^*} \quad (3)$$

Le terme $\frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}}\right)}$ est de l'ordre de 5.10^{-3} , ce qui donne une longueur de pénétration du jet beaucoup trop grande par rapport aux valeurs expérimentales ($z^* \approx 70$). Ce résultat est compréhensible : en supposant qu'il n'y a pas de glissement, on n'a pas un freinage suffisant de la phase lourde qui est la phase liquide.

B.2 Prise en compte du glissement

L'idée est de tenir compte de façon plus réaliste de l'échange d'impulsion entre la phase liquide et la phase gaz en introduisant un glissement entre les deux phases, ce qui permettra d'introduire un critère d'arrêt de l'entraînement comme par exemple la vitesse maximale du gaz. Nous avons deux vitesses, u_{gaz} la vitesse du gaz et u_{liq} la vitesse de masse de la phase liquide :

$$u_{\text{liq}} = \frac{\sum n_i m_i v_i}{\sum n_i m_i} \quad (4)$$

Les sommes portant sur les classes de taille de la distribution, n_i étant la concentration numérique des gouttes dans chaque classe. Nous devons écrire une équation de conservation du flux de masse liquide, une équation d'entraînement du gaz, une équation pour le flux d'impulsion de la phase liquide, une équation pour le flux d'impulsion de la phase gaz et nous avons les quatre inconnues R , u_{gaz} , u_{liq} et α . Il n'y a pas de flux d'impulsion entrant, autre que celui à l'origine, donc le flux d'impulsion total est conservé. Nous avons donc les mêmes hypothèses que précédemment, sauf le glissement. Nous faisons une hypothèse supplémentaire, l'absence d'interaction entre gouttes (passage d'une goutte dans le sillage d'une autre goutte). Cette approximation est nécessaire pour pouvoir écrire un modèle simple. Pour une goutte de classe i :

$$\frac{dv_i}{dt} = -\frac{3}{4} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \frac{1}{d_i} f(\text{Re}_i) (v_i - u_{\text{gaz}}(z)) |v_i - u_{\text{gaz}}(z)| \quad (5)$$

Le coefficient de friction qui couvre une large gamme de nombres de Reynolds est par exemple celui préconisé par Ishii et Zuber [55] en l'absence d'interaction entre gouttes :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \text{Si } \text{Re} < 1000 & \text{alors } f(\text{Re}) = \frac{24}{\text{Re}} (1 + 0,1\text{Re}^{0,75}) \\ \text{Si } \text{Re} \geq 1000 & \text{alors } f(\text{Re}) = 0,44 \quad (\text{limite de Newton}) \end{array} \right.$$

Plutôt que d'écrire des équations globales pour l'échange d'impulsion entre la phase liquide et la phase gaz qui ne sont pas facilement utilisables, il est préférable d'écrire le système d'équations suivant, si on a une distribution de n classes de taille :

$$\begin{aligned} v_i \frac{dv_i}{dz} &= -\frac{3}{4} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \frac{1}{d_i} f(\text{Re}_i) (v_i - u_{\text{gaz}}(z)) |v_i - u_{\text{gaz}}(z)| \\ u_{\text{liq}} &= \frac{\sum n_i m_i v_i}{\sum n_i m_i} \\ \rho_{\text{gaz}} \alpha u_{\text{gaz}}^2 R^2 + \rho_{\text{liq}} (1 - \alpha) u_{\text{liq}}^2 R^2 &= \rho_{\text{liq}} u_0^2 R_0^2 \\ \rho_{\text{liq}} (1 - \alpha) u_{\text{liq}} R^2 &= \rho_{\text{liq}} u_0 R_0^2 \\ \rho_{\text{gaz}} \alpha u_{\text{gaz}} R^2 &= \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_{\text{gaz}} \rho_{\text{liq}}} u_0 R_0 z \end{aligned} \quad (6)$$

On a admis que le taux de vide est nul à l'origine. Nous avons $n+3$ inconnues et $n+3$ équations. Pour un pas d'espace δz , le système à résoudre est assez facile à rendre implicite ou à centrer. La simplicité du modèle est liée aux hypothèses fortes : profil créneau, modèle d'entraînement, conservation du flux d'impulsion et pas d'interaction entre gouttes. La résolution de ce système nous permet théoriquement d'obtenir les différents profils, y compris les courbes de relaxation pour chaque goutte, dans un même temps. Néanmoins, ceci implique pour chaque pas dz , l'inversion d'un système ($53 * 53$), car nous traitons cinquante classes de tailles de gouttes.

B.3 Solution simplifiée : fonction d'essai

Une solution simplifiée, suffisante pour nos besoins, consiste à prendre en compte le glissement en introduisant une fonction d'essai. Le gaz est accéléré par la phase liquide. Considérant que la vitesse du gaz est très faible à l'origine devant celle du liquide, elle doit croître et passer par un maximum, car la vitesse de la phase liquide elle-même diminue. On essaie de rendre compte de ces aspects en introduisant une relation :

$$\frac{u_{\text{gaz}}^*}{u_{\text{liq}}^*} = \left(\frac{z^*}{\gamma} \right)^n \quad (7)$$

Ce qui conduit au système :

$$\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \alpha u_{\text{gaz}}^{*2} R^{*2} + (1 - \alpha) u_{\text{liq}}^{*2} R^{*2} = 1 \quad (8)$$

$$\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \alpha u_{\text{gaz}}^* R^{*2} = \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \right)} z^* \quad (9)$$

$$(1 - \alpha) u_{\text{liq}}^* R^{*2} = 1 \quad (10)$$

Qui avec la relation (7) est un système fermé. Le coefficient γ et l'exposant n sont choisis de façon à obtenir des profils satisfaisants. On note :

$$\beta = \frac{0.282}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}}\right)} \quad (11)$$

Tenant compte de (9) et (10), on peut écrire (8) sous la forme :

$$\begin{aligned} \beta u_{\text{gaz}}^* z^* + u_{\text{liq}}^* &= 1 \\ \beta \gamma u_{\text{liq}}^* \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1} + u_{\text{liq}}^* &= 1 \end{aligned}$$

Nous avons donc les profils :

$$u_{\text{liq}}^* = \frac{1}{1 + \gamma \beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1}} \quad (12)$$

$$u_{\text{gaz}}^* = \frac{\left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^n}{1 + \gamma \beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1}} \quad (13)$$

En combinant les équations (9) et (10), nous avons :

$$\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} \frac{\alpha}{1 - \alpha} \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^n = \beta z^*$$

D'où :

$$\alpha = \frac{\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \gamma \beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{1-n}}{1 + \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \gamma \beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{1-n}} \quad (14)$$

En se servant d'une des équations (9) ou (10), on obtient finalement :

$$R^* = \sqrt{\left(1 + \gamma \beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1}\right) \left(1 + \frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \gamma \beta \left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{1-n}\right)} \quad (15)$$

Avec ce profil, la vitesse du liquide décroît continûment, la vitesse du gaz part de zéro et passe par un maximum, le taux de vide est zéro à l'origine et tend vers 1.

Commentaires

Bien qu'on impose de partir d'un taux de vide nul, la dérivée du taux de vide est infinie à l'origine puis tend vers 0, ce qui semble physique. De même, la dérivée de la vitesse du gaz est infinie à l'origine, ce qui n'est pas gênant. On atteint le maximum de la vitesse du gaz pour :

$$\left(\frac{z^*}{\gamma}\right)^{n+1} = \frac{n}{\beta\gamma}$$

On peut prendre comme critère définissant la longueur de pénétration du jet, la distance axiale pour laquelle la vitesse du gaz devient égale à celle du liquide, donc $\frac{z^*}{\gamma} = 1$ (au-delà, le modèle n'a pas de sens physique). Si on veut que la vitesse du gaz passe par un maximum avant ce point, ceci impose que $\frac{n}{\beta\gamma} \leq 1$.

Par exemple, pour une vitesse à la brèche de 130 m.s^{-1} , les mesures indiquent que $\gamma \approx 100$. Si on prend pour valeur du paramètre $\gamma = 100$, on a $\gamma\beta \approx 0.5$ et le choix de l'exposant $n = \frac{1}{2}$ satisfait les critères $n < 1$ et $\frac{n}{\beta\gamma} \leq 1$. Pour $z^* = \gamma$, on obtient $R^* \approx \sqrt{(1.5)(501)} \approx 27.5$, ce qui paraît assez correct (c'est l'ordre de grandeur de l'ouverture du jet citée dans la littérature). En conséquence, on peut retenir ce profil comme étant convenable pour l'étude de la relaxation.

Cinétique de relaxation des gouttes

On doit alors résoudre pour chaque taille de goutte à tester (diamètre d) l'équation :

$$\frac{dv}{dt} = -\frac{3}{4} \frac{1}{d} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} f(\text{Re})(v - u_{\text{gaz}}(z))|v - u_{\text{gaz}}(z)|$$

avec ,

$$\left\{ \begin{array}{ll} \text{Si } \text{Re} < 1000 & \text{alors } f(\text{Re}) = \frac{24}{\text{Re}} (1 + 0,1\text{Re}^{0,75}) \\ \text{Si } \text{Re} \geq 1000 & \text{alors } f(\text{Re}) = 0,44 \quad (\text{limite de Newton}) \end{array} \right.$$

On a aussi :

$$v \frac{dv}{dz} = -\frac{3}{4} \frac{1}{d} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} f(\text{Re})(v - u_{\text{gaz}}(z))|v - u_{\text{gaz}}(z)|$$

Et donc sous la forme adimensionnelle :

$$v^* \frac{dv^*}{dz^*} = -\frac{3}{4} \frac{R_0}{d} \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} f(\text{Re})(v^* - u_{\text{gaz}}^*(z^*))|v^* - u_{\text{gaz}}^*(z^*)| \quad (16)$$

Ce qui permet d'utiliser directement le profil $u_{\text{gaz}}^*(z^*)$. On part de $v^* = 1$. Le nombre de Reynolds peut s'écrire :

$$\text{Re} = \frac{|v - u_{\text{gaz}}(z)|d}{\nu_{\text{gaz}}} = \frac{|v^* - u_{\text{gaz}}^*(z^*)|u_0 d}{\nu_{\text{gaz}}} = \text{Re}_{d,0} |v^* - u_{\text{gaz}}^*(z^*)|$$

avec,

$$\text{Re}_0 = \frac{u_0 R_0}{\nu_{\text{gaz}}}$$

et,

$$\text{Re}_{d,0} = \text{Re}_0 \frac{d}{R_0} \quad (17)$$

où, u_0 et R_0 sont respectivement la vitesse et le rayon du jet à la fin de la phase de détente. Les seuls paramètres de l'équation (16) sont $\text{Re}_{d,0}$ et d ou Re_0 et d . Ceci facilite le calcul dont nous avons besoin pour l'évaluation des coefficients de transfert. Pour évaluer le coefficient de transfert moyen, on considère le transfert de chaleur (sans évaporation) qui intervient dans l'équation :

$$\begin{aligned} m_{\text{liq}} C p_{\text{liq}} \frac{dT_{\text{liq}}}{dt} &= -S \text{Nu}(z) \frac{k_{\text{gaz}}}{d} (T_{\text{liq}} - T_{\infty}) \\ \frac{dT_{\text{liq}}}{dt} &= -3 \text{Nu}(z) \frac{\alpha_{\text{gaz}} \rho_{\text{gaz}} C p_{\text{gaz}}}{d^2 \rho_{\text{liq}} C p_{\text{liq}}} (T_{\text{liq}} - T_{\infty}) \\ v \frac{dT_{\text{liq}}}{dz} &= -3 \text{Nu}(z) \frac{\alpha_{\text{gaz}} \rho_{\text{gaz}} C p_{\text{gaz}}}{d^2 \rho_{\text{liq}} C p_{\text{liq}}} (T_{\text{liq}} - T_{\infty}) \\ \frac{u_0}{R_0} v^* \frac{dT_{\text{liq}}}{dz^*} &= -3 \text{Nu}(z^*) \frac{\alpha_{\text{gaz}} \rho_{\text{gaz}} C p_{\text{gaz}}}{d^2 \rho_{\text{liq}} C p_{\text{liq}}} (T_{\text{liq}} - T_{\infty}) \\ \frac{u_0}{R_0} \frac{1}{T_{\text{liq}} - T_{\infty}} \frac{dT_{\text{liq}}}{dz^*} &= -3 \frac{\text{Nu}(z^*)}{v^*} \frac{\alpha_{\text{gaz}} \rho_{\text{gaz}} C p_{\text{gaz}}}{d^2 \rho_{\text{liq}} C p_{\text{liq}}} \end{aligned}$$

Ce qui donne, pour chaque couple (Re_0, d) ou $(\text{Re}_{d,0}, d)$ une solution de la forme :

$$T_{\text{liq}}(z^*) - T_{\infty} = A e^{-B \int_0^{z^*} \frac{\text{Nu}(t)}{v^*(t)} dt} \quad (18)$$

Il est donc judicieux de prendre pour nombre de Nusselt moyen :

$$\bar{\text{Nu}} = \frac{\int_0^{z_{\text{max}}^*} \frac{\text{Nu}(z^*)}{v^*(z^*)} dz^*}{\int_0^{z_{\text{max}}^*} \frac{dz^*}{v^*(z^*)}} \quad (19)$$

Ce qui revient à prendre la moyenne temporelle sur le temps de transit de la goutte.

C Equation de Rayleigh

L'équation de Rayleigh est l'exemple le plus célèbre d'écoulement auto-semblable. C'est un écoulement dans lequel le champ de vitesse s'obtient à partir des conditions aux limites par un changement d'échelle. Cette équation a été développée par Lord Rayleigh pour décrire le *collapse* des bulles. L'équation de la conservation de la masse dans le milieu aval et en coordonnées sphériques s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \rho u) = 0 \quad (1)$$

En supposant l'écoulement incompressible, l'équation de conservation de la masse se résume à $r^2 u = Cte$, d'où :

$$u(r) = \dot{R} \frac{R^2}{r^2}, \quad (2)$$

où R est le rayon de l'interface et $\dot{R} = \frac{dR}{dt}$ sa vitesse. Cette formule exprime la règle d'auto-similarité.

L'équation de la conservation de la quantité de mouvement (impulsion) en négligeant les forces de viscosité (équation d'Euler) est :

$$\rho \frac{\partial u}{\partial t} + \rho u \frac{\partial u}{\partial r} = - \frac{\partial P}{\partial r} \quad (3)$$

En utilisant l'expression de la vitesse qui découle de la règle d'auto-similarité (2) et en la reportant dans l'équation d'Euler, nous obtenons la dérivée temporelle et spatiale :

$$\frac{\partial u(r)}{\partial t} = \frac{\ddot{R} R^2 + 2R\dot{R}^2}{r^2}$$

$$\frac{\partial u(r)}{\partial r} = -2 \frac{\dot{R} R^2}{r^3}$$

Nous avons donc l'équation d'Euler sous la forme :

$$\frac{\ddot{R} R^2 + 2R\dot{R}^2}{r^2} - 2 \frac{\dot{R}^2 R^4}{r^5} = - \frac{1}{\rho_{liq}} \frac{\partial P}{\partial r}$$

Intégrons à présent cette équation de $r = R$ à $r = \infty$:

$$(\ddot{R} R^2 + 2R\dot{R}^2) \int_R^\infty \frac{1}{r^2} dr - (2\dot{R}^2 R^4) \int_R^\infty \frac{1}{r^5} dr = - \frac{1}{\rho_{liq}} \int_R^\infty \frac{\partial P}{\partial r} dr$$

Et donc,

$$(\ddot{R}R^2 + 2R\dot{R}^2) \left[-\frac{1}{r} \right]_R^\infty + (2\dot{R}^2 R^4) \frac{1}{4} \left[\frac{1}{r^4} \right]_R^\infty = -\frac{P_\infty - P_R}{\rho_{liq}}$$

Par conséquent, on arrive à l'expression :

$$\ddot{R}R + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{P_R - P_\infty}{\rho_{liq}}$$

Dans notre cas, $P_\infty = P_{liq}$ et $P_R = P_{bulle}$, et on arrive donc à l'expression de l'équation de Rayleigh :

$$\boxed{\ddot{R}R + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{P_{bulle} - P_{liq}}{\rho_{liq}}} \quad (4)$$

Nous venons de voir que l'équation d'Euler (équation de l'impulsion pour un fluide non visqueux) conjuguée à la règle d'auto-similarité (équation de la conservation de la masse pour un fluide incompressible et en coordonnées sphériques) conduit à l'équation du mouvement de l'interface bulle-liquide. Il est également possible de réécrire cette équation sous la forme :

$$\ddot{R}R + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{2R^2\dot{R}} \frac{d}{dt}(R^3\dot{R}^2) = \frac{1}{2R^2} \frac{d}{dR}(R^3\dot{R}^2) = \frac{P_{bulle} - P_{liq}}{\rho_{liq}}$$

Donc :

$$3R^2\dot{R}^2 = 2R^2 \frac{P_{bulle} - P_{liq}}{\rho_{liq}}$$

D'où la solution de l'équation de Rayleigh :

$$\boxed{\dot{R}(t) = \left(\frac{2}{3} \frac{\Delta P}{\rho_{liq}} \right)^{\frac{1}{2}}} \quad (5)$$

Remarque : Certains auteurs présentent comme équation de Rayleigh, l'équation $R(t) = \left(\frac{2}{3} \frac{\Delta P}{\rho_{liq}} \right)^{\frac{1}{2}} . t$ qui n'est valable que pour $\Delta P = Cte$, ce qui n'a pas d'intérêt pratique.

D Coefficients de transfert en régime transitoire

Dans la partie concernant l'étude de la croissance des germes de vapeur, on trouve dans la littérature une expression du rayon du germe en fonction du temps (2.3.10) dans laquelle apparaît le nombre de *Jakob*. Par ailleurs, d'autres auteurs proposent une expression (2.3.11) dans laquelle figure la racine du nombre de *Jakob*. Cette différence se retrouve dans la solution combinant le régime inertiel et le régime diffusif, respectivement (2.3.16) et (2.3.25). Pour comprendre cette différence, nous examinons la conduction en géométrie plane et la conduction en géométrie sphérique. Dans les deux cas, il s'agit de transferts thermiques en régime transitoire. Un autre cas de transfert en régime transitoire est le transfert de chaleur entre une goutte liquide et le gaz environnant (évaluation du nombre de Nusselt).

D.1 Conduction à travers une plaque plane

Le cas classique d'un problème de conduction monodimensionnel à travers une plaque plane peut se traiter en écrivant l'équation de la conservation de l'énergie et la loi de Fourier :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha_{liq} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}, \quad (1)$$

où α_{liq} est la diffusivité thermique liquide. Une solution générale de cette équation différentielle est de la forme :

$$T(t, x) = A + B \left(1 - erf \left(\frac{x}{2\sqrt{\alpha_{liq}t}} \right) \right) \quad (2)$$

où A et B sont des constantes d'intégration et $erf(f(x))$ est la fonction d'erreur de la fonction $f(x)$. Cette fonction est définie par :

$$erf(f(x)) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{f(x)}^{\infty} e^{-t^2} dt \quad (3)$$

Ce profil satisfait bien l'équation de Laplace (1). Les constantes d'intégration de l'équation (2) peuvent être déterminées à l'aide des conditions initiales suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{lll} T = T_{\infty} & \text{quand} & x > 0 \text{ et } t = 0 \\ T = T_i & \text{quand} & x = 0 \text{ et } t > 0 \\ T = T_{\infty} & \text{quand} & x \rightarrow \infty \text{ et } t > 0 \end{array} \right.$$

On arrive donc à une expression de la solution de l'équation de l'énergie de la forme :

$$T(t, x) = T_{\infty} + (T_i - T_{\infty}) \left(1 - erf \left(\frac{x}{2\sqrt{\alpha_{liq}t}} \right) \right) \quad (4)$$

Le flux de chaleur est obtenu par l'équation de Fourier (avec nos conventions) :

$$\Phi^{cond} = k_{liq} \frac{\partial T}{\partial x} \quad (5)$$

D'où l'expression du flux de conduction :

$$\boxed{\Phi^{cond} = \frac{k_{liq}(T_{\infty} - T_i)}{\sqrt{\pi\alpha_{liq}t}}} \quad (6)$$

Remarque : L'expression présente au dénominateur de l'équation précédente est homogène à une distance. En effet, elle caractérise l'épaisseur de la couche de diffusion :

$$\delta(t) = \sqrt{\pi\alpha_{liq}t} \quad (7)$$

D.2 Conduction dans une sphère liquide

L'équation de conservation de l'énergie en régime stationnaire et en coordonnées sphériques est :

$$\frac{d}{dr} \left(4\pi r^2 \lambda_{liq} \frac{\partial T}{\partial r} \right) = 0 \quad (8)$$

où λ_{liq} est la conductivité thermique de la phase liquide. Nous pouvons réécrire cette équation sous la forme :

$$r^2 \frac{dT}{dr} = Cte \quad (9)$$

D'où le profil :

$$T(r) = -\frac{A}{r} + B \quad (10)$$

où A et B sont des constantes d'intégration. En notant T_i la température d'interface et T_{∞} la température loin de l'interface, nous pouvons déterminer l'expression des deux constantes d'intégration, et le profil de température s'écrit :

$$T(r) = -(T_{\infty} - T_i) \frac{R}{r} + T_{\infty} \quad (11)$$

Dans cette approche, nous considérons que l'intérieur de la bulle est isotherme. En effet, si ce n'était pas le cas, la conductivité thermique du gaz apparaîtrait dans l'équation. Écrivons à présent le flux de chaleur J , au niveau de l'interface :

$$J = -4\pi R^2 \lambda_{liq} \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r=R(t)} \quad (12)$$

En utilisant le profil de température obtenu précédemment, on obtient :

$$J = -4\pi R^2 \lambda_{liq} \frac{R(T_\infty - T_i)}{R^2} = -4\pi R \lambda_{liq} (T_\infty - T_i) \quad (13)$$

Dans ce cas, le nombre de Nusselt est égal à deux. En effectuant un bilan des flux au niveau de l'interface en considérant que la chaleur apportée par convection radiale à l'interface sert à alimenter le flux de vaporisation dans la bulle de vapeur, nous arrivons à l'expression suivante :

$$4\pi R \lambda_{liq} (T_\infty - T_i) = Lv(T_i, P_{sat}(T_i)) \frac{d}{dt} \left(\frac{4}{3} \pi R^3 \rho_{gaz} \right), \quad (14)$$

où $Lv(T_i, P_{sat}(T_i))$ est la chaleur latente de vaporisation au niveau de l'interface. Cette expression nous permet donc d'évaluer la vitesse de l'interface en réécrivant l'équation précédente sous la forme :

$$R \frac{dR}{dt} = \frac{\lambda_{liq} (T_\infty - T_i)}{\rho_{gaz} Lv(T_i, P_{sat}(T_i))} \quad (15)$$

En introduisant le nombre de Jakob, $Ja = \frac{\rho_{liq} C_{p_{liq}} \Delta T}{\rho_{gaz} Lv}$, nous arrivons à l'expression :

$$R \frac{dR}{dt} = \alpha_{liq} Ja \quad (16)$$

D'où la solution :

$$\boxed{R(t)_{diffusif} = \sqrt{2\alpha_{liq} Ja t}} \quad (17)$$

La différence avec le cas de la plaque plane est que le coefficient de transfert ne dépend pas du temps.

D.3 Conduction dans une sphère liquide avec modification du gradient

Il est courant, dans les phénomènes de transfert de chaleur, de prendre en compte le terme de convection radiale lié au débit d'évaporation dans la bulle. Dans ce cas, il apparaît dans l'équation de l'énergie en coordonnées sphériques, un terme convectif. L'équation de conservation de l'énergie peut donc s'écrire :

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\underbrace{4\pi r^2 \lambda_{liq} \frac{\partial T}{\partial r}}_{\phi_{conduction}} + \underbrace{\dot{m}_{ev} C_{p_{liq}} T}_{\phi_{convection}} \right) = 0 \quad (18)$$

où \dot{m}_{ev} est le débit d'évaporation à l'interface. On peut écrire en régime stationnaire :

$$r^2 \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\dot{m}_{ev} C_{p_{liq}}}{4\pi \lambda_{liq}} = A \quad (19)$$

Donc $T(r)$ est de la forme (en notant $\delta = \frac{\dot{m}_{ev} C_{pliq}}{4\pi\lambda_{liq}}$) (δ en m) :

$$T(r) = A + B e^{\frac{\delta}{r}} \quad (20)$$

On trouve finalement :

$$T(r) = \frac{T_{\infty} e^{\frac{\delta}{r}} - T_i}{e^{\frac{\delta}{r}} - 1} - \frac{(T_{\infty} - T_i) e^{\frac{\delta}{r}} - T_i}{e^{\frac{\delta}{r}} - 1} \quad (21)$$

En utilisant ce profil de température, nous pouvons écrire :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r=R} = (T_{\infty} - T_i) \frac{e^{\frac{\delta}{r}}}{e^{\frac{\delta}{r}} - 1} \frac{\delta}{R^2} \quad (22)$$

Nous avons donc le flux thermique au niveau de l'interface :

$$J = 4\pi R^2 \lambda_{liq} (T_{\infty} - T_i) \frac{e^{\frac{\delta}{r}}}{e^{\frac{\delta}{r}} - 1} \frac{\delta}{R} \quad (23)$$

Et en notant $J_0 = 4\pi R \lambda_{liq} (T_{\infty} - T_i)$, nous arrivons à l'expression :

$$J = J_0 \frac{e^{\frac{\delta}{r}}}{e^{\frac{\delta}{r}} - 1} \frac{\delta}{R} \quad (24)$$

En supposant $\frac{\delta}{R}$ petit, ce qui est justifié car :

$$\frac{\delta}{R} = \frac{\dot{m}_{ev} C_{pliq}}{4\pi R \lambda_{liq}} = \frac{\dot{m}_{ev} C_{pliq} \Delta T}{4\pi R \lambda_{liq} \Delta T} = \frac{C_{pliq} \Delta T}{Lv} \quad (25)$$

On trouve au final :

$$J \approx J_0 e^{\frac{\delta}{R}} \quad (26)$$

C'est le raidissement du gradient (en évaporation). La nouvelle équation est donc :

$$R \frac{dR}{dt} = \alpha J a e^{\frac{\delta}{R}} \quad (27)$$

Mais $\frac{\delta}{R}$ peut aussi s'écrire :

$$\frac{\delta}{R} = R \frac{dR}{dt} \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \quad (28)$$

D'où :

$$R \frac{dR}{dt} \approx \alpha J a \left(1 + R \frac{dR}{dt} \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \right) \quad (29)$$

Au final, nous arrivons à l'expression suivante :

$$R(t)_{diffusif} = \frac{\sqrt{2\alpha Ja}}{\sqrt{1 - \alpha Ja \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}}} \sqrt{t} \quad (30)$$

D.4 Coefficients de transfert thermique en phase liquide : nombre de Nusselt

On dispose d'une expression algébrique du coefficient de transfert en fonction du temps pour deux cas limites, celui de la sphère rigide et celui des grands nombres de Péclet. La théorie est établie dans la littérature pour le transfert de masse (modèles d'extraction). Elle est facilement transposée au transfert thermique.

Le calcul du coefficient d'échange en transitoire est équivalent au calcul en transitoire de la concentration d'une espèce dissoute $c(r, t)$ pour $r < R$ avec la condition initiale que la concentration de départ dans la goutte est homogène, égale à c_0 . Donc, une goutte contenant une espèce dissoute à la concentration initiale c_0 est mise en contact avec un environnement gazeux. Ce problème est strictement équivalent, sur le plan mathématique, à celui d'une goutte d'eau initialement pure, mise en contact avec un milieu gazeux contenant l'espèce considérée à une concentration produisant à l'interface une concentration égale à c_0 . Il faut résoudre l'équation de transport $\frac{Dc}{Dt} = D_l \Delta c$, où D_l est le coefficient de diffusion de l'espèce considérée en phase liquide (dans l'eau) avec la condition initiale ($c = c_0$) et la condition à la frontière du domaine ($c = 0$ par exemple). Mathématiquement, c'est un problème de type Sturm-Liouville.

On cherche une solution de l'équation $\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} c = D_l \Delta c$ par la méthode de séparation des variables. Ceci conduit à un ensemble de valeurs propres μ_n et de fonctions propres χ_n , de sorte que la solution s'écrit :

$$c(\vec{r}, t) = \sum A_n e^{-\mu_n t} \chi_n(\vec{r}, t) \quad (31)$$

Les valeurs propres et les fonctions propres dépendent du champ de vitesse dans la goutte. On impose que les fonctions propres soient orthogonales au sens d'une norme définie sur le domaine : $\iiint \chi_n(\vec{r}) \chi_m(\vec{r}) d^3 \vec{r} = \delta_{m,n}$ (méthode de Ritz). Tout l'art consiste en la détermination des valeurs propres, des fonctions propres et des coefficients A_n .

Une fois obtenue la décomposition (1), on a une expression de

$$M(t) = \iiint c(\vec{r}, t) d^3 \vec{r}$$

donc de $\frac{dM(t)}{dt}$ et de $\bar{c}(t) = \frac{M(t)}{v}$.

On peut aussi bien imposer une concentration c_i à l'interface. On peut donc définir le nombre de Sherwood en transitoire par :

$$\frac{M(t)}{dt} = -SSH(t) \frac{D_l}{\Phi} (\bar{c}(t) - c_i) \quad (32)$$

D.4.1 Cas de la goutte au repos (sphère rigide) : solution de Carslaw et Jaeger

La solution est à symétrie sphérique :

$$c(r^*, t) = \frac{2c_0}{\pi r^*} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1}}{n} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} \sin(n\pi r^*) \quad (33)$$

avec $r^* = \frac{r}{R}$. C'est une fonction qui satisfait l'équation (de Helmholtz) $\frac{\partial c}{\partial t} = D_l \Delta c$, et telle que pour $t = 0$, $c = c_0$ et $c(1) = 0$ quel que soit t . C'est donc bien la solution unique du problème.

$$M(t) = 4\pi R^3 \int_0^1 c(r^*, t) r^{*2} dr^* = 8R^3 c_0 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} \quad (34)$$

On a donc d'une part $\bar{c}(t) = \frac{6c_0}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)}$ et d'autre part :

$$\dot{M}(t) = -8\pi^2 R c_0 D_l \sum_{n=1}^{\infty} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} = -4S c_0 \pi \frac{D_l}{2R} \sum_{n=1}^{\infty} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)}$$

D'où finalement :

$$Sh_l(t) = \frac{2}{3} \pi^2 \frac{\sum_{n=1}^{\infty} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)}}{\sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)}} \quad (35)$$

Que l'on peut écrire :

$$Sh_l(t) = \frac{2}{3} \pi^2 \frac{1 + e^{\left(-3 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} + e^{\left(-8 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} + \dots}{1 + \frac{1}{4} e^{\left(-3 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} + \frac{1}{9} e^{\left(-8 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)}} \quad (36)$$

On peut généraliser cette solution au cas où la concentration à l'interface prend une valeur quelconque différente de zéro. La solution est :

$$c(r^*, t) = c_i + \frac{2(c_0 - c_i)}{\pi r^*} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1}}{n} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 D_l t}{R^2}\right)} \sin(n\pi r^*)$$

Ce qui ne change pas le nombre de Sherwood (35). D'autre part, si on considère le transfert thermique, la solution de l'équation de transport est strictement analogue, il suffit de remplacer D_l par la diffusivité thermique α_l .

$$T(r^*, t) = T_i + \frac{2(T_0 - T_i)}{\pi r^*} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1}}{n} e^{\left(-n^2 \frac{\pi^2 \alpha_l t}{R^2}\right)} \sin(n\pi r^*)$$

On trouve donc le nombre de Nusselt :

$$Nu_l(t) = \frac{2}{3}\pi^2 \frac{1 + e\left(-3\frac{\pi^2\alpha_l t}{R^2}\right) + e\left(-8\frac{\pi^2\alpha_l t}{R^2}\right) + \dots}{1 + \frac{1}{4}e\left(-3\frac{\pi^2\alpha_l t}{R^2}\right) + \frac{1}{9}e\left(-8\frac{\pi^2\alpha_l t}{R^2}\right)} \quad (37)$$

Ce nombre tend vers l'infini quand t tend vers zéro, ce qui est en accord avec les conditions initiales. Pour t suffisamment grand, il tend vers $\frac{2}{3}\pi^2 \approx 6.58$ qui est la limite citée dans la littérature, en particulier dans la corrélation de Abramzon et Sirignano.

D.4.2 Cas de la goutte en mouvement dans la limite des grands nombres de Péclet : la solution de Kronig et Brink

Ce modèle est très souvent cité dans la littérature, car c'est le seul cas pour lequel il existe une expression mathématique du nombre de Sherwood et du nombre de Nusselt. La contrainte exercée par le gaz qui circule autour de la goutte génère une circulation interne du liquide. Dans la limite de Stokes (petits nombres de Reynolds), une expression mathématique des fonctions de courant $\psi_g(r^*, \theta)$ en phase gaz et $\psi_l(r^*, \theta)$ en phase liquide a été trouvée par le mathématicien Hadamard. Ces fonctions de courant prennent en compte l'équation de Navier-Stokes dans chaque phase, à la limite de Stokes, et la continuité de la contrainte à l'interface. On déduit de ces fonctions le champ de vitesse en phase gaz et en phase liquide, par les relations :

$$v_r = -\frac{1}{r^{*2}} \frac{\partial \psi}{\partial \theta}$$

$$v_\theta = \frac{1}{r^* \sin(\theta)} \frac{\partial \psi}{\partial r^*}$$

Kronig et Brink font l'hypothèse que le processus de diffusion est beaucoup plus lent que le processus de convection (grands nombres de Péclet). Ils en concluent que l'on peut considérer les lignes de courant comme des lignes iso-concentration. Leur méthode consiste alors à transformer l'équation de transport en introduisant des variables qui représentent les lignes de courant et les lignes orthogonales. Le calcul des coefficients de la nouvelle équation est un tour de force mathématique. Ces coefficients sont donnés par des intégrales elliptiques qui sont tabulées. Ensuite, le problème se réduit à un problème de type Sturm-Liouville qu'ils résolvent, comme indiqué plus haut, par la méthode de Ritz.

Les conditions initiales et les conditions limites sont identiques au cas précédent : concentration initiale homogène égale à c_0 et $c(1) = 0$ où $c(1) = c_i$ quel que soit t . Kronig et Brink montrent que le développement en fonctions propres orthogonales de la solution conduit à l'expression suivante de la masse dissoute en fonction du temps :

$$M(t) = M(0) \frac{3}{8} \sum A_n^2 e\left(-\mu_n \frac{16D_l t}{R^2}\right) \quad (38)$$

Et ils donnent les deux premiers termes du développement de la solution : $A_1 = 1.32$, $\mu_1 = 1.678$, $A_2 = 0.73$, $\mu_2 = 9.83$. Par la même procédure que précédemment, on obtient :

$$Sh_l = \frac{32 \mu_1 + \mu_2 \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 e^{-(\mu_2 - \mu_1) \frac{16D_l t}{R^2}}}{3 \left[1 + \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 e^{-(\mu_2 - \mu_1) \frac{16D_l t}{R^2}} \right]} \quad (39)$$

De la même façon :

$$Nu_l = \frac{32 \mu_1 + \mu_2 \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 e^{-(\mu_2 - \mu_1) \frac{16\alpha_l t}{R^2}}}{3 \left[1 + \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 e^{-(\mu_2 - \mu_1) \frac{16\alpha_l t}{R^2}} \right]} \quad (40)$$

Ainsi, les nombres de Sherwood et Nusselt ne se différencient que par leur variation en fonction du temps. Pour un temps suffisamment grand, on obtient la limite $Nu_l = Sh_l = 17.9$ qui est la limite supérieure dans la corrélation de Abramzon et Sirignano.

E La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan

Avant d'aborder ce problème, on rappelle brièvement la signification des nombres sans dimension et le principe de l'analogie de Reynolds.

E.1 Transferts de chaleur et de masse (nombres de Nusselt et de Sherwood)

Le flux de chaleur échangé avec l'environnement par un objet de surface S est, suivant la loi de Fourier (l'intégrale est prise sur la surface de l'objet) :

$$\dot{Q} = - \iint k \vec{\nabla} T \cdot d\vec{S} \quad (1)$$

Si la surface de l'objet est à une température homogène T_0 et l'environnement « loin de l'objet » à une température T_∞ , on exprime usuellement le flux de chaleur comme suit :

$$\dot{Q} = NuS \frac{k}{L} (T_\infty - T_0) \quad (2)$$

où L est une longueur caractéristique de l'objet en question. Pour un objet sphérique, c'est le diamètre. Le coefficient Nu , appelé nombre de Nusselt dépend de la géométrie de l'écoulement autour de l'objet et de la combinaison entre la diffusion et la convection. Il est dans la plupart des cas, mises à part des simplifications d'école, pratiquement impossible de le calculer théoriquement. En cas de présence d'une couche limite, on peut se représenter sa signification en disant que l'épaisseur moyenne de la couche limite thermique est la longueur caractéristique de l'objet divisée par le nombre de Nusselt.

Une telle factorisation en un terme qui ne dépend que de la géométrie de l'écoulement et un terme qui ne dépend que des conditions limites n'est en réalité valable que pour des « faibles » transferts de chaleur. On conçoit en effet que si le transfert de chaleur est suffisamment intense pour perturber l'écoulement, il n'est plus possible d'effectuer cette factorisation. Le flux de masse échangé avec l'environnement par un objet de surface S est, suivant la loi de Fick (l'intégrale est prise sur la surface de l'objet) :

$$\dot{m} = - \iint M \bar{C} D_{av} \vec{\nabla} x \cdot d\vec{S} \quad (3)$$

M est la masse molaire, \bar{C} la concentration molaire moyenne, D le coefficient de diffusion, x la fraction molaire locale. De la même façon, on exprime ce flux sous la forme :

$$\dot{m} = ShS \frac{D_{av}}{L} M \bar{C} (x_\infty - x_0) \quad (4)$$

Le coefficient Sh , appelé nombre de Sherwood, dépend de la combinaison entre la diffusion de masse et le transport par convection qui conduit au gradient local à la surface.

E.2 L'analogie de Reynolds

Pour un écoulement incompressible, sans source de masse, nous avons l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{D\vec{v}}{Dt} = -\vec{\nabla} P + \mu \Delta \vec{v} \quad (5)$$

où $\frac{D}{Dt}$ est la dérivée particulière. Si on considère un état stationnaire d'écoulement, par exemple l'écoulement autour d'une goutte sphérique, cette équation se réduit à :

$$\vec{v} \cdot \vec{\nabla} \vec{v} = -\frac{\vec{\nabla} P}{\rho} + \nu \Delta \vec{v} \quad (6)$$

Avec les conditions limites que la vitesse vaut \vec{v}_∞ loin de la goutte ($-\vec{v}_\infty$ est la vitesse de déplacement de la goutte dans le milieu au repos) et que la vitesse s'annule sur la surface (si c'est une goutte rigide). On introduit les quantités sans dimension $\vec{v}^* = \frac{\vec{v}}{v_\infty}$, $P^* = \frac{P}{\rho v_\infty^2}$ (la pression hydrostatique est exclue) et $r^* = \frac{r}{\Phi}$. On obtient :

$$\vec{v}^* \cdot \vec{\nabla}^* \vec{v}^* = -\vec{\nabla}^* P^* + \frac{\nu}{v_\infty \Phi} \Delta^* \vec{v}^* \quad (7)$$

Cette équation sous forme adimensionnée ne dépend que du nombre de Reynolds $\frac{v_\infty \Phi}{\nu}$. Par conséquent, le champ de vitesses est en principe entièrement déterminé par le nombre de Reynolds et les lois d'échelle. Dans les mêmes conditions (écoulement incompressible stationnaire), et en négligeant les termes dissipatifs, les équations du transfert d'énergie et du transfert de masse s'écrivent :

$$\rho \frac{DH}{Dt} = k \Delta T \quad (8)$$

$$\bar{C} \frac{Dx}{Dt} = \bar{C} D_{av} \Delta x \quad (9)$$

(On suppose que ρ , k , D_{av} , \bar{C} , Cp varient lentement). On a alors $\rho Cp \vec{v} \cdot \vec{\nabla} T = k \Delta T$ d'où $\vec{v} \cdot \vec{\nabla} T = \alpha \Delta T$ et $\vec{v} \cdot \vec{\nabla} x = D_{av} \Delta x$. En introduisant les variables $T^* = \frac{T-T_0}{T_\infty-T_0}$ et $x^* = \frac{x-x_0}{x_\infty-x_0}$ qui ont les mêmes valeurs limites, à savoir 0 sur la surface ($r^* = \frac{1}{2}$) et 1 à l'infini, l'équation de l'énergie s'écrit :

$$\vec{v}^* \cdot \vec{\nabla}^* \vec{v}^* = \frac{\alpha}{v_\infty \Phi} \Delta^* T^* \quad (10)$$

Et l'équation du transfert de masse :

$$\vec{v}^* \cdot \vec{\nabla}^* \vec{v}^* = \frac{D_{av}}{v_\infty \Phi} \Delta^* x^* \quad (11)$$

C'est donc la même équation, au paramètre sans dimension près, avec des conditions aux limites identiques. Les nombres sans dimension $\frac{v_\infty \Phi}{\alpha}$ ou $\frac{v_\infty \Phi}{D_{av}}$ sont appelés nombres de Péclet. Nous avons les relations bien connues $Pe = RePr$ ou $Pe = ReSc$ (Pr et Sc respectivement nombre

de Prandtl et nombre de Schmidt). Dans les équations précédentes, le champ de vitesses \vec{v}^* ne dépend que du nombre de Reynolds. Par conséquent, les solutions sont la même fonction dépendant de deux paramètres : $T^* = f(Re, Pr, \vec{r}^*)$ et $x^* = f(Re, Sc, \vec{r}^*)$. Le flux de chaleur est donné par la relation :

$$\dot{Q} = - \iint k \vec{\nabla} T \cdot d\vec{S} = -k\Phi(T_\infty - T_0) \iint \vec{\nabla}^* T^* \cdot d\vec{S}^* \quad (12)$$

$$\dot{Q} = -k\Phi(T_\infty - T_0) \iint \vec{\nabla}^* (f((Re, Pr, \vec{r}^*))) \cdot d\vec{S}^* \quad (13)$$

De même, le flux de masse est :

$$\dot{m} = -D_{av}\Phi M\bar{C}(x_\infty - x_0) \iint \vec{\nabla}^* (f((Re, Sc, \vec{r}^*))) \cdot d\vec{S}^* \quad (14)$$

Par conséquent, si le nombre de Nusselt est donné par une corrélation, $Nu = f(Re, Pr)$, alors le nombre de Sherwood est donné par $Sh = f(Re, Sc)$. C'est ce qu'on nomme dans la littérature **l'analogie de Reynolds**.

E.3 La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan dans le cas monodimensionnel

Dans ce qui précède, on a supposé le champ de vitesses non perturbé par la source de masse (évaporation) ou le puits de masse (condensation) à l'interface. De même, on suppose que le champ de vitesses n'est pas perturbé par le transfert de chaleur à l'interface. Ceci permet théoriquement de donner une signification aux nombres de Nusselt et Sherwood introduits plus haut, qui sont donc liés aux " faibles transferts ". La théorie de Spalding établit que l'on peut écrire le flux de masse :

$$\dot{m} = ShS \frac{D_{av}}{L} M\bar{C} Ln \left(1 + \frac{x_\infty - x_0}{1 - x_0} \right) \quad (15)$$

Notons que, s'il s'agit de transfert de vapeur, \dot{m} est compté positif en condensation et $x_0 = \frac{P_{sat}(T_0)}{P}$. Sh est dans ce cas le nombre de Sherwood pour les faibles transferts. Le nombre sans dimension $\frac{x_\infty - x_0}{1 - x_0}$ est appelé **nombre de Spalding**. Certains parlent de nombre de Sherwood effectif :

$$Sh_{\text{eff}} = Sh \frac{Ln \left(1 + \frac{x_\infty - x_0}{1 - x_0} \right)}{x_\infty - x_0} \quad (16)$$

Il est d'usage de présenter une approche simple de cette théorie en géométrie monodimensionnelle, en introduisant le concept d'écoulement de Stefan. La diffusion de la vapeur à travers l'air près de l'interface suppose l'existence d'un gradient de concentration d'air opposé à celui de la vapeur, puisque la somme des pressions partielles doit être constante. Par exemple, en condensation, un gradient de concentration d'air de la surface vers l'extérieur doit être maintenu. Ceci n'est possible que s'il existe un écoulement moléculaire en direction de la surface,

qui compense la diffusion de l'air.

D'après la loi de Fick, le débit moléculaire par unité de surface est donné par le débit de diffusion dans le référentiel de l'écoulement moyen et le débit de convection.

$$N_v = Nx_v - \bar{C}D_{av}\frac{dx_v}{dy} \quad (17)$$

avec y la distance à l'interface. D'après l'hypothèse de Stefan : $N = N_a + N_v = N_v$, nous avons donc $N_v = N_v x_v - \bar{C}D_{av}\frac{dx_v}{dy}$ et donc $N_v = -\bar{C}D_{av}\frac{1}{1-x_v}\frac{dx_v}{dy}$. Cette définition implique que N_v est compté positivement en évaporation. En géométrie sphérique (pour une goutte au repos), nous avons $4\pi r^2 N_v = Cte = \pi\Phi^2 N_{v0}$. Et donc :

$$-\bar{C}D_{av}\frac{1}{1-x_v}\frac{dx_v}{dy} = \frac{\Phi^2 N_{v0}}{4r^2} \quad (18)$$

La solution est $\bar{C}D_{av}Ln(1-x_v) = -\frac{\Phi^2 N_{v0}}{4r} + A$. La constante d'intégration est déterminée par la condition que $x_v \rightarrow x_{v\infty}$ quand $r \rightarrow \infty$. Nous obtenons alors :

$$\frac{\Phi^2 N_{v0}}{2\Phi} = \bar{C}D_{av}Ln(1-x_{v\infty}) - \bar{C}D_{av}Ln(1-x_{v0}) \quad (19)$$

Et finalement :

$$N_{v0} = 2\bar{C}\frac{D_{av}}{\Phi}Ln\left(\frac{1-x_{v\infty}}{1-x_{v0}}\right) = 2\bar{C}\frac{D_{av}}{\Phi}Ln\left(1 + \frac{x_{v0} - x_{v\infty}}{1-x_{v0}}\right) \quad (20)$$

Comme en géométrie sphérique $Sh = 2$, on retrouve bien la formule de Spalding.

E.4 La théorie de Spalding et l'écoulement de Stefan dans le cas bidimensionnel

La démonstration qui figure dans certains ouvrages comme par exemple le Bird et al [46] est assez difficile. Nous nous contentons de l'esprit de la démonstration en mettant en avant les hypothèses essentielles. Pour illustrer cette démarche, on prend l'exemple de la plaque plane (condensation sur une plaque froide ou évaporation d'un film). L'écoulement peut être en convection naturelle ou en convection forcée. Dans ce dernier cas, on a une vitesse d'entrée parallèle à la plaque. Dans les deux configurations, c'est un écoulement bidimensionnel. L'hypothèse fondamentale est que les épaisseurs de la couche limite de vitesse, de la couche limite thermique, et de la couche limite de concentration ne sont pas modifiées par le transfert de masse ou de chaleur. Une autre hypothèse essentielle est que la surface plane est à une température homogène (donc à une pression de vapeur saturante homogène).

La surface considérée est de largeur l et de hauteur L . Le débit massique par hauteur dz est, pour les faibles transferts : $d\dot{m}_s = Mldz\bar{C}\frac{D_{av}}{\delta(z)}(x_{v0} - x_{v\infty})$, $\delta(z)$ est égal à l'épaisseur de la couche limite de concentration en fonction de z .

$$\dot{m}_e = MLL\bar{C}\frac{D_{av}}{L}\int_0^L\frac{dz}{\delta(z)}(x_{v0} - x_{v\infty}) \quad (21)$$

On en déduit que $Sh = \int_0^L\frac{dz}{\delta(z)}$.

Introduisons l'écoulement de Stefan. Nous avons $N_v = -\bar{C}D_{av}\frac{1}{1-x_v}\frac{dx_v}{dy} = Cte$ car on considère uniquement la composante de cet écoulement dans la direction normale à la surface. En intégrant cette équation entre zéro et $\delta(z)$ supposé non perturbé, et en prenant $x_v = x_{v\infty}$ pour $y = \delta(z)$, on obtient :

$$N_v(z)\delta(z) = \bar{C}D_{av}Ln(1 - x_{v\infty}) - \bar{C}D_{av}Ln(1 - x_{v0}) \quad (22)$$

Or :

$$\dot{m}_e = Ml\int_0^L N_v(z)dz = Ml\bar{C}D_{av}\int_0^L\frac{dz}{\delta(z)}Ln\left(\frac{1 - x_{v\infty}}{1 - x_{v0}}\right) \quad (23)$$

Finalement, avec la définition du nombre de Sherwood donnée plus haut, nous obtenons

$$\dot{m}_e = MS\bar{C}\frac{D_{av}}{L}Ln\left(\frac{1 - x_{v\infty}}{1 - x_{v0}}\right) \quad (24)$$

qui est bien la formule de Spalding. Dans le cas d'une goutte en mouvement, on a également un écoulement bidimensionnel autour de la goutte. On fait l'hypothèse que l'épaisseur de la couche limite de concentration, fonction de l'angle polaire, ne dépend pas de l'intensité du transfert de masse. Le calcul est analogue en supposant que l'écoulement de Stefan est toujours normal à la surface et en remplaçant l'intégrale sur dz par une intégrale sur l'angle polaire. Dans le cas du transfert thermique, en faisant les mêmes hypothèses sur la couche limite thermique, on fait apparaître le nombre de Spalding thermique.

Références

- [1] Touil A.. Modélisation des jets diphasiques liquide-vapeur et du rain-out. Thèse, Ecole nationale supérieure des Mines de Saint-Etienne, (2004).
- [2] Gieseke J.A, Flanigan L.J, Collier R.P, Denning R.S. Steam generator tube rupture iodine transport mechanisms, task 1 :experimental studies. NUREG/CR-3937, BMI-2114, (1985).
- [3] Wren J.C, Ball J.M. Liric 3.2 an updated model for iodine behaviour in the presence of organic impurities. Radiation Physics and Chemistry, 60, 577–596, (2000).
- [4] Pastina B.. Etude sur la radiolyse de l'eau en relation avec le circuit primaire de refroidissement des réacteurs nucléaires à eau sous pression. Université de Paris-Sud, UFR. Scientifique d'Orsay, Thèse, (1997).
- [5] Güntay S, Dehbi A, Kapulla R. Artist : Introduction and first results. Nuclear Eng. Des, 231, 109–120, (2004).
- [6] Lind T, Suckow D, Dehbi A. Summary report on artist phase ii : tests for retention in the break stage. Paul Scherrer Institut report, ARTIST-72-08, (2008).
- [7] Van Dorselaere J.P, Seropian C, Chatelard P, Jacq F, Fleurot J, Giordana P. The astec integral code for severe accident simulation. REACTOR SAFETY, (2008).
- [8] Ranz W.E., Marshall W.R.. Evaporation from drops. Chem. Eng. Pro., 48, 141–146, (1952).
- [9] Abramzon B., Sirignano W.A. Droplet vaporization model for spray combustion calculations. Int. J. Heat Mass Transfer., 32 n°9, 1605–1618, (1989).
- [10] Kroning R., Brink J.C. On the theory of extraction from falling droplets. Appl. Scient. Res., A2, 142–154, (1951).
- [11] Hewitt G.F. Two-Phase Flow and Heat Transfer in the Power and Process Industries. Bergles A.E. and Collier J.M and Delhaye G.F and Hewitt G.F and Mayinger F, McGraw-Hill(1981).
- [12] Mikic B.B., Rohsenow W.M., Griffith P. On bubble growth rates. I. J. Heat and Mass transfer., 13, 657–666, (1970).
- [13] BROWN.R, YORK.L. Sprays formed by flashing liquide jets. A.I.Ch.E.Journal, Vol.8, 149–153, (1962).
- [14] Nagai N, Sato K, Ch.W LEE. Atomisation characteristics of superheated liquid jets. International Conference on Liquid Atomisation and Spray System,London, UK, (1985).
- [15] Reitz R.D. A photographic study of flash-boiling atomization. Aerosol Science and Technology, Vol 12(3), 561–569, (1990).
- [16] Witlox H.W.M, Bowen P.J. Flashing liquid jets and two-phase dispersion. A review, (2002).
- [17] Bushnell D.M, Gooderum P.B. Measurement of mean drop sizes for sprays from superheated waterjets. Journal of Spacecraft and Rockets, Vol 6 (2), 197–198, (1969).

- [18] FAETH.G.M, HSIANG.L.P, Wu P.K. Structure and breakup properties of sprays. *Int. J. Multiphase Flow*, 21, 99–127, (1995).
- [19] Taylor J.J, Hoyt J.W. *Water jet photography : Techniques and methods. Experiments in Fluids* Springer-Verlag, 1, 113–120, (1983).
- [20] Arai M, Shimiza M, Hiroyasu H. Break-up length and spray angle of high speed jet. *ICLASS-85*, (1985).
- [21] Chehrouid B, Chen S.H. On the intact core of full-cone sprays. *SAE international*, 850126, (1985).
- [22] Hiroyasu H, Arai M. Structures of fuel spray in diesel engines. *SAE International*, SAE Paper 900475, (1990).
- [23] Reitz R.D, Bracco F.B. On the dependence of spray angle and other spray parameters on nozzle design and operating conditions. *SAE International*, SAE paper 790494, (1979).
- [24] Ranz W.E. Some experiments on orifice spray. *J. Chem.Eng*, 36, 175–181, (1958).
- [25] Arrègle J.M, Pastor J.V, Ruiz S. The influence of injection parameters on diesel spray characteristics. *SAE International*, SAE paper 1999-01-0200, (1999).
- [26] Arbeau ANNE. Etude de l'entraînement d'air dans un spray haute pression. diagnostics optiques et application à l'injection diesel. Thèse, INP Toulouse, (2004).
- [27] Herrmann M. Modeling primary breakup : A three-dimensional eulerian level set/vortex sheet method for two-phase interface dynamics. *Centre for Turbulence Research*, 185-196, *Annual Research Briefs* (2003).
- [28] Reitz R.D, Bracco F.V. Mechanisms of breakup of round liquid jets, the encyclopaedia of fluid mechanics. Ed. N Chermisnoff, 3, 233–249, (1986).
- [29] Leipertz A. Spray and atomization. In *clean I.C, Engines and Fuels*, (2005).
- [30] Leroux S, Dumouchel C, Ledoux M. The stability curve of newtonian liquid jets. *Atomization and Sprays*, 6, 623–647, (1996).
- [31] FAETH.G.M. Structure and atomization properties of dense turbulent sprays. 23 *Int.Symposium on combustion*, The Combustion Institute, 1345-1352, (1991).
- [32] Ohnesorge W. Formation of drops by nozzles and the breakup of liquid jets. *Z Angew Math Mech*, 16, 355–358, (1936).
- [33] Reitz R.D. Atomization and other breakup regimes of a liquide jet. Phd, Thesis, Princeton University, NJ, (1978).
- [34] Lin S.P, Reitz R.D. Drop and spray formation from a liquid jet. *Ann Rev Fluid Mech*, 30, 85–105, (1998).
- [35] Plich M, Erdman C.A. Use of breakup time data and velocity history data to predict the maximum size of stable fragments for acceleration-induced breakup of a liquid drop. *Int. J. Multiphase Flow* 13, 13, 741–757, (1987).
- [36] Brodkey R.S. *The phenomena of fluid motions*. Addison-Wesley, Reading Mass, (1969).

- [37] Reitz R.D. Modeling atomization processes in high pressure vaporizing spray. *Atomization and Spray Technology*, Vol 3, 309–337, (1987).
- [38] O'Rourke P.J., A.A. AMSDEN. The tab method for numerical calculation of spray droplet breakup. Conference : International fuels and lubricants meeting and exposition, Toronto, (1987).
- [39] Ibrahim E.A, Yang H.Q, Prezkwas A.J. Modeling of spray droplet deformation and break-up. *AIAA J.Propuls.Power*, Vol 9, 652–654, (1993).
- [40] Hug K.Y, Gosman .A.D. A phenomenological model of diesel spray atomization. In *Proc. Int Conf On Multiphase Flow*, 271-276, (1991).
- [41] Delhaye J.M. Pertes de pression dans les conduites et les singularités. CEA/INSTN, (1997).
- [42] Elkotb M.M.. Fuel atomization for spray modeling. *Prog.Energy Combust Sci.*, 8, 61–91, (1982).
- [43] Witlox H, Harper M, Bowen P, Cleary V. Flashing liquid jets and two-phase droplet dispersion ii. comparaison and validation of droplet size and rainout formulations. *J.of.Hazardous Materials*, 142, 797–809, (2007).
- [44] Witlox H, Harper M, Oke A, Bowen P, Kay P. Sub-cooled and flashing jets and droplet dispersion i. overview and model implementation/validation. *J.of.Hazardous Materials*, 23, 831–842, (2010).
- [45] Borghi R. et CHAMPION M. Modélisation et théorie des flammes. Editions TECHNIP, (2000).
- [46] Bird B.R., Stewart E.W., Lighfoot N.E. *Transport Phenomena*, second edition. University of Wisconsin-Madison (John Wiley Sons, Inc), (1976).
- [47] Plumecocq W. Etude de l'interaction d'un système d'aspersion liquide avec l'atmosphère environnante. Université de provence, (Aix-Maraseille I / Mécanique énergétique), Thèse, (1997).
- [48] Mason B. *The physic of clouds*. Clarendon press, Oxford, (1971).
- [49] Yuen M.C., CHENL.W. Heat-Transfer measurements of evaporation liquid droplets. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 21, 537–542, (1978).
- [50] Sazhin S.S. Advanced models of fuel droplet heating and evaporation. *Progress in energy and combustion science*, 32, 162–214, (2006).
- [51] Carslaw H.S, Jaeger J.C. *Conduction of heat in solids*. Oxford, 200, (1948).
- [52] Clift R., Grace J.R., Weber M.E. *Bubbles, Drops, and Particles*. Academic Press, (1978).
- [53] Epstein M. Theory of scrubbing of volatile fission product vapour containing gas jet in a water pool. ANS winter meeting, november 11-16 Washington DC, (1990).
- [54] Chen C.J., Rodi W. Vertical turbulent buoyant jets. *The science and applications of heat and mass transfer*, 4 (Pergamon Press), (1980).
- [55] Ishii M., Zuber N. Drag coefficient and relative velocity in bubbly, droplet or particulate flows. *AIChE journal*, 25 n°3, (1979).

- [56] Plesset M.S., Zwick S.A. The growth of vapor bubbles in superheated liquid. *J. Appl. Phys*, 25, 493–500, (1954).
- [57] Forster H.K., Zuber N. Growth of vapor bubbles in superheated liquid. *J. Appl. Phys*, 25, 474–478, (1954).
- [58] Dergarabedian P. The rate of growth of vapor bubbles in superheated water (Thesis). California institute of technology, (Pasadena), (1952).
- [59] Scriven L.E. On the dynamics of phase growth. *Chem. Eng. Sci.*, 10, 1–13, (1959).
- [60] Lee H.S., Merte H. Spherical vapor bubble growth in uniformly superheated liquids. I. *J. Heat and Mass transfer.*, 39, 2427–2447, (1996).
- [61] Senda J., Hojyo Y., Fujimoto H.. Modeling on atomization and vaporization process in flash boiling spray. *JSAE Review*, 15, 291–296, (1994).
- [62] Razzaghi M. Droplet size estimation of two-phase flashing jets. *Nuclear Engineering and Design*, 114, 115–124, (1989).
- [63] Zeng Y, Lee C.F. Modeling droplet breakup processes under micro-explosion conditions. *Proceeding of the Combustion Institute*, 31, 2185–2193, (2007).
- [64] Moneeb H.A, Salmawy H, El-Kholy A.H, Shebl K.M, El-Lathy A.R. Computational and experimental study for droplet behavior under flashing condition. Tenth international congress of fluid dynamics, ICFD10-EG-3153, (2010).
- [65] Plesset M.S, Whipple C.G. Viscous effects in rayleigh-taylor instability. *The Physics of Fluids*, 17, 1–7, (1974)No.1.
- [66] Shen C, Cheng W.L, Wang K, Lee C.F. Estimating the secondary droplet size distribution after micro-explosion of bio-fuel droplets. *ILASS-Americas 22nd Annual conference on liquid atomization and spray systems*, Cincinnati, (May 2010).
- [67] DURBIN.W.G.. Droplet sampling in cumulus clouds. *Meteorological research flight*, (1958).
- [68] Tigeras A. Fuel failure detection, characterization and modelling : effect on radionuclide in pwr primary coolant, ph.d. Thesis, Polytechnic University of Madrid and Paris XI University, May 2009, (2009).
- [69] Lewis B.J, Iglesias F.C, Postma A.K, Steininger D.A. Iodine spiking model for pressurized water reactor. *Journal of nuclear materials*, 244, 153–167, (1997).
- [70] Philippot M. Etude des pics d'iode consécutifs à des transitoires de puissance. *Rapport interne (IRSN)*, (2013).
- [71] Lin C.C. Chemical behaviour of radioiodine in bwr systems. *J.Inorg.Nucl.Chem.*, 42, 1093–1099, (1980).
- [72] Martucci J.A. Iodine decontamination factors during pwr steam generation and steam venting. *Nuclear Safety*, 90, 23–33, (1973).
- [73] Tigeras A, Bachet M, Catalette H, Simoni E. Pwr iodine speciation and behaviour under normal primary coolant conditions : An analysis of thermodynamic calculations, sensibility evaluation and npp feedback. *Progress in Nuclear Energy*, 53, 504–515, (2011).

- [74] Castelman A.W, Tang I.N, Munkelwitz H.R. JINC, 30, 5, (1968).
- [75] Mandler J.W. In plant source term measurement at prairie island nuclear generation station. NUREG/CR-4397, (1985).
- [76] Voillequé P.G. Measurements of radioiodine species in samples of pressurized water reactor coolant. Nuclear Technology, 90, 23–33, (1990).
- [77] Swiatla W.D., Buxton G.V. Modeling of radiation spur processes in water at temperature up to 300°C. J. Phys. Chem., 99, 11464–11471, (1995).
- [78] Elliot A.J, Chenier M.P, Ouellette D.C. Temperature dependence of g values of h_2o and d_2o irradiated with low linear energy transfer radiation. J. Chem. Soc. Faraday Trans., 89, 197, (1993).
- [79] Buxton G.V. High temperature water radiolysis. Radiation Chemistry, The School of Chemistry, University of Leeds, Leeds LS2 9JT, UK, (2001).
- [80] Hentz R.R, Milener D.J FARHATAZIZ, Burton M. Gamma radiolysis of liquids at high pressure (i, iii, iv and v). J. Chem. Phys., 46, I(2995–3000), III(374–377), IV(4865–4867) and V(5381–5384), (1967).
- [81] Buxton G.V, FARHATAZIZ, Rogers M.A. Radiation chemistry of the liquid state : (1) water and homogeneous solutions. in Radiation Chemistry, Principales and applications (VCH Publishers, N.Y), 46, 321–349, (1987).
- [82] Cantrel L, Guilbert S, Raison P, Herranz L, Dickinson S, Hervouet C. Radiolytic oxidation of iodide in containment : Current status. EMSAR Conference, Aix en provence, (2005).
- [83] Sanders R. Compilation of henry's law constants for inorganic and organic species of potential importance in environmental chemistry. Version 3, <http://www.mpch-mainz.mpg.de/sander/res/henry.html>, (1999).
- [84] Palmer D.A, Ramette R.W, Mesmer R.E. The hydrolysis of iodine : Equilibria at high temperatures. J. Nucl. Mater., 130, 280–286, (1985).
- [85] Cartan F.O, Beard H.R, Duce F.A, Keller J.H. Evidence for the existence of hypoiodous acid as a volatile iodine species produced in water-air mixtures. 10th AEC IAr Cleaning Conference CONF-68821, 342-349, New-York, (1968).
- [86] Vinson J.M. Hydrolyse et transfert de l'iode dans l'enceinte des réacteurs à eau légère. IPSN/DSN/SRS/SESTR 78/03, IPSN/CEA, (1978).
- [87] Lin C.C. Volatility of iodine in dilute aqueous solutions. J. Inorg. Nucl. Chem., 43(12), 3229–3238, (1981).
- [88] Furrer M, Cripps R.C. Measurement of the iodine partition coefficient. Nucl.Tech., 70, 290–293, (1985).
- [89] Harrell J.R, Lutz J.B, Kelly J.L. On the volatility and disproportionation of hypoiodous acid. J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters 127(1), 13–20, (1988).
- [90] Cantrel L. Measurement of the iodine partition coefficient. These Université Marseille III, (1997).

- [91] Nirmalakhandan N.N, Speece R.E. Qsar model for predicting henry's constant. *Environ. Sci. Technol.*, 22, 1349–1357, (1988).
- [92] W.M MEYLAN, P.H HOWARD. Bond contribution method for estimating henry's law constant. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 10, 1283–1293, (1991).
- [93] Soetens J.C, Millot C, Chipot C, Jansen G, Angyán J.G, Maigret B. Effect of polarizability on the potential of mean force of two cations. the guanidinium-guanidinium ion pair in water. *J. Phys. Chem. B*, 101, 10910–10917, (1997).
- [94] Taylor R.S, Shields R.L. Molecular-dynamics simulations of the ethanol liquid-vapor interface. *J. Chem. Phys.*, 119, 12569–12576, (2003).
- [95] Shivakumar D. et AL. Prediction of absolute solvation free energies using molecular dynamics free energy perturbation and the opl force field. *J. Chem. Theory Chem*, 6, 1509–1519, (2010).
- [96] Zwanzig R.W. High-temperature equation of state by a perturbation method. i. nonpolar gases. *J. Chem. Phys.*, 22, 1420–1426, (1954).
- [97] Cantrel L. Measurement of the iodine partition coefficient. HDR Université de Lille 1, (2012).
- [98] Swope W. C, Andersen H. C, Berens P. H, Wilson K. R. A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules : Application to small water clusters. *J. Chem. Phys.*, 76, 637–649, (1982).
- [99] J WANG, Wolf R. M, Caldwell J. W, Kollman P. A, Case D.A. Development and testing of a general amber force field. *J. Comput. Chem.*, 25, 1157–1174, (2004).
- [100] Berendsen H.J.C, Grigera J.R, Straatsma T.P. The missing term in effective pair potentials. *J. Phys. Chem.*, 91, 6269–6271, (1987).
- [101] Rapport interne. SEPTEN EDF, (2005).
- [102] Tsilanizara A., DIOP. Darwin : An evolution code system for a large range of applications. *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, Supplement 1, 845–849, March (2000).
- [103] Cantrel L. Rejet de produits de fission dans le cas d'un accident de dimensionnement de type rtgv. Rapport interne (IRSN), (2009).
- [104] Bailey A.G., Balachandran W., Williams T.J. The Rosin-Rammler size distribution for liquid ensembles. *J. Aerosol Sci.*, 14, 39–46, (1983).
- [105] Layly V.D. Modélisation d'un jet diphasique et relaxation cinétique des gouttes. Non publié, (2013).
- [106] Kotsovinos N.E., Angelidis P.B.. The momentum flux in turbulent submerged jets. *Journal of Fluid Mechanics*, 229, 453–470, (1991).