

# Les recherches sous hautes pressions et leurs applications dans l'industrie belge<sup>(\*)</sup>

C.D.U. 001 S : 539.893.004.14.66 (493)

par LOUIS DEFFET D<sup>r</sup> Sc.,  
Directeur de l'Institut Belge des Hautes Pressions  
Sterrebeek

*L'I.B.H.P. réalise des travaux orientés vers des applications industrielles, dont le comportement élastique et plastique sous pression de cylindres d'acier; la corrosion des aciers par l'hydrogène et l'hydrogène sulfuré; l'amélioration des manomètres; la thermodynamique des gaz industriels; des réactions chimiques diverses en milieux gazeux et liquide; la solubilité des solides dans les liquides. Ces recherches se réalisent sous des pressions atteignant 5.000 kg/cm<sup>2</sup> et des températures de l'ordre de 850 °C.*

*De door het Belgisch Instituut voor Hoge Drukken uitgevoerde werken zijn gericht op industriële toepassingen en omvatten de elastische en plastische gedragingen van stalen cylinders onder druk; de corrosie van staal door waterstof en zwavelwaterstof; het verbeteren van manometers; de thermodynamica van nijverheidsgassen; allerlei scheikundige inwerkingen van gassen en vloeistoffen; de oplosbaarheid van vaste stoffen in vloeistoffen. Deze opzoekingen worden uitgevoerd onder druk gaande tot 5.000 kg/cm<sup>2</sup> en temperaturen tot 850 °C.*

## Introduction.

« Le rôle de la pression dans les fabrications chimiques, bien que relativement plus récent que celui de la température, n'en revêt pas moins aujourd'hui une importance du même ordre. En fait, notre industrie lui doit beaucoup de progrès révolutionnaires, en matière de synthèse et de production de masse, qui marquent son histoire depuis le début du siècle». Ainsi débute un de ces remarquables éditoriaux du Professeur L. Jacqué qui animent chaque mois la revue « Chimie et Industrie ».

En Belgique, autant sinon plus qu'à l'étranger, l'industrie chimique a fait appel, depuis longtemps déjà, aux hautes pressions pour valoriser et étendre ses productions : aussi, le rappel des applications les plus importantes fait dans cet éditorial s'applique-t-il aussi bien à notre pays qu'à la France.

Mais l'évolution constante des techniques oblige l'industrie belge à de très grands efforts pour se maintenir au niveau international. L'Institut Belge des Hautes Pressions s'efforce de lui apporter une aide efficace, quoique forcément assez restreinte, dans l'étude et la solution de ses nouveaux problèmes.

Le but de cet exposé est de montrer comment et avec quels moyens cet organisme remplit cette tâche, toujours difficile, mais souvent exaltante.

Des pays comme la Belgique ne possèdent pas, ainsi que certains de leurs grands voisins, et surtout les U. S. A.,

(\*) Traduction (partielle) d'une communication au « Symposium on High Pressure ». Fifty-Eighth Annual Meeting of the American Institute of Chemical Engineers, Philadelphia, 5-9, December 1965.

de grands budgets de recherche : de ce fait, les laboratoires spécialisés doivent, avant d'opter pour une direction de travail et de proposer — ou d'accepter — des sujets de recherche, être extrêmement bien qualifiés parce que moins le budget de travail est élevé, plus difficile et étroite est la voie à suivre pour atteindre les résultats souhaités.

Le rappel de ces quelques notions banales n'a d'autre but que de préparer une réponse à la question qui se posera certainement chez les auditeurs : pourquoi un Institut d'une envergure aussi modérée réalise-t-il des recherches dans d'aussi nombreux domaines, plutôt que de choisir une seule spécialité ? Aussi paradoxal que cela puisse paraître, c'est précisément le fait que des recherches sous pressions élevées doivent, en Belgique, servir à de nombreux autres laboratoires que cette apparente dispersion a été nécessaire.

Mais seul l'exposé même des résultats acquis pourra montrer que cette diversité des recherches a été bénéfique.

## I. TRAVAUX SUR L'ELASTICITE ET LA PLASTICITE DES METAUX ET DES ACIERS.

### A. Comportement sous pression de cylindres à parois épaisses.

#### 1. AVANT-PROPOS.

Lors de l'examen des circonstances qui font franchir les limites du domaine des déformations élastiques ou qui provoquent la rupture de cylindres à parois épaisses, nous avons observé un phénomène peu connu et très imparfaitement décrit jusqu'à présent : l'influence sur ces circonstances de l'épaisseur relative des parois.

En effet, indépendamment de diverses constatations qui n'avaient pas encore été faites, ou qui demandaient confirmation (début des ruptures à l'intrados, commencement de la rupture à caractère ductile, valeurs de la pression de fin du domaine élastique) nous avons observé l'existence d'une certaine valeur relative critique, pour le rapport du diamètre extérieur des cylindres à son diamètre intérieur.

Ceci est un fait expérimental dont la cause n'a pu encore être trouvée et qui méritait une analyse poussée, car ses incidences techniques peuvent être sensibles, puisqu'il avait été observé qu'un tube épais ne résiste pas nécessairement mieux qu'un tube plus mince et que pour certains aciers, la résistance des tubes à la pression décroît à partir d'une certaine épaisseur critique de la paroi. Ainsi si l'on prend des cylindres dont le rapport des diamètres extérieur et intérieur reste constant, et dans le cas étudié égal à 2,2, et que l'on augmente respectivement ces diamètres, l'épaisseur de la paroi augmente également. A partir d'une certaine épaisseur, on voit diminuer la limite d'élasticité, enregistrée à l'extérieur du cylindre au moyen d'extensomètres électriques, et aussi la pression de rupture. Les valeurs suivantes déterminées sur des cylindres tirés d'un acier demi-doux sont extrêmement caractéristiques à cet égard (Tableau 1).

De telles observations n'avaient jamais été décrites : toutefois d'autres chercheurs avaient, en cours de réalisations et d'essais d'appareils à haute pression, observé des ruptures

TABLEAU 1

Température °C	Diamètre (mm)		Pression en kg/cm <sup>2</sup>	
	intérieur	extérieur	Début de plasticité	Rupture
20	17,5	38,5	1 750	4 000
	20	44	1 850	4 100
	20	44	1 850	4 200
	23	50,6	1 550	3 700
	23	50,6	1 350	3 800
30	17,5	38,5	1 850	4 800
	17,5	38,5	1 750	4 800
	20	44	1 850	4 800
	23	50,6	1 450	3 700
	38,6	85	1 300	3 200
	45,3	99,7	900	2 500
50	17,5	38,5	1 900	4 600
	20	44	1 850	4 900
	23	50,6	1 450	3 600
200	17,5	38,5	1 900	4 700
	17,5	38,5	1 850	4 700
	20	44	1 450	4 900
	20	44	1 550	4 900
	23	50,6	1 650	4 600
	23	50,6	1 450	4 900

que le calcul et les expériences antérieures ne laissaient pas prévoir. Les raisons en furent rarement recherchées en dehors de causes accidentelles et l'effet d'échelle ne paraît jamais avoir été mis bien en évidence (1, 2).

Nos recherches cependant n'ayant pas comme but principal la résistance des matériaux, cet aspect particulier du problème des cylindres à parois épaisses n'a pas fait à ce moment l'objet d'études plus poussées

Après la publication de ces résultats, cette question fut discutée en diverses circonstances et il fut décidé en 1960 de créer une « Commission pour l'étude des cylindres à parois épaisses » qui, en 1962, fut placée sous la présidence du Professeur H. Louis.

Cette Commission arriva à la conclusion que :

1° il était utile de poursuivre les recherches entamées précédemment sur les cylindres à parois épaisses, mais en s'efforçant de déterminer au mieux toutes données expérimentales, c'est-à-dire en affinant les mesures et en s'entourant de toutes les précautions nécessaires, quant à l'usinage des éprouvettes;

2° il existait un problème beaucoup plus général, celui de discerner les circonstances mêmes qui provoquent la rupture de l'acier sollicité en état triaxé, circonstances qui ajouteraient à notre compréhension du phénomène de la rupture de l'acier, état aussi bien monoaxé que biaxé et triaxé. Ce qui conduit à considérer que le problème général de la rupture peut être étudié sur des éprouvettes tubulaires, qui semblent être la forme la plus simple qui soit dans ce domaine.

Il en résulterait que si le problème de l'effet d'échelle présentait assurément un intérêt à être étudié plus avant, il existait un autre problème non moins intéressant, celui de l'emploi éventuel d'éprouvettes tubulaires pour l'examen des problèmes généraux de la rupture des aciers.

## 2. PROGRAMME DES RECHERCHES.

Le programme prévu pour le premier stade des recherches (octobre 1960 à fin décembre 1961) s'est partagé en des travaux expérimentaux réalisés dans les laboratoires de l'I. B. H. P., en leur examen théorique par les chercheurs du C. N. R. M. et en l'exploitation de ces résultats.

Le second stade de ces travaux a débuté en 1962 et se terminera en 1966. Les expériences ont été réalisées suivant les mêmes méthodes que celles qui furent employées au cours de travaux antérieurs, ces méthodes résidant essentiellement à étudier le comportement d'éprouvettes cylindriques à parois épaisses sous l'effet de pressions hydrauliques intérieures, afin de dégager au mieux les relations entre ces pressions d'une part et d'autre part, les limites d'élasticité et les taux de rupture en traction pure des aciers soumis à ces efforts.

Afin d'atteindre des résultats incontestables, les règles suivantes ont été observées :

- Pour chaque type d'acier à examiner, les éprouvettes ont été strictement choisies dans un même lot, afin d'obvier aux erreurs éventuelles pouvant provenir de légères différences de qualités entre les éprouvettes.

- b. Les éprouvettes cylindriques ont été usinées avec grand soin et ont subi un traitement thermique léger et bien défini après usinage. Leur longueur était égale à environ quatre diamètres extérieurs, les rapports des diamètres intérieur et extérieur étant de 1,5 et de 2.
- c. Les mesures des déformations ont été faites à l'extrados et, dans certains cas à l'intrados, au moyen d'un appareillage permettant des mesures de déformations en dix points, par straingages à la sensibilité de 1 millionième (soit 1 micro-déformation).
- d. Les mesures de pression ont été faites par balance manométrique à la précision du 0,5 millièm.

L'étude a porté essentiellement sur la détermination, pour les divers aciers, de l'effet dimensionnel de l'épaisseur des parois sur les circonstances de franchissement des limites des déformations élastiques et sur les circonstances de rupture. Dans ce but on a fait varier :

- a) le rapport du diamètre intérieur au diamètre extérieur (rapport  $k$ ).
- b) l'épaisseur des parois en conservant ce rapport  $k$  constant.

### 3. RECHERCHES EXPERIMENTALES. (\*).

#### a. Mesures globales.

Les essais effectués jusqu'à présent ont porté sur un acier doux et un acier demi-dur. Ils ont examiné différents rapports diamètre extérieur/diamètre intérieur ( $d_e/d_i = k$ ), et pour chacun de ces rapports différentes épaisseurs de paroi. Des essais ont été faits à la température ambiante, et à différentes températures inférieures à l'ambiance :  $-20$ ,  $-40$ ,  $-60$  et  $-80$  °C. On a déterminé dans ces essais la pression à laquelle la déformation plastique atteint l'extrados ( $p_e$ ), ainsi que la pression maximale supportée par l'éprouvette avant rupture ( $p_m$ ). Les résultats obtenus par ces essais sont groupés dans les fig. 1 à 3. Les trois premières figures montrent l'influence de l'épaisseur de la paroi à la température ambiante et à  $-80$  °C, pour des cylindres de rapport  $k = 2$  et  $k = 1,5$ . La fig. 1 montre l'influence de la température pour un acier demi-dur de rapport  $k = 2$  et de 8 mm d'épaisseur de paroi. On observe sur la fig. 2 qu'il existe un effet d'échelle pour l'acier doux, en ce sens que la pression  $p_e$ , de même que la pression  $p_m$  décroissent légèrement quand on augmente l'épaisseur de la paroi. Dans l'acier demi-dur, la pression  $p_e$  varie dans le même sens, mais  $p_m$  varie en sens inverse, c'est-à-dire qu'elle augmente avec l'épaisseur de la paroi. La fig. 3 montre un effet d'échelle sans anomalie pour les cylindres de rapport  $k = 1,5$ .

#### b. Mesures de déformation.

1. Chaque cylindre expérimenté avait été muni d'un certain nombre de jauges de contrainte, collées à sa surface extérieure, de manière à permettre la mesure des déformations circonférentielle et longitudinale à tout instant de l'essai.

(\*) Texte repris d'une étude de M. J. Gouzou (3).

On a étudié la variation de la déformation circonférentielle avec la pression, pour la première série de cylindres en acier doux de rapports  $k = 2$ . Cette étude avait principalement pour but d'examiner s'il était possible de détecter le début des déformations plastiques à l'intrados en se basant uniquement sur des mesures de déformation à l'extrados. On a comparé les déformations calculées théoriquement pour l'extrados, dans l'hypothèse d'une déformation plastique progressant par couches concentriques, selon le schéma de la fig. 4, avec les déformations mesurées dans le cas particulier du cylindre pour lequel les données expérimentales étaient les plus nombreuses. Cette comparaison montre que l'hypothèse d'une déformation plastique par couches concentriques conduit à des déformations nettement plus faibles que les déformations réelles (environ 50 fois plus petites). Ce résultat suggère que la déformation réelle ne se fait pas par couches concentriques, mais plutôt par des déformations plus localisées et de plus grande amplitude, relevant du même mécanisme que les bandes de Lüders de l'essai de traction, selon le schéma de la fig. 5.

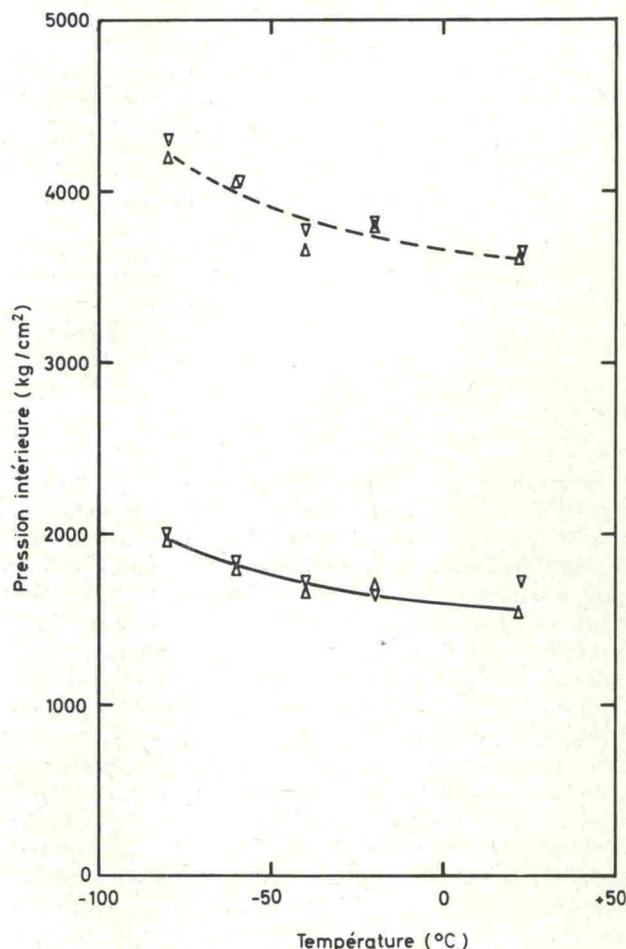


Fig. 1. — Essais à différentes températures sur cylindres de rapport  $k = 2$ , avec  $d_i = 16$  mm,  $d_e = 32$  mm - Acier demi dur  
 △ 1<sup>re</sup> série d'essais      ▽ 2<sup>e</sup> série d'essais  
 ———— Pression correspondant à la plasticité complète.  
 - - - - - Pression maxima supportée par le cylindre avant rupture.

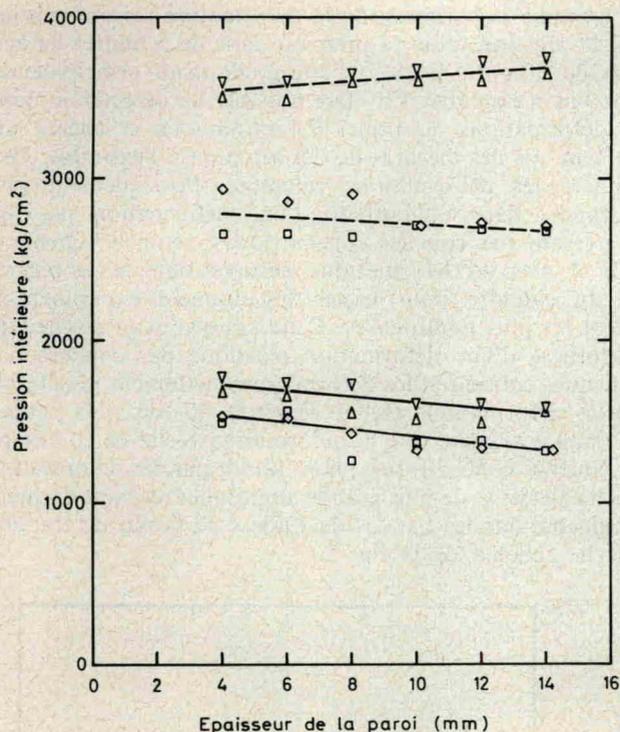


Fig. 2. — Essais à la température ambiante sur cylindres de rapport  $k = 2$ .

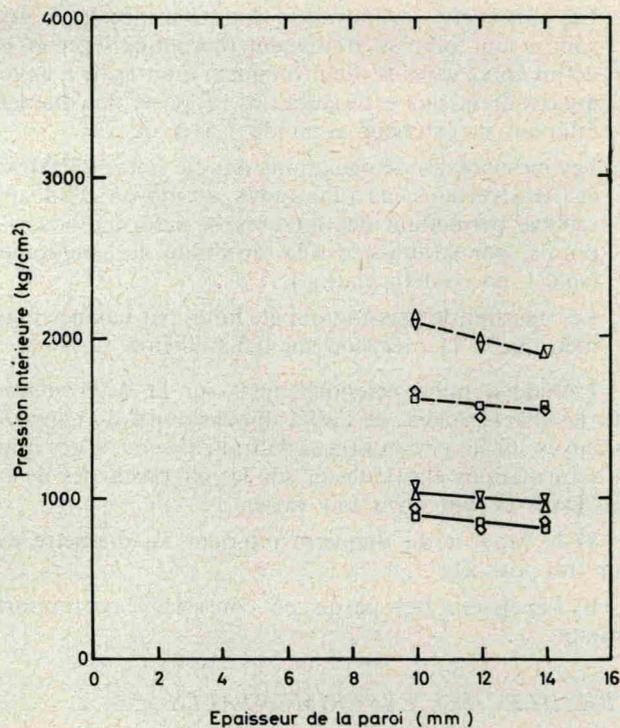


Fig. 3. — Essais à la température ambiante sur cylindres de rapport  $k = 1,5$

Acier doux : □ 1<sup>re</sup> série d'essais ◇ 2<sup>e</sup> série d'essais  
 Acier demi-dur : △ 1<sup>re</sup> série d'essais ▽ 2<sup>e</sup> série d'essais  
 ———— Pression correspondant à la plasticité complète  
 - - - - - Pression maxima supportée par le cylindre avant rupture.

Le problème de l'effet d'échelle se rattache donc à la progression de ces bandes déformées plastiquement. Dans l'essai de traction, l'état de contraintes est le même en tout point de l'éprouvette et la croissance des bandes de Lüders s'opère à tension constante sans difficultés. Dans le cylindre sollicité par une pression inférieure, au contraire, l'état de contraintes se modifie de manière continue quand on passe de l'intrados à l'extrados. Une bande de Lüders qui s'amorce à l'intrados et qui tend à se propager vers l'extrados rencontre donc, au cours de sa progression, des états de contraintes de moins en moins favorables à cette progression et elle est rapidement arrêtée. Elle ne pourra poursuivre son avance qu'après une augmentation de la pression intérieure. Ce freinage des bandes de Lüders par l'état de contraintes des couches extérieures du cylindre pourrait donner une explication de l'effet d'échelle observé dans la mise en plasticité. On remarque en effet que dans deux cylindres géométriquement semblables soumis à la même pression intérieure, le gradient de contraintes est plus élevé dans le petit cylindre. On peut donc raisonnablement s'attendre à ce que la propagation des bandes de Lüders soit mieux freinée dans ce cylindre, et qu'il soit donc nécessaire d'appliquer une pression plus élevée pour obtenir la mise en plasticité complète.

2. Les mesures de déformation effectuées sur la première série de cylindres en acier doux de rapport  $k = 2$  ont donc montré qu'il était possible d'obtenir des informations intéressantes en utilisant les mesures de déformation à l'extrados.

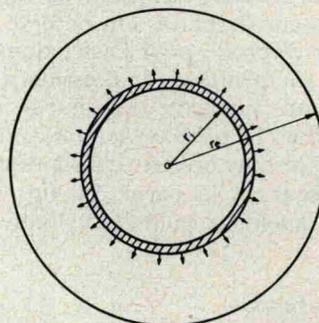


Fig. 4. — Progression de la déformation plastique de l'intrados vers l'extrados par couches concentriques.

Tenant compte de cette possibilité on a effectué des mesures de déformation plus nombreuses, qu'on a exploitées systématiquement en rapportant chaque fois la déformation

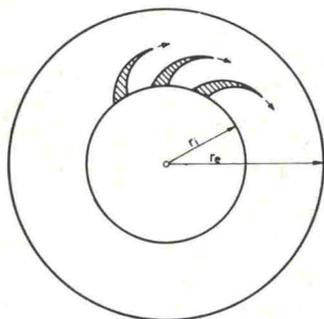


Fig. 5. — Progression de la déformation de l'intrados vers l'extrados par des déformations plastiques localisées.

mesurée à la pression régnant à cet instant dans le cylindre, et en portant en graphique le rapport ainsi obtenu. Aussi longtemps que les déformations restent purement élastiques dans tout le cylindre, le rapport de la déformation à la pression inférieure doit rester constant. On a donc, par les variations de ce rapport, la possibilité de déceler tout comportement anélastique ou plastique des cylindres.

### c. Interprétation des résultats.

En résumé, on observe dans tous les cylindres examinés, un comportement anélastique qui apparaît pour des pressions inférieures au franchissement de la limite élastique à l'intrados. Lorsqu'on compare entre eux différents cylindres géométriquement semblables, on observe que l'allure de ce comportement anélastique se modifie avec l'épaisseur de la paroi. Les différences ainsi mises en évidence entre des cylindres de même rapport  $k$  suggèrent que les déformations anélastiques observées sont liées à l'effet d'échelle de la mise en plasticité. Il est très vraisemblable, d'autre part, que le comportement anélastique du cylindre est dû, en fait, à des microdéformations, phénomène étudié actuellement au C. N. R. M. dans le cas de la traction monoaxée, et attribuée à de faibles déplacements des dislocations par rapport à leur nuage de Cottrell.

d. A cette étude a été adjointe une recherche de conception plus technologique mais dont les résultats seront interprétés grâce aux résultats déjà acquis et ceux qui seront obtenus à la suite des examens sur éprouvettes lisses.

Au cours de cette étude, on se propose d'étudier le phénomène de transition sur un seul type d'éprouvette cylindrique entaillée, en somme d'une variante de l'éprouvette Mesnager. On attachera son attention principalement au phénomène de rupture, mais une étude extensométrique de l'éprouvette sera faite, dans certains cas, à titre complémentaire.

Le but des essais est de classer les aciers d'après leur température de transition sur des éprouvettes cylindriques, ce qui n'a jamais été réalisé.

Les résultats de l'ensemble de ces essais apporteront des renseignements vraiment utiles aux constructeurs. En effet, le développement des appareils sous pression dépend de la bonne connaissance de la mise en plasticité et de la rupture.

Or, les critères utilisés jusqu'à présent ne tiennent pas compte du gradient des contraintes et devraient être améliorés. En outre, la fragilité aux basses températures est un point important à connaître aussi bien pour les constructeurs d'appareillages cylindriques que pour les constructeurs en général.

A titre d'exemple d'une série d'essais en cours; le tableau 2 indique les valeurs obtenues pour les températures de transition mesurées d'une part sur une éprouvette de résilience (Charpy V notch) et sur une éprouvette cylindrique portant le même type d'entaille.

TABLEAU 2

Température de l'essai °C	Pression de rupture kg/cm <sup>2</sup>	Structure fragile %
— 0	2 640	0
— 10	2 660	2
— 23	2 700	10
— 33	2 760	27
— 40	2 790	38
— 50	2 810	45
— 60	2 980	73
— 70	3 100	85

### B. Amélioration des manomètres.

Depuis plus de dix ans, nous réalisons les travaux sur les manomètres à membranes et à tubes métalliques afin d'en améliorer les qualités. Ces travaux, qui ont fait l'objet de nombreuses publications ont conduit d'abord à la suppression pratiquement totale du phénomène d'hystérésis, ensuite à la stabilité complète du zéro durant toute la durée d'emploi normal du manomètre. Conjointement à ces recherches, l'Institut Belge des Hautes Pressions a mis au point des méthodes précises de contrôle des manomètres, ce qui a conduit à l'établissement de normes et aussi à la possibilité d'octroi d'une marque de qualité pour les manomètres de différentes classes.

Mais, il restait cependant encore des recherches à faire sur d'autres types de manomètres, en particulier sur les manomètres pour l'industrie pétrolière, et aussi à tenter de réduire au maximum les modifications se produisant, au cours de leur usage, sur le mécanisme de manomètres normaux.

En effet, les manomètres pour l'industrie pétrolière sont soumis à des essais très sévères qui consistent à faire subir aux tubes un nombre extrêmement élevé de mises sous pression consécutives. Les normes américaines en fixaient les conditions, le nombre de cycles étant de 2.500.000. Il est

apparu, aussi bien aux Etats-Unis qu'au cours de nos essais, que ces normes étaient réellement trop sévères. Aussi avons-nous commencé l'étude d'une méthode d'essai dérivée de la méthode américaine, mais modifiée de façon à la rendre plus appropriée aux besoins de l'industrie pétrolière. Ces modifications n'ont cependant pas été entièrement satisfaisantes, le cycle d'essai n'ayant pu être défini de façon précise. Il en résulte que l'on observe des variations de la qualité du tube, ou même des ruptures, dans des conditions actuellement inexplicables.

Aussi, nous avons entamé, en collaboration avec l'industrie belge des manomètres une étude plus fondamentale sur les tubes manométriques.

Ce problème et son étude se présentent comme suit :

Les différentes formules théoriques de la déformation élastique des tubes manométriques se révèlent contradictoires, car la complexité des phénomènes oblige de recourir à des hypothèses simplificatrices, rendant chaque formule proposée d'application très limitée, sans pouvoir en définir les limites.

Il y a donc beaucoup d'intérêt à faire un grand nombre de mesures expérimentales que l'on essaiera de rassembler en une ou plusieurs formules permettant de prédéterminer les tubes les mieux appropriés aux problèmes techniques posés.

Un travail dans ce sens, semi-théorique, semi-empirique, a déjà été entrepris en Grande-Bretagne, mais ce travail est vraiment incomplet quant aux limites d'emploi de la formule trouvée. Les vérifications faites en dehors de la zone d'établissement de la formule ont révélé des erreurs inadmissibles.

Nous avons cependant repris partiellement cette méthode de travail pour orienter nos propres recherches, et nous avons mesuré et comparé de nombreux tubes manométriques classés en plusieurs groupes, pour lesquels les lois de déformation ne sont pas trop complexes.

1<sup>re</sup> catégorie : tubes de section elliptique ou proche de celle-ci.

2<sup>e</sup> catégorie : tubes de section ovale ou proche de celle-ci.

Dans chacune de ces catégories, nous avons séparé les sections de grandeur nettement différente : a) 17 × 8 mm; b) 12 × 4,5 mm; c) 7 × 3,5 mm.

Nous obtenons ainsi 6 classes dans lesquelles nous rangeons tous les types de tube. Dans chaque classe, avec le maximum de tubes, nous avons déterminé les quatre coefficients les plus adéquats à être introduits dans la formule proposée par l'auteur précité :

$$\varepsilon = K \frac{P}{E} \left( \frac{R}{B} \right)^m \left( \frac{A}{B} \right)^n \left( \frac{A}{t} \right)^p,$$

c'est-à-dire K, m, n et p; A, B, R, t fournissant certaines dimensions des tubes, p étant la pression et E le module d'élasticité du matériau.

Pour chaque tube on a déterminé :

- la levée Z, le rayon R<sub>0</sub>, l'angle  $\varnothing$  (permettant d'obtenir  $\varepsilon$ ), ainsi que l'angle  $\alpha$  de Z avec la tangente du tube;
- la forme de la section du tube par relevé optique des coordonnées sur une demi-section (symétrie par rapport à un axe vertical);
- le gonflement du petit axe pour une pression déterminée afin de séparer les tubes à forte déformation des tubes à faible déformation;
- le coefficient d'élasticité E (cette mesure a été faite sur quelques tubes seulement comme vérification de la constante E).

Pour chaque tube on a déterminé également :

- la courbe de premier déplacement de zéro (jusque 15 % de la course) en fonction de p;
- la courbe de deuxième déplacement de zéro (jusque 2 % de la course) en fonction de p;
- la force mécanique qui, appliquée à l'extrémité du tube suivant l'angle  $\alpha$ , produit la même déformation Z que la pression appliquée p. Cette dernière grandeur détermine le travail utile du tube lors de la déformation.

Les premières mesures expérimentales ont porté sur des tubes en bronze phosphoreux et en acier du type 150 × 17 × 8 à section elliptique dont les pressions nominales s'échelonnent de 0,8 à 800 kg/cm<sup>2</sup>. Chaque tube « Bourdon » subit un maximum de mesures afin de mieux pouvoir le classer après examen de tous les résultats. Pour ce faire nous relevons 30 mesures par tube « Bourdon » analysé. Ces différentes mesures comportent : la largeur et la hauteur du tube en trois endroits différents (base, milieu, extrémité), son épaisseur, le déplacement de l'extrémité du tube dans les deux axes, les gonflements et contractions du tube, les différents angles de rotation, toujours en fonction de la pression appliquée, le relevé de la trajectoire du tube, les variations des rayons de courbure en fonctionnement, la force mécanique appliquée à l'extrémité du tube nécessaire pour produire les mêmes déplacements que lors d'une sollicitation sous une pression, la valeur du module d'élasticité du matériau employé, le relevé de la forme de la section du tube.

La plupart des mesures sont faites à l'aide d'un banc optique, la précision de mesure étant de ± 2,5 microns. Les différents angles sont mesurés par l'intermédiaire d'un projecteur d'image : celui-ci projette sur papier l'image du tube agrandi à l'échelle 2/1. En pointant les différentes positions du tube, lorsque celui-ci est sollicité sous une pression contrôlée par balance manométrique, nous pouvons effectuer par la suite les différents tracés géométriques nécessaires au relevé des différents angles. Ce procédé permet d'obtenir une précision de lecture de 30 minutes.

Le relevé de la section des tubes se fait par photographie. Pour éviter toute aberration optique, l'impression des sections est obtenue par agrandissement du cliché.

Le coefficient de Young est obtenu par mesure de la flèche d'une barette encastrée d'un côté et sollicitée de

l'autre par une certaine force. La barette est prélevée dans le sens longitudinal du tube et en son milieu; la languette a une section rectangulaire ou triangulaire, selon l'épaisseur du tube, de  $70 \times 15$  mm. Les travaux de dépouillement des résultats effectués par les Ingénieurs de la Division Manomètres et de Thermomètres de la « Compagnie Générale des Conduites d'Eau », Liège, montrent déjà que la méthode sera d'une application générale et qu'elle permettra l'établissement d'une théorie nouvelle sur les tubes manométriques.

## II. RECHERCHES EN CHIMIE.

### A. Réactions chimiques de synthèse.

Depuis de nombreuses années l'Institut Belge des Hautes Pressions avait formulé le projet de réaliser des études dans le domaine des réactions chimiques. La section de thermodynamique expérimentale avait d'ailleurs été créée, non seulement pour mettre au point et appliquer des méthodes de mesures des grandeurs thermodynamiques diverses ainsi que nous l'exposerons au chapitre suivant, mais aussi pour préparer les travaux en chimie : ceux-ci furent cependant retardés par manque de bâtiments adéquats, les nouveaux laboratoires de l'Institut n'ayant été terminés qu'en avril 1963. Dès ce moment, tout fut mis en œuvre pour réaliser l'appareillage nécessaire à ces études, qui purent commencer en décembre de la même année. L'exposé du but de ces travaux a déjà été fait à diverses reprises et nous n'en reprendrons donc pas les détails (4).

Les directions vers lesquelles s'orientent ces études ont été fixées par les demandes d'industries belges et actuellement trois domaines principaux sont explorés :

Synthèses et polymérisations, à partir de substances organiques par action d'hydrogène, d'oxyde de carbone, d'éthylène par action d'hydrogène, d'oxyde de carbone, d'éthylène, de méthane.

Réalisation de complexes fluorés.

Polymérisations par oxo-synthèses.

Physique et chimie de l'acétylène.

De tels types de travaux se retrouvent d'ailleurs dans le programme des laboratoires étudiant l'influence des hautes pressions sur les réactions chimiques. Cependant, dans notre cas, le choix des réactions a été établi d'après les travaux déjà en cours dans quelques laboratoires d'industries belges et leurs résultats restent confidentiels, actuellement du moins. Il faut également prendre en considération que ce n'est pas en un peu plus d'une année que notre laboratoire aurait pu faire des études dignes déjà d'être publiées.

Les techniques employées permettent de réaliser des travaux même en milieux hautement corrosifs jusqu'à 3.000 atm environ, et  $400^\circ\text{C}$ . Les réacteurs varient en volume de  $250\text{ cm}^3$  à 5 litres; ils sont soit agités mécaniquement, soit munis d'agitateurs électromagnétiques.

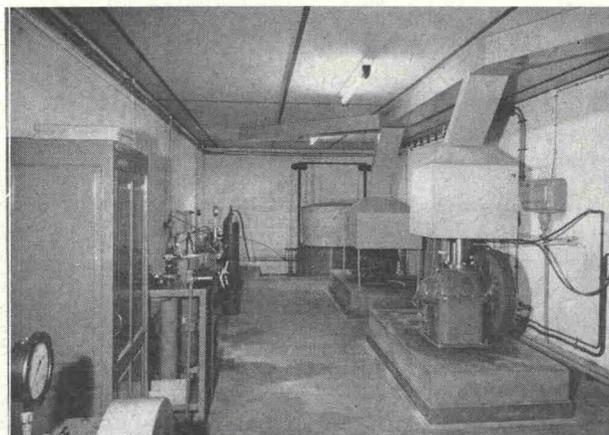


Photo 1

Les gaz réactionnels sont d'abord comprimés à 1.000 atm au moyen de compresseurs à membrane ou d'un compresseur à piston; ils sont ensuite, éventuellement comprimés jusqu'à 3.000 atm, au moyen de surpresseurs-séparateurs et conduits soit directement vers les réacteurs, soit conservés dans des récipients d'attente. Les pressions, ainsi que les températures intérieures des réacteurs, sont enregistrées par des méthodes classiques.

Les réacteurs, surpresseurs et récipients spéciaux sont situés dans des cabines blindées adéquates, elles-mêmes étant dans un bâtiment à murs particulièrement épais. Les photographies (1) et (2) montrent la salle des compresseurs, ainsi que l'extérieur de deux cabines blindées, avec leur appareillage.

Cette nouvelle section est déjà en voie de développement suivant les demandes de l'industrie : il est certain que, de ce fait, les études qui y sont faites pourront dans un avenir assez proche faire l'objet de publications, non seulement sur les nouveautés techniques mais surtout sur les résultats des travaux chimiques en cours.

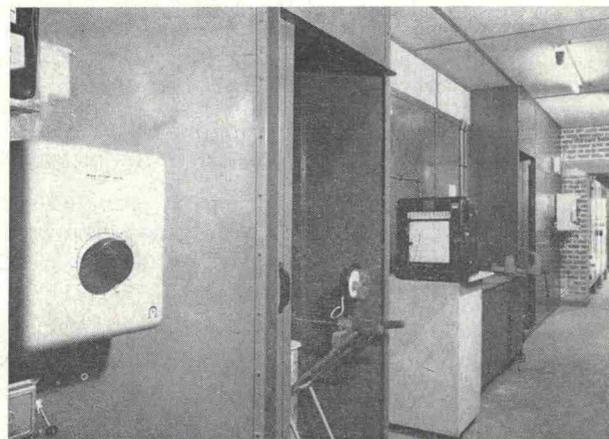


Photo 2

## B. Corrosion des aciers par l'hydrogène et l'hydrogène sulfuré sous pression.

Il n'est guère nécessaire d'insister sur l'intérêt du problème de la tenue des métaux et alliages à l'hydrogène à haute température et sous pression élevée.

Nombreux sont les cycles réactionnels courants aujourd'hui dans l'industrie chimique dont l'économie postule la mise à la disposition des spécialistes du génie chimique, de métaux susceptibles de présenter dans des conditions précises, le maximum de sécurité de mise en œuvre tout en limitant le taux des additions coûteuses qui pourraient y être incorporées.

Les alliages ferreux étant dans la gamme des matériaux susceptibles d'être utilisés, ceux-ci permettant la plus heureuse combinaison possible entre les caractéristiques de résistance et de ductibilité tant à la température ambiante qu'à température élevée, il est normal que les sidérurgistes se soient depuis longtemps déjà intéressés à cette question.

La S. A. des Usines E. Henricot a entamé en collaboration avec l'I. B. H. P. et ce dès 1956, une importante étude sur ce problème, sous la direction et avec l'éminent concours de M. R. Berger, Directeur scientifique de cette Société.

Des résultats extrêmement intéressants et utiles ont été obtenus sur une vingtaine d'aciers, étudiés sous une pression d'hydrogène de  $1.000 \text{ kg/cm}^2$ , pendant 1.000 heures et des températures s'étalant de  $550^\circ$  à  $700^\circ \text{C}$ . (\*)

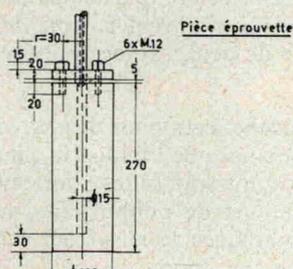


Fig. 6

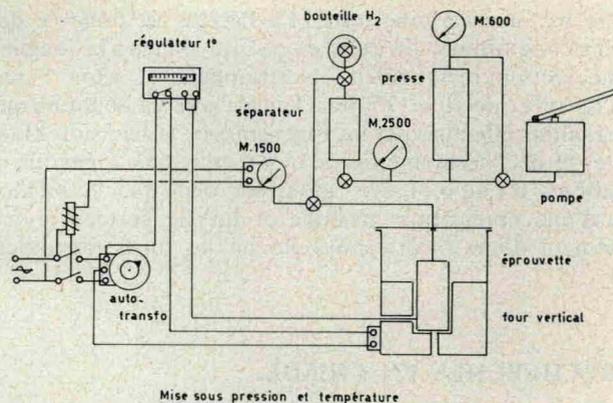
La partie expérimentale a été effectuée par notre Institut, tandis que l'étude complète de la tenue des aciers a été faite dans les laboratoires des Usines E. Henricot.

L'exposé de cette étude sera faite par M. R. Berger au XXXVI<sup>e</sup> Congrès International de Chimie Industrielle.

Une recherche similaire, actuellement en cours, porte sur la corrosion des aciers par l'hydrogène sulfuré sec et contenant 5 % d'eau, des techniques semblables à celles utilisées pour l'hydrogène étant employées.

Nous avons cependant dû mettre au point un procédé de compression de l'hydrogène sulfuré jusqu'à  $1.500 \text{ kg/cm}^2$  avant de procéder aux essais proprement dits. Ceux-ci ont

(\*) Le dispositif expérimental est donné dans les fig. 6 et 7 et se comprend aisément sans autre explication.



Mise sous pression et température

Fig. 7

commencé en 1964 et portent sur diverses nuances d'acier. Les données expérimentales sont cependant trop peu nombreuses pour que l'on puisse déjà fournir des résultats significatifs.

## III. RECHERCHES SUR LES PROPRIETES THERMODYNAMIQUES DES GAZ.

Durant plusieurs années, nous avons réalisé l'étude des propriétés thermodynamiques des gaz utilisés dans l'industrie, et plus spécialement des compressibilités, des chaleurs spécifiques et des viscosités.

Ce travail fut une étude fondamentale de telle sorte que dans cet exposé seuls seront retenus les aspects intéressants à l'industrie.

La vitesse des réactions chimiques, les vitesses de réaction et leurs constantes d'équilibres ne peuvent être calculées qu'à partir de données thermodynamiques précises. Or, de telles données manquent presque totalement pour des réactions en phase gazeuse pour des pressions dépassant 1.000 atmosphères.

C'est pourquoi l'I. R. S. I. A. a subsidié généreusement l'I. B. H. P. pour la réalisation d'un laboratoire spécialisé dans l'étude de la thermodynamique expérimentale des gaz sous hautes pressions.

Les équations d'état des gaz se situent parmi les grandeurs thermodynamiques les plus importantes à définir : en effet, à partir de ces données établies soit sur des constituants purs, soit sur leurs mélanges à l'équilibre, on peut déduire l'influence de la pression sur l'équilibre chimique de la réaction considérée. Ainsi, la méthode de calcul dite du « diagramme synoptique », basée sur la connaissance de la chaleur spécifique des gaz aux conditions normales, et de la variation de leurs entropies et enthalpies en fonction de la pression, nécessite pour ces dernières la détermination de l'équation d'état de ces gaz.

De telles mesures sont longues, difficiles et coûteuses : elles ne paraissent indispensables que pour des réactions déjà

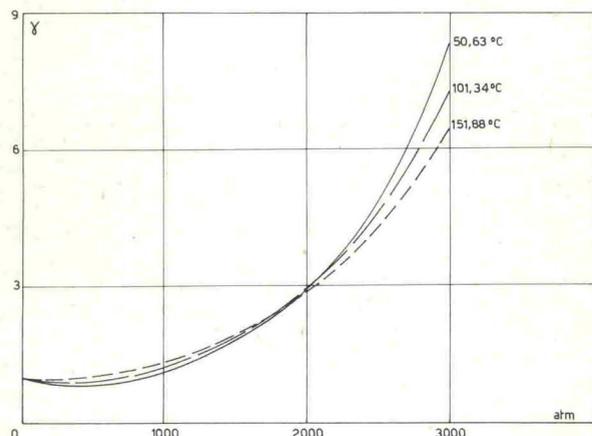


Fig. 8

réalisées dans l'industrie, mais dont on souhaite améliorer le rendement par une meilleure connaissance de leurs constantes d'équilibre sous pressions élevées.

Comme exemples de tels cas, on peut citer la synthèse de l'ammoniac et de nombreuses réactions dont la base est le méthane. Ceci justifie le choix des gaz que nous avons étudiés : le mélange stoechiométrique  $N_2 + 3 H_2$  et le méthane qui a fait l'objet d'une communication au Third Symposium on Thermophysical Properties, à la Purdue University en mars 1965.

La détermination de telles grandeurs soulève cependant de telles difficultés techniques que très peu de laboratoires sont capables de réaliser ces mesures. L'I. B. H. P. a effectué une étude particulière de ce domaine et détermine l'équation d'état des gaz par une méthode dérivée de la méthode d'Amagat. Cette méthode qui a fait l'objet de divers perfectionnements, a été définitivement adoptée. Quelques détails sur cette technique sont fournis dans la note déjà citée (5).

Les résultats expérimentaux sont particulièrement intéressants à cause des points d'inflexion ou d'inversion qui ont été observés dans les courbes fournissant la compressibilité,

*The Belgian Institute for High Pressures is doing work oriented toward industrial applications covering elastic and plastic behaviour of steel cylinders submitted to pressure; corrosion of steel by hydrogen and hydrogen sulfide; improvement of pressure gauges; thermodynamics of industrial gases; chemical reactions in gaseous and liquid phases; solubilities of solids in liquids. These works are conducted under pressure up to 5 000 kg/cm<sup>2</sup> and temperature up to 850 °C (1700 °F).*

les coefficients de fugacité et la fugacité elle-même en fonction de la pression, de telles observations ayant été faites lorsque la pression atteint des valeurs proches de 2.000 atmosphères. (La fig. 8 représente le coefficient de fugacité du méthane jusqu'à 3.000 atmosphères).

\*

\*\*

Toutes les recherches de l'Institut Belge des Hautes Pressions ont été réalisées grâce aux généreuses subventions de l'Institut pour l'Encouragement de la Recherche Scientifique dans l'Industrie et l'Agriculture « I. R. S. I. A. » et de l'Industrie belge : aussi, nous prions cette Industrie et cet Institut d'accepter nos sentiments de réelle gratitude.

Nous exprimons également nos sincères remerciements à tous nos collaborateurs scientifiques et techniques qui ont été associés à ces recherches depuis de nombreuses années.

#### Bibliographie.

- (1) L. DEFFET : Les travaux de recherche sous pressions élevées, Compte-rendu du XXXI<sup>e</sup> Congrès International de Chimie Industrielle, Liège 1959, 1, 251.
- (2) L. DEFFET et L. LIALINE : L'influence de l'épaisseur des tubes sur leur comportement sous pression, Acta Technica Belgica, 1959, 5, 1.
- (3) J. GOUZOU : Recherche sur les cylindres à parois épaisses et sur les éprouvettes tubulaires, Centre National de Recherches Métallurgiques (Note inédite 1965).
- (4) L. DEFFET : L'apport des hautes pressions à l'industrie chimique, Industrie Chimique Belge, 1962, 27, 335. L'influence des hautes pressions en chimie et en thermodynamique, *Termodinamica* (Milano) 1963, 17, 646. Appareillage et méthodes de recherche en chimie, sous hautes pressions, *Chimia* (Aarau), 1964, 18, 89.
- (5) L. DEFFET et F. FICKS : Compressibility and fugacity of methane up to 3000 atmospheres and 150 °C. *Advances in Thermophysical Properties at Extreme Temperatures and Pressures*, Editor S. Gratch. The American Society of Mechanical Engineers, New York, 1965, p. 107.

*Das Belgische Hochdruckinstitut orientiert seine Arbeiten nach industriellen Anwendungen, wie das elastische und plastische Verhalten von Stahlzylinder; Korrosion der Stähle durch Wasserstoff und Schwefelwasserstoff; Verbesserung der Manometer; Thermodynamik industrieller Gasen; verschiedene chemische Reaktionen in gas- und flüssigem Zustand; Löslichkeit fester Substanzen in Flüssigkeiten. Diese Nachforschungen werden mit Drücken bis zu 5.000 kg/cm<sup>2</sup> und Temperaturen von 850 °C ausgeführt.*