KfK 3701 April 1984

# Getriggertes Fragmentationsexperiment mit Natrium, Silikonöl und Pentan

T. Morita Institut für Reaktorentwicklung Projekt Schneller Brüter

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE Institut für Reaktorentwicklung Projekt Schneller Brüter

K£K 3701

# Getriggertes Fragmentationsexperiment mit Natrium, Silikonöl und Pentan

T. Morita

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (TH) genehmigte Dissertation

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

> Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

#### <u>2usammenfassung</u>

Bei der Analyse von schweren, hypothetischen Schnellbrüterstörfällen sind die Auswirkungen einer BNR, d.h. thermischen Reaktion des heißen Brennstoffs mit Natrium zu berücksichtigen. Zum detaillierten Verständnis des entscheidenden Fragmentatiosvorgangs bei der thermischen Wechselwirkung eines heißen Flüssigkeitstropfens mit einer kalten Flüssigkeit wurden Versuchsreihen mit Natrium und Silikonöl als heiße Flüssigkeit und Pentan als kalte leichtflüchtige Flüssigkeit durchgeführt. Zur genauen Beobachtung des Reaktionsvorgangs, die durch Siedevorgänge bedingte Fragmentation eingeschlossen , was bei bisherigen Arbeiten nicht gegeben war, wurde eine leistungsfähige Hochgeschwindigkeitskamera mit einer maximalen Aufnahmegeschwindigkeit von 1.10<sup>5</sup> B/s eingesetzt. Diese Aufnahmen wurden zu verschiedenen quantitativen Abschätzungen wie Volumen der Reaktionszone sowie deren Wachstumsrate verwendet. Mit einer besonderen Meßmethode konnten zum ersten Mal Ergebnisse zum zeitabhängigen Flüssigkeitsanteil in der Reaktionszone gewonnen werden. Basierend auf den Meßergebnissen wird in diesem Bericht ein typischer Reaktionsvorgang, der in sechs Phasen unterteilt werden kann, dargestellt und physikalisch begründet. Die Einflüsse von Versuchsparametern, wie externer Triggerdruck und Temperatur des heißen Tropfens, wurden untersucht und daraus die Rolle der homogenen Kernbildungstemperatur und des externen Triggers bei der Reaktion klargestellt. Ein Fragmentationsmodell wird ebenfalls vorgestellt. Nach diesem Modell sind Fragmentation des heißen Tropfens und Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit durch Grenzflächeninstabilitäten aufgrund des hohen örtlichen Dampfdruckaufbaus an Direktkontaktstellen zu erklären. Basierend auf dem Fragmentationsmodell werden zwei Kennzahlen über die zu erwartende Heftigkeit der Siedetemperaturen abgeleitet. Diese Kennzahlen werden auf die bei einer BNR vorliegende Materialpaarung UO<sub>2</sub>-Na angewendet. Demnach neigt diese Materialpaarung nur zu einer milden Siedefragmentation.

#### Abstract

Triggered Fragmentation Experiment with Sodium, Silicone Oil and Pentane

Within the analysis of severe hypothetical fast breeder accidents the consequences of a fuel-coolant-interaction have to be considered, i.e. the thermal interaction between hot molten fuel and sodium. For the detailed understanding of the fragmentation during the thermal interaction of a hot liquid droplet with a cold fluid series of experiments were performed with sodium and silicone oil as hot liquid and pentane as cold easily volatile fluid. For the precise observation of the reaction an efficient high speed camera with a maximum recording frequency of  $1 \cdot 10^5$  f/s was used. So the fragmentation caused by boiling phenomena could be observed. The pictures were used to estimate quantitatively e.g. the volume of the reaction zone and its expansion rate. By a special measuring device for the first time results on the time dependent portion of the liquid within the reaction zone could be gained. Based on the measured results of the experiments the course of a typical reaction, which can be devided into six phases, is presented and physically explained in this report. The influence of experimental parameters, as pressure of the external trigger and temperature of the hot liquid droplet, was investigated and from this the role of the homogeneous nucleation temperature and the external trigger for the reaction was deduced. A model for the fragmentation is presented too. By this model the fragmentation of the hot droplet and its mixing with the surrounding fluid is explained by the instability of the boundaries due to the high pressure build up at local direct contact. Based on the fragmentation model two numbers are deduced, which characterize the violence of the boiling fragmentation to be expected. These numbers are applied on UO2 and Na. These materials are in contact during a real fuel-coolant interaction. Hence these materials tend to a mild boiling fragmentation only.

# <u>Inhaltsverzeichnis</u>

•

# Seiten

1.	Einl	.eitung		1				
2.	Über	Überblick über wichtige bisher durchgeführte Arbeiten und Zielsetzung						
	dies	eser Arbeiten						
	2.1	Dampfe	explosion	3				
		2.1.1	Theoretische Modelle zur Dampfexplosion	5				
		2.1.2	Allgemeine Ergebnisse von Experimenten zur	9				
			Dampfexplosion					
	2.2	Fragmentationsmodelle und Experimente						
		2.2.1	Hydrodynamische Fragmentation	11				
		2.2.2	Siedefragmentation (thermodynamische Fragmentation)	12				
	2.3	Proble	mstellung und Zielsetzung dieser Arbeit	13				
3.	Durc	urchführung der Experimente						
	3.1	Konzeption der Versuchsanordnung						
		3.1.1	Auswahl der Versuchsmaterialien	17				
		3.1.2	Aufbau der Versuchsanlage	18				
	3.2	Meßtec	hnik	19				
		3.2.1	Temperatur , Druck und Filmaufnahme	19				
		3.2.2	Ermittlung des Flüssigkeitsgehaltes in der	20				
			Reaktionszone					
		3.2.3	Größe der Fragmente	22				
	3.3	Versuchsparameter		22				
	3.4	Versuchsdurchführung						
	3.5	Fehler	abschätzung	25				
4.	Versuchsergebnisse							
	4.1	Allgemeine Bemerkungen						
		4.1.1	Siedeform	29				
		4.1.2	Charakteristischer Verlauf des Triggerdrucks	30				
		4.1.3	Überblick über die Versuchsserien	31				

	4.2	Ablauf	der Reaktion	32		
		4.2.1	Verlauf des Reaktionsdrucks	32		
		4.2.2	Reaktionsvorgang nach Hochgeschwindigkeitsfilmen	34		
		4.2.3	Zusammenfassung	39		
	4.3	Einflu	ß der Versuchsparameter			
		4.3.1	Zeitlicher Verlauf mit verschiedenen Versuchsparametern	40		
		4.3.2	Reaktionsdruck und Verzögerungszeit	42		
		4.3.3	Zusammenfassung	44		
	4.4	Energe	tik des Triggers und der Reaktion	45		
	4.5	Analys	e der Fragmente von Natriumtropfen	46		
5.	Diskussion der Versuchsergebnisse					
	5 . 1 <sup>.</sup>	Physikalische Erklärung der Reaktionsvorgänge				
		5.1.1	Propagation der Triggerdruckwelle und Kinetik des	48		
			Dampffilmzusammenbruchs (Phase II)			
		5.1.2	Grenzflächeninstabilitäten(Phase III)	53		
		5.1.3	Übergangsphase und langsame Vermischung (Phase IV, V)	58		
		5.1.4	Abschätzung der minimalen Vemischungsenergie	59		
		5.1.5	Interne Energiebilanz der Reaktionszone	61		
	5.2 Rolle		der homogenen Keimbildungstemperatur	62		
		(T <sub>HN</sub> -	- Kriterium)			
	5.3 Rolle des externen Triggerdrucks		63			
	5.4 Einflu		ß der wichtigsten Materialeigenschaften auf die	67		
		Fragmen	ntation			
6.	Zusa	mmenfas	sung und Schlußfolgerung	71		
7.	Anhan	ig A		76		
8.	Anhan	ig B		79		
9.	Nomenklatur					
10.	Literaturverzeichnis 8					
	(Liste der Tabellen und Abbildungen)					

#### <u>1. Einleitung</u>

Seit vielen Jahren werden Studien zur Sicherheit von Kernreaktoren durchgeführt. In diesem Rahmen werden auch hypothetische Kernschmelzunfälle (HCDA) diskutiert. Dabei kann der heiße geschmolzene Brennstoff und das Brennelementmaterial (Corium), dessen Temperatur weit oberhalb der Siedetemperatur des Kühlmittels (Natrium, Wasser) liegt, mit dem Kühlmittel in Kontakt kommen. Ein Zusammentreffen von heißer Flüssigkeit mit der kälteren, leichtflüchtigen Flüssigkeit kann möglicherweise heftige kohärente Dampfexplosionen unter Freisetzung einer großen mechanischen Energie verursachen, die ein Versagen des Reaktortanks zur Folge haben könnten.

Schwere Unfälle mit Dampfexplosionen ereigneten sich in der Metallindustrie, in der Papierindustrie sowie bei der Handhabung von kaltem verflüssigtem Naturgas. Oft wurden bei diesen Unfällen Personen getötet oder verletzt und schwere Zerstörungen an Einrichtungen verursacht.

Im Kernreaktor hätte eine derartige kohärente Dampfexplosion ernste Folgen, da im Falle des Versagens des Containments größere Mengen radioaktiver Stoffe in der Umgebung freigesetzt werden könnten. Ein HCDA mit einer kohärenten Dampfexplosion könnte durch folgende Ereignisse ausgelöst werden

- unkontrollierte Erhöhung der Reaktivität,

- Versagen der Kühlung ohne Schnellabschaltung.

Zur Verhinderung solcher Einleitungsereignisse und des Übergangs zu einem HCDA werden redundante und diversitäre Sicherheitseinrichtungen im Kernreaktor eingesetzt /1/. Um die Risiken derartiger Reaktorstörfälle zu verstehen, wurden Sicherheitsanalysen wie WASH 1400 oder die "Deutsche Risiko-Studie" durchgeführt. Die Deutsche Risiko-Studie hat z. B. ergeben, daß die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten einer Dampfexplosion bei einem LWR (Leichtwasser-Reaktor) kleiner als 2 x  $10^{-6}$  pro Jahr ist. Das heißt, daß das Auftreten einer kohärenten Dampfexplosion im Ablauf eines Reaktorstörfalles nicht ganz ausgeschlossen werden kann, obgleich sie höchst unwahrscheinlich ist /2/. Aus diesen Gründen wurden bereits viele experimentelle Arbeiten zur Dampfexplosion durchgeführt und mehrere Theorien zu ihrer physikalischen Deutung vorgeschlagen. Dennoch werden die Grundmechanismen und Einflußfaktoren, die zur Dampfexplosion führen, noch nicht befriedigend verstanden.

Unter Dampfexplosion versteht man dabei die explosionsartige Verdampfung einer kälteren Flüssigkeit durch schnelle Wärmezufuhr aus einer sehr heißen Flüssigkeit und dem dabei entstehenden großen Druckaufbau. Es werden auch die Ausdrücke "Thermische Explosion" oder "Brennstoff-Natrium-Reaktion" verwendet. Eine explosionsartige Verdampfung mit dem höheren Druckaufbau findet nur statt, wenn die Zeit, in der die Wärme übertragen wird, kleiner ist als die Expansionszeit des Gemisches von Dampf und Flüssigkeit selbst. Dies kann nur eintreten, wenn eine sehr intensive Vermischung der beteiligten Komponenten vorausgeht. Diese intensive Vermischung, d. h. Fragmentation der heißen Flüssigkeit, spielt daher eine Hauptrolle bei der Dampfexplosion.

In der vorliegenden Arbeit wurde der Fragmentationsmechanismus experimentell untersucht, die Ergebnisse analysiert und diskutiert. Zunächst wird im Kapitel 2 ein Überblick über wichtige bisherige experimentelle und theoretische Arbeiten zur Fragmentation sowie zur Dampfexplosion und den heutigen Kenntnisstand gegeben. Danach werden die Probleme, die gelöst werden sollen, aufgezeigt und daran die Ziele dieser Arbeit definiert. Im Kapitel 3 wird der Aufbau und die Durchführung des Experiments behandelt. Im Kapitel 4 werden die experimentellen Ergebnisse dargestellt und in Kapitel 5 die Diskussion und die physikalischen Erklärungen für die wichtigsten Ergebnisse wiedergegeben, wobei die Vorgänge der Fragmentation auf den mit der Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommenen Filmen basieren. Die Einflüsse der wichtigsten experimentellen Parameter und der Materialeigenschaften werden diskutiert. Im Kapitel 6 werden die wichtigsten Ergebnisse der vorliegenden Arbeit sowie die Schlußfolgerungen wiedergegeben.

2. Überblick über wichtige bisher durchgeführte Arbeiten und Zielsetzung dieser Arbeiten

## 2.1. Dampfexplosion

Eine Dampfexplosion entsteht als Folge einer extrem rasch ablaufenden Wärmeübertragung zwischen einer heißen und einer kalten Flüssigkeit und der dadurch ausgelösten explosionsartigen Verdampfung der überhitzten kalten Flüssigkeit. Sie kann aus mehreren Ereignissen bestehen. Bankoff /3/ sowie Cronenberg /4/ haben folgende Ereignisketten bei der Entstehung einer Dampfexplosion vorgeschlagen, die nach heutigem Verständnis allgemein akzeptiert werden.

- Zunächst grobe Vorvermischung der beteiligten Flüssigkeiten ohne rasche Wärmeübertragung, was stabiles Filmsieden voraussetzt (Anfangsphase).
- Dampffilmzusammenbruch und nachfolgender Direktkontakt der beiden Flüssigkeiten (Triggerphase).
- Intensive Vermischung der beteiligten Komponenten, sogenannte Fragmentation, und in der Folge rasche Wärmeübertragung mit heftiger Verdampfung der kalten Flüssigkeit und Druckaufbau (Eskalationsphase).
- Propagation der Reaktion über das ganze Vorvermischungsgebiet (Propagationsphase).

In der Anfangsphase macht es die quasi Wärmeisolierung durch Filmsieden möglich, daß ohne wesentliche Abkühlung der heißen Flüssigkeit diese tief in die kalte Flüssigkeit eindringen kann. Dieses tiefe Eindringen bewirkt eine Verdämmung, die eine schnelle Druckentlastung verhindern kann. Ohne Verdämmung ist ein größerer Druckaufbau durch Verdampfung der kalten Flüssigkeit unmöglich. Eine grobe Vorvermischung ist daher eine Voraussetzung für eine nachfolgende Propagation der Reaktion, also des Auftretens einer kohärenten Dampfexplosion.

Der Dampffilmzusammenbruch wird durch eine externe Störung sowie eine spontane Filmsiedeinstabilität verursacht. Während des Filmsiedens bei niedriger Temperatur, also nahe der minimalen Filmsiedetemperatur, können spontane lokale Direktkontakte häufiger auftreten /5,6/. Andererseits ist eine externe Druckwelle oder eine intensive Strömung notwendig, um einen Dampffilm unter Filmsieden, wobei die Temperatur der heißen Flüssigkeit weit über der kritischen Temperatur der kalten Flüssigkeit liegt, zusammenbrechen zu lassen. Ob ein Direktkontakt der beiden Flüssigkeiten selbst die weitere Reaktion auslösen kann, bleibt noch eine offene Frage.

Nach dem Direktkontakt sind folgende zwei Prozesse denkbar:

- Durch die Direktkontaktwärmeübertragung kann die kalte Flüssigkeit über deren Siedepunkt überhitzt werden, und dadurch erfolgt die explosionsartige Verdampfung, die zur Fragmentation der heißen Flüssigkeit führen kann (Siedefragmentation).
- Wird eine externe Druckwelle als Trigger vorgegeben, ergibt sich eine Relativgeschwindigkeit bzw. Beschleunigung zwischen beiden Flüssigkeiten, die vor allem auf dem Dichteunterschied beruht. Diese Relativgeschwindigkeit sowie Beschleunigung kann eine sogenannte hydrodynamische Instabilität bewirken, die zu einer feinen Fragmentation der heißen Flüssigkeit führt. Dadurch wird die Oberfläche für einen Direktkontakt außerordentlich vergrößert und ein rascher Wärmeübergang zur kalten Flüssigkeit wird möglich. Dies kann durch schnelle Verdampfung die Stoßwelle noch verstärken (hydrodynamische Fragmentation).

In jedem Fall wird ein großer Druckaufbau in der Eskalationsphase erzeugt, der das noch nicht unterbrochene Filmsieden stört und damit die Reaktion weiterlaufen läßt.

Abb. 1 zeigt eine einfache Darstellung der Ereignisfolgen nach Cronenberg /4/. Danach können allgemein notwendige und hinreichende Bedingungen, bei denen eine thermische Wechselwirkung zu einer Dampfexplosion führt, abgeleitet werden.

 Zunächst muß eine <u>thermische Energie</u> vorhanden sein, wobei die Temperatur der heißen Flüssigkeit oberhalb der Siedetemperatur der kalten Flüssigkeit liegen muß, damit überhaupt Verdampfung auftreten kann.

- Eine <u>grobe Vorvermischung</u> (coarse mixing) muß stattfinden, wobei die beiden Komponenten durch einen Dampffilm voneinander getrennt sind.
- Eine thermische oder mechanische Störung ist erforderlich, damit es zum <u>flüssig-flüssig-Direktkontakt</u> kommen kann.
- Das Reaktionsgemisch muß durch <u>Verdämmung</u> in seiner Ausdehnung gehindert sein, damit es zu einer Rückwirkung und in deren Folge zu einer Eskalation der Dampfexplosion kommen kann.

Zu den einzelnen Prozessen bzw. Bedingungen wurden viele Experimente sowie theoretische Diskussionen durchgeführt. In den folgenden Kapiteln stehen die wichtigsten Ergebnisse dieser Untersuchungen.

## 2.1.1. Theoretische Modelle zur Dampfexplosion

Hicks und Menzies /7/ haben die obere, also konservative Abschätzung für die möglicherweise freisetzbare mechanische Arbeit einer Dampfexplosion angegeben. Dieses Modell basiert auf der Annahme, daß sich spontan zwischen der heißen und kalten Flüssigkeit ein vollständiges thermisches Gleichgewicht einstellt und sich dann dieses Gemisch isentrop auf einen vorgegebenen Enddruck entspannt. Dabei leistet es mechanische Arbeit. Während der Entspannung besteht stets ein thermodynamisches Gleichgewicht zwischen den beteiligten Komponenten. Daher wird dieses Modell "Gleichgewichtsmodell" genannt.

Die Rechenergebnisse zeigen:

- Es gibt einen Massenanteil heiße Flüssigkeit zu kalter Flüssigkeit, bei dem die mechanische Arbeit das Maximum erreicht, z.B. 0.1 für UO<sub>2</sub>/Na.
- Der maximale Wert der freisetzbaren mechanischen Arbeit hängt von dem Enddruck des Systems ab. Selbstverständlich bringt ein kleinerer Enddruck einen größeren Wirkungsgrad mit sich. Für UO<sub>2</sub>/Na und den Enddruck von 1 bar ergibt sich der Wirkungsgrad zu 30 %.

Aus diesem Modell entwickelten sich viele Variationen: In dem "adiabaten Modell" von Anderson und Armstrong /8/, wird anstelle des thermischen Gleichgewichts eine Wärmeisolierung infolge des sich zwischen den beiden Flüssigkeiten ausbildenden Dampffilms betrachtet. Die Ergebnisse weisen darauf hin, daß sich die mechanische Arbeit bis zu 50 % reduziert. In wirklicher Reaktorumgebung gibt es kalte Strukturen oder sonstige Materialien, die als Wärmesenke wirken können. Dies führt zu einer weiteren Reduzierung der erzeugten mechanischen Arbeit.

Wenn die Prozesse der Fragmentation und des Wärmeaustausches während der Reaktion zusätzlich betrachtet werden, kann eine noch bessere, also wirklichkeitsnähere Abschätzung vorgenommen werden. Beispielsweise entwickelte Caldarola /9/ ein Modell, bei dem diese Prozesse durch Vorgabe entsprechender Fragmentations- und Wärmeaustauschzeiten beschrieben werden. Dieses Modell braucht jedoch ganz spezifische experimentelle Daten, um eine zuverlässige Vorhersage der Vorgänge zu ermöglichen, da die Rechenergebnisse von den beiden zeitlichen Parametern stark abhängen.

In weiteren Modellentwicklungen zur Dampfexplosion wurden auch die Vorgänge der Fragmentation und/oder die einer raschen Dampferzeugung mitberücksichtigt.

Board, Hall und Hall /10/ haben in ihrem kohärenten Dampfexplosionsmodell eine Analogie zu chemischen Detonationen hergestellt. Die Vorgänge der Reaktion können wie folgt beschrieben werden: In einem reaktionsfähigen Gemisch, das aus heißer und kalter Flüssigkeit besteht, wird durch eine Stoßwelle die heiße Flüssigkeit fein fragmentiert. Dadurch wird die gemeinsame Oberfläche zwischen den beiden Flüssigkeiten so stark vergrößert, daß eine schnelle Aufheizung der kalten Flüssigkeit in extrem kurzer Zeit ( $10^{-5}$  s) stattfindet. Diese aufgeheizte kalte Flüssigkeit verdampft explosiv, dann erfolgt eine Druckerhöhung, die wieder die Stoßwelle speist, so daß diese Reaktion ohne abzuklingen durch das ganze Gemisch laufen kann.

In Analogie zur chemischen Detonation, bei der die Energiefreisetzung durch Verbrennung erfolgt, wird in diesem Modell die Wärmezufuhr in die kalte Flüssigkeit durch Fragmentation ersetzt. Das bedeutet, daß die Fragmentation der heißen Flüssigkeit unabhängig von der Wärmeübertragung stattfindet. Deshalb stellten Board und Hall einen sozusagen hydrodynamischen Frag-

mentationsmechanismus vor, bei dem hinter der Stoßfront eine Relativgeschwindigkeit zwischen den beiden Flüssigkeiten zur Verfügung steht. Wichtig ist, daß die Fragmentation schneller abläuft als die Abbremsung der Relativbewegung durch Zwei-Phasen-Reibkräfte.

Rechenergebnisse dieses Detonationsmodells ergeben, daß ein höherer Wirkungsgrad der Energieumsetzung als derjenige des Gleichgewichtsmodells denkbar ist. Dies setzt allerdings einen sehr hohen Triggerdruck bis 700 bar sowie einen Reaktionsdruck von 15000 bar für das UO<sub>2</sub>/Na-System voraus.

Das Detonationsmodell, das zuerst von Board und Hall vorgestellt wurde, ist auf stationäre Druckwellen beschränkt. Deshalb wurden neuere Modelle, die auf instationären Vorgängen basieren, entwickelt, um die offene Frage zu lösen, wie groß ein Anfangstrigger mindestens sein muß, um eine Detonation einzuleiten.

Die Rechenergebnisse zeigen:

- Ein Trigger von 10 bar ist genügend groß, um eine Detonationswelle im Al-H<sub>2</sub>O-System entstehen zu lassen /11/.
- Für das UO<sub>2</sub>-Na-System kann die Entstehung einer Dampfexplosion nicht ausgeschlossen werden, wenn eine Vorvermischung mit stabilem Filmsieden vorausgesetzt werden kann /11/.
- Wenn der Triggerdruck sehr klein ist, dann kann die Länge der vorgemischten Zone nicht ausreichen, um zu einem wesentlichen Druckanstieg zu führen /12/.

Diese Ergebnisse hängen immer noch stark von den verwendeten Fragmentationsmodellen ab.

Fauske /13,14,15/ hat ein Modell zur physikalischen Erklärung einiger Dampfexplosionsexperimente gegeben. Es besteht aus folgenden Ereignisstufen.

-- 7 ---

- Am Anfang steht eine grobe Vermischung der heißen mit der kalten Flüssigkeit unter Filmsiedebedingungen der heißen Phase (Anfangsphase).
- Die heiße und die kalte Flüssigkeit müssen durch eine Störung zum Direktkontakt kommen (Triggerphase).
- Ist die Kontakttemperatur höher als die spontane Keimbildungstemperatur, dann kann eine heftige Verdampfung der kalten Flüssigkeit, die überhitzt ist, bei gleichzeitiger Fragmentation der heißen Flüssigkeit stattfinden (Eskalationsphase).
- Eine rasche Entspannung des aufgebauten Reaktionsdrucks muß durch Verdämmung behindert sein. Der örtliche Druckanstieg bewirkt dann einen Zusammenbruch des Dampffilms in weiten Bereichen. Dies löst eine Kettenreaktion aus infolge der raschen Wärmeübertragung, Verdampfung und erhöhtem Druckaufbau mit verstärkter Fragmentation (Propagationsphase).

Nach diesem sogenannten "spontanen Keimbildungsmodell" kann das System UO<sub>2</sub>/Na zu keiner heftigen Dampfexplosion führen, da die Kontakttemperatur zu niedrig liegt. Folgende Kritik wird gegen das Fauske-Modell vorgebracht:

- Das Modell enthält keine quantitative Abschätzung der erwarteten Energiefreisetzung.
- Es wird keine ausführliche Darstellung des erwarteten Fragmentationsmechanismus gegeben.
- Dieses Modell gilt nicht für einige experimentelle Ergebnisse, z. B.
   Wasser-Freon-Versuche /24/.

Ochiai /16/ und Anderson /17/ haben eigene Modelle mit anschaulichen Darstellungen vorgeschlagen. Diese betonen die Rolle spontaner Instabilitäten während der Eskalationsphase. Die Bedeutung der spontanen Keimbildungstemperatur bei der Dampfexplosion oder Fragmentation konnte allerdings noch nicht festgestellt werden.

#### 2.1.2. Allgemeine Ergebnisse von Experimenten zur Dampfexplosion

Bis heute wurden zahlreiche Experimente zur Dampfexplosion durchgeführt. Die meisten können in folgende drei Kategorien eingeordnet werden:

- Gießexperiment mit einem Tropfen oder größeren Massen,
- Stoßrohr- sowie Injektionsexperimente,
- Simulationsexperimente innerhalb und außerhalb des Reaktors.

Daraus ergeben sich folgende Aussagen:

- (1) Al-Wasser- und Zinn-Wasser-Gießexperimente /18,19,20,21/
  - Alle Versuche, die zu einer heftigen Dampfexplosion führten, begannen mit Filmsieden in der Vorvermischungsphase.
  - Heftige Dampfexplosionen werden offenbar durch den Zusammenbruch des Dampffilms ausgelöst.
  - Eine Dampfexplosion breitet sich wie eine Detonation aus. Ihre Ausbreitungsgeschwindigkeit liegt in der Größenordnung 100 - 200 m/s.
  - Es gibt eine sogenannte "Thermische Interaktionszone" (TIZ), d. h. Kombinationen von Temperaturen der beiden Komponenten, bei denen eine heftige Explosion stattfinden kann. Die obere Grenze läßt sich durch Einsatz eines externen Triggers erweitern.
  - In den THERMIR-Experimenten /22/ wurden nicht nur kohärente, sondern auch inkohärente und lokale Reaktionen beobachtet.
  - Das Al-Wasser-System reagiert immer heftiger als das Zinn-Wasser-System.
- (2) In den Wasser-Freon- sowie Öl-Freon-Experimenten wurde die TIZ nachgewiesen. Bei dem Öl-Freon-System /23/ liegt die TIZ eindeutig zwischen der homogenen Keimbildungstemperatur, T<sub>HN</sub>, und der kritischen Temperatur. Andererseits wurden im Wasser-Freon-System öfter heftige Reaktionen auch bei unter T<sub>HN</sub> liegender Kontakttemperatur beobachtet /17,24/.

- (3) Wenn kleine Mengen von Na in geschmolzenes UO<sub>2</sub> eingebracht wurden, ereigneten sich energetischere Reaktionen als im umgekehrten Fall /25/.
- (4) Im Stoßrohr-Experiment /26/ wurde im UO<sub>2</sub>-Na-System einmal ein höherer Reaktionsdruck gemessen. Die Anstiegszeit war jedoch wesentlich langsamer als nach dem Detonationsmodell zu erwarten war.
- (5) Heftige Reaktionen im Corium-(geschmolzenes Gemisch aus Reaktorstrukturmaterialien und UO<sub>2</sub>) sowie UO<sub>2</sub>-Wasser-System können nicht ausgeschlossen werden, obgleich die Kontakttemperatur oft weit außerhalb der TIZ liegt /27/.
- (6) Simulationsexperimente mit UO<sub>2</sub> (Brennstoff) und Na (Kühlmittel) zeigten unterschiedliche Ergebnisse. In einigen Fällen wurden sehr hohe Reaktionsdrücke bis zu 600 bar /28/, bzw. 200 bar /29/ erreicht. Es ist noch unklar, ob eine Dampfexplosion tatsächlich stattgefunden hatte. Der gemessene hohe Druck kann ebenso von dem hohen Dampfdruck des Brennstoffs herrühren.

Trotz der zahlreichen Gießexperimente mit großen Massen sowie der Simulationsexperimente kann praktisch keine klare Antwort dazu gegeben werden, welcher Fragmentations- und welcher Wärmeübertragungsmechanismus hinter der Stoßfront während der Ausbreitung der Reaktion vorherrschte. Dazu sind weitere gezielte und aufwendige Experimente erforderlich.

## 2.2. Fragmentationsmodelle und Experimente

Der Fragmentationsvorgang ist von allen Vorgängen bei einer Dampfexplosion der wichtigste. Deshalb werden zu diesem Thema mehrere experimentelle und theoretische Arbeiten durchgeführt. Im folgenden Kapitel werden davon einige Wichtige beschrieben.

--- 10 ----

#### 2.2.1. Hydrodynamische Fragmentation

Dieses Modell wurde zur Erklärung der Auslösung der thermischen Detonation eingeführt. Wenn eine durch das umgebende Fluid (Gas oder Flüssigkeit) laufende Stoßwelle auf einen Tropfen trifft, kann der Tropfen aufgrund folgender Wechselwirkungen mit der Stoßwelle fragmentieren:

- Die Staudruckverteilung auf der Tropfenoberfläche kann dessen Verformung verursachen. Überschreitet die Deformation des Tropfens ein bestimmtes Maß, wobei die Oberflächenspannung entgegenwirkt, so kann eine Zerteilung ausgelöst werden (Impaktfragmentation).
- Die Tangentialkomponente der Strömung an der Tropfenoberfläche übt wegen der Zähigkeit eine Scherkraft aus, die die Grenzschicht des Tropfens in Bewegung setzt. In der Folge kann die Grenzschicht in Tropfen zerfallen (Grenzschichtabstreifen).
- Verschiedenartige hydrodynamische Instabilitäten können an der Tropfenoberfläche Wellen auslösen und dadurch zum Tropfenzerfall führen:
  - i) Rayleigh-Taylor-Instabilität, verursacht durch starke Beschleunigung in Richtung von der leichteren zur schwereren Komponente.
  - ii) Kelvin-Helmholz-Instabilität infolge der Relativgeschwindigkeit an Grenzflächen.
  - iii) Kapillarwellen durch das Zusammenwirken von Strömungsdruck und Oberflächenspannung.

Die Relativgeschwindigkeit zwischen beiden Komponenten sowie die Tropfenbeschleunigung, die durch die aus der Relativgeschwindigkeit stammende Reibkraft (Dragforce) verursacht wird, beeinflußt diese Kraftwirkungen wesentlich. Da eine solche Relativbewegung zwischen beiden Komponenten hinter der Stoßfront aus dem Unterschied der Dichte oder, noch konkreter, der akkustischen Impedanz ( $\rho \ge 0$ ) stammt, wird diese Theorie häufig auf den Tropfenzerfall in einer Gasströmung angewendet. Dabei kann das Dichteverhältnis ziemlich groß sein. Es stellt sich die Frage, ob dieser Tropfenzerfallsmechanismus auch in einem Flüssig-flüssig-System verwendet werden kann, wie Board und Hall behaupten. Zur Beantwortung haben Patel und Theofanous /30,31/ eine Reihe von Experimenten durchgeführt, wobei ein Quecksilbertropfen in einem mit Wasser gefüllten Stoßrohr fragmentiert wurde. Es ergab sich, daß der Tropfen ungefähr zehnmal früher zerbrach, selbst als dies die Theorie, basierend auf der Rayleigh-Taylor-Instabilität für das Wassertropfen-Luft-System, vorhersagte. Bains /32/ hat ähnliche Ergebnisse aus eigenen Experimenten mit Quecksilber und Wasser angegeben, obgleich er andere Zeiten für die Fragmentation des Tropfens als Patel und Theofanous erhielt.

Andererseits wird in der theoretischen Arbeit von Schriewer /33/ zur hydrodynamischen Fragmentation darauf hingewiesen, daß Rayleigh-Taylor- und Kelvin-Helmholz-Instabilität sowie Grenzschichtabstreifen allein zur Fragmentation in Flüssig-flüssig-Systemen mit gewissen Triggern zu langsam sind. Daher steht eine einwandfreie physikalische Erklärung der Ergebnisse von Patel und Theofanous sowie Bains noch aus.

## 2.2.2. Siedefragmentation (thermodynamische Fragmentation)

Heftige Verdampfungen der überhitzten kalten Flüssigkeit an der Direktkontaktstelle führen möglicherweise zur Fragmentation der heißen Flüssigkeit. Dazu sind zwei Muster der Verdampfung denkbar, heftiges Übergangssieden /34,35/ und spontane Keimbildung /36/. Fauske hat durch die Kopplung von spontaner Keimbildung mit der Kontakttemperatur sein Modell zur Dampfexplosion entwickelt. Neulich hat Wey /37/ in einem Experiment mit Zinn und Wasser gezeigt, daß Blasengebiete auf den Kontaktflächen ungefähr 1 ms vor dem Druckaufbau bereits bestanden haben. Nach seiner Behauptung bedeutet das, daß der dynamische Effekt, mit dem eine Störung der Oberfläche bzw. die Fragmentation erzeugt wird, nicht auf spontaner Keimbildung, sondern auf normalem Blasenwachstum beruht.

Colgate /38/ hat spekulativ erklärt, daß die Kelvin-Helmholz-Instabilität, die durch die Dampfströmung im Blasenwachstumsgebiet verursacht wird, bei der Fragmentation eine Rolle spielen kann. Corradini /39/ hat die Siedefragmentation mit hydrodynamischen Effekten gekoppelt. Nach seinem Modell läuft die Fragmentation wie folgt ab:

- Unsymmetrischer Zusammenbruch des Dampffilms.
- Beschleunigung der heißen Flüssigkeit durch einen Druckaufbau infolge heftiger Verdampfungen im Kontaktgebiet.
- Rayleigh-Taylor-Instabilität durch diese Beschleunigung.
- Vermischung der beiden Flüssigkeiten und weitere Eskalation der Reaktion.

Diese Modellierung hat zwar etwas Spekulatives, aber das Modell gibt die erste quantitative Darstellung von ganzen Vorgängen der Siedefragmentation im Zusammenhang mit thermischen Effekten.

Eine Reihe von Modellen, sogenannte "Blasenzusammenbruchsmodelle" wurden vorgeschlagen. Dabei trägt die kinetische Energie eines Strahls der kalten Flüssigkeit, der während des Zusammenbruchs einer ausgewachsenen Blase erzeugt werden kann, zur Fragmentation bei /40/. Auch Caldarola /41/ benutzte einen ähnlichen Mechanismus zur quantitativen Modellierung der Fragmentation infolge des Blasenzusammenbruchs. Eine gültige experimentelle Bestätigung dieses Modells liegt zur Zeit noch nicht vor.

Sonstige Fragmentationsmodelle, die auf verschiedenen Wirkungen basieren, z. B. Entrainment kalter Flüssigkeit innerhalb heißer Flüssigkeit, thermische Spannungen infolge Erstarrung der heißen Flüssigkeit, Gasfreisetzung u. a. m., mögen zur Erklärung von einigen experimentellen Ergebnissen beitragen. Es scheint aber sehr schwierig, solche Modelle zur allgemeinen Klärung der Fragmentation zu akzeptieren.

#### 2.3. Problemstellung und Zielsetzung dieser Arbeit

Es wurden somit zahlreiche Arbeiten zur Fragmentation bzw. Dampfexplosion durchgeführt. Gleichzeitig wurden aber weitere Fragestellungen aufgeworfen. Obgleich nicht alle Fragen beantwortet werden können, wird die Richtung für weitere Untersuchungen, die auch Gegenstand dieser Arbeit sind, aufgezeigt.

- Zu einer ausgebildeten hydrodynamischen Fragmentation ist eine gewisse Relativgeschwindigkeit zwischen beiden Komponenten erforderlich. Externe Trigger allein, die häufig in Dampfexplosionsexperimenten angewendet wurden, können eine so große Relativgeschwindigkeit wie erforderlich nicht erbringen. Das heißt, mindestens in der Anfangsphase der Explosion, in der die Stoßwelle sich noch nicht weit genug entwickelt hat, muß ein Siedefragmentationsmechanismus vorherrschen.
- Dampfexplosion von Öl-Freon sowie Wasser-Freon sind mit reiner hydrodynamischer Fragmentation nicht erklärbar, weil das Dichteverhältnis bzw. das Verhältnis der akkustischen Impedanz fast gleich 1 ist. Hier muß die Siedefragmentation dominieren.
- In den neuesten Ergebnissen von Ando /42/von Experimenten mit Kupfertropfen in Wasser mit Hochgeschwindigkeitsaufnahmen wurde weder ein unsymmetrischer Blasenzusammenbruch noch Wasserstrahlen, sondern weiße Flecken und Eruptionen auf der Oberfläche des Kupfer-Tropfens beobachtet.

Diese Tatsachen bestätigen die Möglichkeit einer Siedefragmentation. Folgende Probleme der Siedefragmentation bleiben aber noch ungelöst:

- Eine genaue Beschreibung des Fragmentationsvorganges aufgrund von visuellen Beobachtungen wurde noch nicht gegeben.
- Das Kriterium der spontanen Keimbildungstemperatur ist durch visuelle Beobachtung nicht bewiesen worden.
- Es gibt eine Schwelle für externe Trigger, bei deren Überschreitung eine Fragmentation stattfinden kann /42/. Daraus ergibt sich die Frage, welche Rolle ein externer Trigger spielt. Z. B. ob der Trigger die beiden Flüssigkeiten nur zum Direktkontakt kommen läßt, oder ob noch andere Wirkungen hinzukommen.
- Zur Übertragung von Ergebnissen auf Reaktorbedingungen ist es sehr wichtig zu wissen, welche Materialeigenschaften die Fragmentation wesentlich beeinflussen. Die bisher durchgeführten experimentellen Arbeiten reichten dazu nicht aus.

An den genannten Problemen orientieren sich die Ziele der vorliegenden experimentellen Arbeit, in der es darum geht, grundsätzlich die Wechselwirkung zwischen der heißen und kalten Flüssigkeit zu untersuchen:

- Beschreibung des Vorgangs der thermischen Reaktion unter dem Aspekt einer reinen Siedefragmentation

Vor allem ermöglicht der Einsatz der leistungsfähigen Hochgeschwindigkeitskamera die notwendige visuelle Beobachtung von Fragmentationsvorgängen. Die Versuchsgeometrie mit jeweils einem heißen Tropfen in kalter Flüssigkeit macht Auswertungen überschaubar. Unter den ausgewerteten Daten befinden sich der Reaktionsdruck, das Volumen, die Wachstumsgeschwindigkeit bzw. – beschleunigung der Reaktionszone und die Vermischungsrate mit der kalten Flüssigkeit bzw. der Flüssigkeitsgehalt in der Reaktionszone. Zum letzteren sind in diesen Versuchen erstmalig Ergebnisse erzielt worden. Die zeitliche Entwicklung des Flüssigkeitsgehalts charakterisiert den Vorgang der Reaktion. Eine physikalische Erklärung des Vorgangs, die auf visuellen Beobachtungen basiert, wird gegeben. Das Dichteverhältnis der eingesetzten Flüssigkeiten sollte sich möglichst in der Nähe von 1 halten, um die zwischen den Flüssigkeiten wirkenden hydrodynamischen Instabilitäten gering zu halten.

- Nachweis der Gültigkeit des Kriteriums der spontanen Keimbildungstemperatur

Bisher wurde dieses Kriterium nur anhand von aufgenommenen Drucksignalen diskutiert. In der vorliegenden Arbeit kann dies durch Einbeziehung der visuellen Beobachtung mit der Hochgeschwindigkeitskamera noch deutlicher gemacht werden.

- Untersuchung der Einflußfaktoren, die zur Fragmentation beitragen.

Nicht nur die Temperaturbedingungen, sondern auch eine externe Störung erscheint als wichtiger Einflußfaktor bei der Fragmentation. Der Einsatz eines externen Triggers ist erforderlich, um diesen Einfluß parametrisch zu untersuchen. Durch die Verwendung der verschiedenen Kombinationen von Flüssigkeiten mit unterschiedlichen Materialeigenschaften können Einflüsse der Materialeigenschaften auf die Siedefragmentation untersucht werden. Die Ergebnisse und Diskussionen der vorliegenden Arbeit werden mit bisher bekannten Versuchsergebnissen verglichen.

#### 3. Durchführung der Experimente

# 3.1. Konzeption der Versuchsanordnung 3.1.1. Auswahl der Versuchsmaterialien

Bei der Wahl der Versuchsmaterialpaarung sollen möglichst folgende Bedingungen erfüllt werden.

- Für die kalte, leichtflüchtige Flüssigkeit, die als Simulator des Kühlmittels zu sehen ist, ist eine möglichst niedrige kritische Temperatur erwünscht unter der Einschränkung, daß die Flüssigkeit bei Raumtemperatur flüssig bleibt.
- Wegen der Filmaufnahme muß die kalte Flüssigkeit unbedingt transparent sein.
- Die heiße Flüssigkeit, die eine Simulation des geschmolzenen Brennstoffs darstellt, muß ohne merkliche Verdampfung bis zu so hohen Temperaturen erhitzt werden können, daß die Kontakttemperatur mit der kalten Füssigkeit nahe, möglicherweise über der kritischen Temperatur der kalten Flüssigkeit liegt.
- Die Dichte der heißen Flüssigkeit soll so nahe als möglich bei derjenigen der kalten liegen.
- Eine chemische Reaktion darf zwischen den beteiligten Stoffen nicht stattfinden.

Unter diesen Gesichtspunkten wurden folgende Materialpaarungen gewählt:

Kalte Flüssigkeit: Pentan (C5H12)

Heiße Flüssigkeit: Natrium (geschmolzen) bzw. Silikonöl (DC710)

In der Tab. 1 sind die wichtigsten physikalischen Eigenschaften aufgeführt. Natrium ist besonders vorteilhaft, weil Versuche in einem weiten Temperaturbereich möglich sind. Natrium ist auch bei hohen Temperaturen stabil und besitzt gute thermische Eigenschaften. Nachuntersuchungen und Analysen können an den Fragmenten durchgeführt werden. Da Sauerstoff ausgeschlossen werden muß, ist die Durchführung der Versuche mit Natrium komplizierter als diejenige mit Silikonöl. Andererseits wird die Paarung aus Silikonöl und Pentan für derartige Versuche häufig gewählt /15/. Sie entspricht weitgehend dem bekannten öl-Freon-System.

Es ist durch Vorversuche bestätigt, daß keine chemischen Reaktionen mit den gewählten Paarungen stattfinden.

### 3.1.2. Aufbau der Versuchsanlage

Abb. 2 zeigt den Aufbau der Versuchsanlage für Natriumtropfen. Das Plexiglasgefäß (1) hat die Abmessung 30 x 30 x 200 mm und ist mit Pentan gefüllt. Im oberen Gasraum (2) wird Argon oder Helium verwendet. Das Natrium wird durch Destillation in das Heizrohr (3) eingebracht und dort mit dem elektrischen Heizer bis zur gewünschten Temperatur erhitzt. Einzelne Natriumtropfen werden durch Aufgabe von Argongas (ca. 10 bar) durch eine Sintermetallscheibe (4) herausgedrückt. Mit einer Laser-Fotozellenabschaltung (5) wird die Ankunft des Tropfens im Filmaufnahmefeld der Hochgeschwindigkeitskamera festgestellt. Elektronisch werden über zwei einstellbare Zeitverzögerungsglieder (6,7) zuerst die Blitzlichtlampen (8) für die Kameraaufnahme, die ca. 60 µs brauchen, um die volle Leistung zu erreichen, und dann der Trigger zur Erzeugung der Druckwelle zugeschaltet. Als externe Triggerdruckquelle wurde eine Drahtexplosion verwendet. Dazu wurde ein freigespannter Silberdraht von 0.025 mm Durchmesser (9) durch plötzliche Kondensatorentladung zur Verdampfung gebracht. Je nach der gewünschten Größe des Triggerdrucks wurde die Kondensatorkapazität zu 1 oder 2  $\mu$  F und die elektrische Spannung zwischen 1-2 kV gewählt. Die Auslösezeit für die schnelle elektrische Schaltungsanlage (Ignitron) (10) ist kleiner als 2 µs.

Abb. 3 zeigt das detaillierte Schema des Aufnahmefeldes des Versuchs für die Natrium-Pentan Paarung. Das Gefäß hat die Abmessung 30 x 30 mm. Einer der zwei Druckmeßköpfe (A) ragt in den inneren Raum des Gefäßes hinein, der andere (B) ist direkt an der Wand des Gefäßes angesetzt. Die Abstände zwischen dem voraussichtlichen Zentrum des Tropfens und Meßkopf A ist 7,5 mm bzw. für Meßkopf B 15 mm. Der Draht zur Drahtexplosion is 20 mm unter der horizontalen Mittellinie der Druckmeßköpfe angebracht. Die Länge des Drahtes ist ca. 10mm. Der Tropfendurchmesser liegt zwischen 6mm und 8mm je nach dem einzelnen Versuch, in den meisten Fällen bei 7mm. Die Länge der Pentansäule oberhalb des Tropfens ist 25mm.

Die Geometrie des Versuchs für die Silikonöl-Pentan Paarung hat die kleinere Abmessung. Das Gefäß ist 20 x 20 mm groß. Der Meßkopf A sowie Meßkopf B ist 5 mm bzw. 10 mm entfernt vom Zentrum des Tropfens. Der Draht zur Erzeugung der Triggerdruckwelle liegt 15 mm unter der horizontalen Mittellinie der Druckmeßköpfe und ist etwa 10 mm lang. Der Tropfendurchmesser beträgt 3 bis 4 mm. Die Pentansäule oberhalb des Tropfen ist etwa 15 mm.

Abb. 4 zeigt die Natriumdestillation sowie das Gasversorgungssystem. Bei entsprechender Ventilstellung kann das ganze System evakuiert und dann mit Argon gefüllt werden. Das Natriumdestillationssystem besteht aus dem Natriumbehälter (1), dem Leitungsrohr (2) sowie dem Ventil und dem Natriumheizrohr (3). Sie sind mit voneinander unabhängigen elektrischen Heizern ausgerüstet, damit jeder Teil auf eine gewünschte Temperatur erhitzt werden kann. Es ist damit einfach, das Natrium zu destillieren und von dem Natriumbehälter in den Heizraum einzubringen.

Der Aufbau der Versuchsanlage für Silikonöl-Tropfen ist prinzipiell gleich. Das Gefäß ist etwas kleiner mit der Abmessung 20 x 20 x 150 mm, ebenso sind die Tropfen kleiner als die Natriumtropfen. Anstelle des Lasers wurde zur Ermittlung der Ankunft des Tropfens im Aufnahmeraum eine Ultraschallschranke (Viscolux USG 3) benutzt.

#### 3.2. Meßtechnik

#### 3.2.1. Temperatur, Druck und Filmaufnahme

Die Temperatur der heißen Flüssigkeit wurde mit zwei Thermoelementen gemessen, wovon das eine an der inneren Wand des Heizrohrs und das andere an der äußeren Wand der Sintermetallscheibe angebracht waren. Bei Natriumversuchen betrug die Differenz zwischen beiden Meßwerten nur einige Grade. Bei Silikonölversuchen wurde ein zusätzliches Thermoelement an der inneren Wand der Sintermetallscheibe angebracht. Der Unterschied zwischen den beiden war kleiner als ein Grad. Da es unmöglich ist, die genaue Temperatur bei der Reaktion zu messen, muß sie nachträglich analytisch abgeschätzt werden, siehe Anhang A.

Der dynamische Druckverlauf des Triggers sowie der Fragmentation werden über Druckmeßköpfe (Kistler 603 B) aufgenommen, die an der Wand des Gefäßes angebracht sind. Der Verlauf des Drucks wird mit einem Oszillograph aufgezeichnet und nach dem Versuch abfotografiert. Diese zwei Druckmeßköpfe sind in unterschiedlichen Abständen zum voraussichtlichen Reaktionsort angeordnet. Unterscheiden sich die Meßwerte eines Reaktionsdruckereignisses voneinander, dann kann aus diesen durch analytische Behandlung der wirkliche Reaktionsdruck ermittelt werden, siehe Anhang B.

Als Hochgeschwindigkeitskamera wurde ein Modell Cordin Daynafax 374 A eingesetzt. Die Aufnahmegeschwindigkeit kann bis auf 10<sup>5</sup> Bilder pro Sekunde erhöht werden. Die Aufnahmedauer beträgt insgesamt 4 ms für 1 x 10<sup>5</sup> Bilder pro Sekunde. Die aufgenommenen Hochgeschwindigkeitsfilme können mehrere wichtige Informationen liefern, z. B. zeitliche Abläufe des Volumens der Reaktionszone, deren Wachstumsrate und Beschleunigung. In vorliegenden Versuchen ist der Explosionsdraht im Aufnahmefeld angeordnet, damit der Zeitpunkt der Explosion auf dem Film beobachtet werden kann.

## 3.2.2. Ermittlung des Flüssigkeitsgehaltes in der Reaktionszone

Wird die Bewegung der Flüssigkeit in der Umgebung der Reaktionszone gemessen, kann die zu jedem Zeitpunkt in der Reaktionszone eingeschlossene Flüssigkeitsmenge ermittelt werden. Dazu wurde folgende Maßnahme ergriffen:

Wie in Abb. 5 gezeigt, ist eine leicht bewegliche dünne Aluminiumfolie oder eine Silberdrahtspule nahe dem voraussichtlichen Reaktionsort aufgehängt. Die Folie oder Spule folgt der Bewegung der sie umgebenden Flüssigkeit. Unter der Voraussetzung, daß die Trägheit der Folie gleich groß wie die der Flüssigkeit ist, kann die Bewegung der Folie oder der Spule mit der der Flüssigkeit gleichgesetzt werden.

Ì

Durch die Messung der Bewegung der die Reaktionszone umgebenden Flüssigkeit kann eine quantitative Abschätzung des Flüssigkeitsgehaltes in der Reaktionszone durchgeführt werden. Vorausgesetzt wird eine kugelsymmetrische Expansionszone:

$$\Delta V_{\rm V} = 4\pi/3 \left( R_{\rm V2}^3 - R_{\rm V1}^3 \right) \tag{1}$$

$$\Delta V_{L} = 4\pi/3[(R_{L} + x)^{3} - R_{L}^{3}]$$
<sup>(2)</sup>

# R<sub>V1</sub> : Anfangsradius des Tropfens

- $R_{V2}$  : Radius der Reaktionszone nach einer gewissen Zeit
- R<sub>L</sub> : Anfangsradius der betroffenen Kugel, gekennzeichnet durch den Abstand der Folie oder Spule vom Zentrum der Reaktionszone
- X : Bewegung der Flüssigkeit

Unterscheiden sich die beiden Volumen,  $V_V$  und  $V_L$  voneinander, dann muß der Unterschied mit der in die Reaktion einbezogenen kalten Flüssigkeitsmenge identisch sein. Es ergibt sich der Flüssigkeitsgehalt in der Reaktionszone.

$$V_{\rm F} = \Delta V_{\rm V} - \Delta V_{\rm L} \tag{3}$$

und der Flüssigkeitsanteil F<sub>F</sub>

$$F_{\rm F} = V_{\rm F} / \Delta V_{\rm V} \tag{4}$$

Die Möglichkeit des Einschlusses von Flüssigkeit in der Reaktionszone, die sehr schnell expandiert, wurde von Beirak /43/ theoretisch vorausgesagt.

## 3.2.3 Größe der Fragmente

Für Fragmente des Natriumtropfens konnte eine Nachuntersuchung durchgeführt werden. Da Natriumfragmente sehr leicht oxidieren, beschränkt sich die Nachuntersuchung auf die Messung der Größe der Fragmente und deren Auszählen. Die Fragmente, die nach dem Versuch aus dem Gefäß herausgenommen wurden, wurden zusammen mit dem Pentan in eine Glasschale gegossen und gleichmäßig verteilt. Danach werden sie von oben abfotografiert. Auf dem vergrößerten abgezogenen Bild werden die Durchmesser der Fragmente gemessen und ihre Anzahl gezählt.

# 3.3. Versuchsparameter

Die wichtigsten Versuchsparameter sind die Tropfentemperatur bzw. Kontakttemperatur und der externe Triggerdruck.

Die Kontakttemperatur ergibt sich zu:

$$T_{K} = \frac{\beta_{T}T_{T} + \beta_{F}T_{F}}{\beta_{T} + \beta_{F}}$$

(5)

 $\beta = \rho c_{\rho k}$  heißt "Wärmeeindringzahl"

Die spontane Keimbildungstemperatur kann nicht allgemein angegeben werden. Sie hängt von den Eigenschaften der Oberfläche der beteiligten Flüssigkeiten ab, wie Fauske in /13/ zeigt. Beim Flüssig-flüssig-Kontakt, insbesondere zwischen ineinander löslichen Flüssigkeiten, wird sie häufig durch die homogene Keimbildungstemperatur, T<sub>HN</sub>, ersetzt, die ausschließlich eine physikalische Eigenschaft der kalten Füssigkeit ist.

Aus der modifizierten Berthelot-Zustandsgleichung und thermodynamischen Betrachtungen wurde abgeleitet:

$$T_{\rm HN} = (27/32)^{2/3} T_{\rm Kr}$$
 (6)

Sie liefert eine Temperaturgrenze, jenseits der ein metastabiler Zustand nicht mehr bestehen kann.

Die homogene Keimbildungstemperatur kann auch mit der Molekularkinetik abgeleitet werden. Molekulare Fluktuationen sollen die überhitzte Flüssigkeit destabilisieren. D. h., oberhalb einer bestimmten Temperatur, hier T<sub>HN</sub> genannt, bilden sich in sehr kurzer Zeit so viele wachsende Siedekeime, daß ein sehr rascher Umschlag vom metastabilen in den stabilen Zweiphasenzustand erfolgt.

Die Keimbildungsrate J ergibt sich grob zu:

$$J \propto N \exp(-W/KT)$$
 (7)

N : Zahl der Moleküle pro Volumeneinheit

W : die zur Bildung einer Blase erforderliche reversible Arbeit

 $\tilde{K}$  : Boltzmann-Konstante (1.3804 x 10<sup>-23</sup> J/k)

Wenn die Kennzahl W/KT, die "Gibszahl" genannt wird, einen bestimmten Wert, etwa 11.5 nach /44/, überschreitet, dann wird die Keimbildungsrate rasch ansteigen. Da W praktisch nur von der Temperatur abhängig ist, kann die homogene Keimbildungstemperatur mit dieser Gibszahl errechnet werden. Die sich aus vorliegenden unterschiedlichen Betrachtungen ergebenden beiden homogenen Keimbildungstemperaturen sind praktisch gleich groß. Für Pentan wurde 145<sup>°</sup> C ermittelt.

Um das Fauske-Kriterium zu erreichen, muß die heiße Flüssigkeit bis zu einer Temperatur erhitzt werden, so daß die Kontakttemperatur über T<sub>HN</sub> zu liegen kommt. Aus dieser Betrachtung wurde der Versuchsbereich für die heiße Tropfentemperatur festgelegt:

(1)  $120^{\circ}$  < Na. Temp. <  $400^{\circ}$  C

Die Kontakttemperatur für Natrium-Pentan ist etwa 5% niedriger als die Tropfentemperatur. (2)  $200^{\circ}$  C < Silikonöl Temp. <  $350^{\circ}$  C bzw.  $110^{\circ}$  C < Kontakttemp. <  $180^{\circ}$  C

Die Pentantemperatur ist immer gleich der Raumtemperatur bei ca. 20<sup>0</sup> C angenommen.

Zur Festlegung des erforderlichen externen Triggerdrucks waren einige Vorversuche notwendig. Daraus ergibt sich für die Paarung Natrium/Pentan:

(3) 2 bar< Triggerdruck  $P_{Tr}$  < 15 bar

Bei der Paarung Silikonöl-Pentan kann ein kleiner Triggerdruck, etwa 1 bar die Reaktion einleiten.

#### 3.4. Versuchsdurchführung

Die Versuche wurden wie folgt durchgeführt:

- Das ganze System wird mit Argongas gefüllt oder teilweise evakuiert.

- Natrium wird durch Destillation von dem Natriumbehälter in das Natriumheizrohr gebracht. Silikonöl wird von Hand in das Heizrohr eingefüllt.
- Das Gefäß wird mit Pentan gefüllt.
- Die heiße Flüssigkeit wird im Heizrohr bis zur gewünschten Temperatur erhitzt. Danach wird die Temperatur konstant gehalten.
- Die Filmtrommel der Kamera wird auf die gewünschte Aufnahmegeschwindigkeit, normalerweise 80 000 Bilder pro Sekunde, gebracht.
- Die Kondensatoren für die Belichtung und die Drahtexplosion werden geladen. Andere Anlagen wie die Laserschranke, die Verzögerunsglieder und der Oszillograph werden in Bereitschaft gebracht.
- Der Verschluß der Kamera wird aufgemacht. (Die Kameratrommel läuft so schnell um, daß der Film mit normalem Licht nicht belichtet wird.)

- Durch öffnen des elektromagnetischen Ventils 1, siehe Abb. 2, wird ein einzelner Tropfen durch die Sintermetallscheibe herausgedrückt.
- Sofort nachdem ein Tropfen gefallen ist, wird das elektromagnetische
   Ventil 2 geöffnet, um den Druck im Heizrohr zu entlasten, damit sich kein zusätzlicher Tropfen bildet.

Der anschließende Versuchsverlauf wird durch die Elektronik automatisch geschaltet. Abb. 6 zeigt eine schematische Darstellung von zeitlichen Abläufen der Ergebnisse.

- Wenn der Tropfen den vorausgesetzten Reaktionsort erreicht, werden die Blitzlichtlampen zugeschaltet, und nach einer gewissen Zeitverzögerung die Drahtexplosion gezündet und der Oszillograph angetriggert.
- Über eine Aufnahmedauer von insgesamt 4 ms, die identisch mit der Blitzlichtdauer ist, wird die Bilderserie aufgenommen.
- Der Verlauf des Reaktionsdrucks wird mit Druckmeßköpfen gemessen, auf dem Oszillograph aufgezeichnet und anschließend abfotografiert.
- Die Fragmente werden nach der Durchführung einer Reihe von Versuchen mit gleichen Versuchsparametern aus dem unter dem Gefäß angeordneten Ventil entnommen.

#### 3.5. Fehlerabschätzung

Die in der vorliegenden experimentellen Arbeit auftretenden physikalischen Meßgrößen sind mit gewissen Ungenauigkeiten behaftet. Diese haben ihre Ursache in der beschränkten Meßgenauigkeit der verwendeten Geräte und Verstärker. Dadurch ergeben sich systematische Meßfehler. Hinzu kommen subjektive Fehler des Beobachters bei der Auswertung. Dies ist zurückzuführen auf mangelhafte Interpolationsfähigkeit des Auges und Unschärfen des Films. In der folgenden Fehlerabschätzung werden diese beiden Fehlerquellen zwar behandelt, aber nicht explizit unterschieden. (1) Temperatur T<sub>m</sub>

Systematische Fehler bei Temperaturmessungen kommen aus:

- Abweichungen von der Linearität der Thermoelemente im Meßbereich, < 1 $^{\circ}$  C

Ungenauigkeit der digitalen Anzeige, < 0.8<sup>°</sup> C Insgesamt |6T| < 1.8 <sup>°</sup>C

(2) Druck P

Der Druckmeßfehler besteht aus folgenden Komponenten:

- Abweichung von der Linearität des Meßkopfes 🛛 < 0.3 %

- Abweichung von der Linearität des Verstärkers 🛛 < 1 🗞

- Ablesefehler auf dem aufgezeichneten Bild < 0.25 mm

Dies entspricht < 2.5 %

Insgesamt  $\left|\frac{\delta P}{P}\right| < 3.8 \%$ 

Wegen des Abstands des Meßorts von dem Reaktionsort gibt es sicherlich einen Unterschied zwischen dem Meßwert und dem wirklichen Reaktionsdruck. Aus der Diskussion darüber, die sich in Anhang B befindet, kann der Druckunterschied zwischen dem Meßwert und dem wirklichen Reaktionsdruck abgeschätzt werden. Der wirkliche Reaktionsdruck sollte um den Faktor 1.2 größer sein, als der Meßwert beim Meßkopf A.

(3) Zeitliche Zuordung

Bei der zeitlichen Zuordnung zwischen der Druckaufzeichnung und den Bildern der Hochgeschwindigkeitskamera geht der Fehler meist auf zwei Ursachen zurück:

- Die Zeitauflösung der Hochgeschwindigkeitsfilme  $0 < t_0 < 12.5 \,\mu s$  (bei 80 000 Bps)

- Der Ablesefehler von den Bildern, auf denen der Druck aufgezeichnet ist.  $|t_0| < 3.1 \ \mu s.$ 

Insgesamt -3.1 
$$\mu$$
s < t<sub>o</sub> < 15.6  $\mu$ s.

Ein Fehler aus der Abweichung der Schallgeschwindigkeit ist vernachlässigbar, da der Abstand des Drahtexplosionsorts von dem Druckmeßort sehr klein (ca. 10 mm) ist.

(4) Auswertung der Hochgeschwindigkeitsfilme

Die Hochgeschwindigkeitsfilme wurden auf eine Fläche mit Millimeterraster projiziert und ausgewertet. Das Bild hat einen vierfach vergrößerten Maßstab verglichen mit dem Film. Der Fehler entsteht überwiegend beim Ablesen. Der Ablesefehler ergibt sich auf dem vergrößerten Filmbild maximal zu 0.2 mm. Auf dem Originalfilm entspricht dies 0.05 mm, §f.

Für eine lineare Funktion

ergibt sich der wahrscheinliche Fehler SF /45/,

$$SF = \sqrt{\sum_{k=1}^{n} \left(\frac{\partial f}{\partial x_{k}}\right)^{2} \delta x_{k}^{2}}$$
(8)

- Volumen der gesamten Reaktionszone (nach 100 $\mu$ s)

$$\widetilde{\delta V_{V}} = \frac{\pi/2 D_{V}^{2} \delta D_{V}}{V_{V}} = 3 \frac{\delta f}{D_{V}} : 1.75 \ (\%)$$
(9)

- Wachstumsrate der Reaktionszone (nach 100 $\mu$ s)

$$\hat{\delta R}_{V} = \frac{\sqrt{2} \,\delta f}{D_{Vi+1} - D_{Vi}} \qquad (10)$$

- Beschleunigung der kalten Flüssigkeit in der Reaktionszone (nach 100 $\mu$ s)

$$\widetilde{\delta \dot{R}_{V}} = \frac{\widetilde{\delta \dot{R}_{V}} \sqrt{\dot{R}_{Vi+1}^{2} + \dot{R}_{Vi}^{2}}}{\dot{R}_{Vi+1} - \dot{R}_{Vi}} : 23.4 (\%)$$
(11)

- Gehalt der kalten Flüssigkeit in der Reaktionszone. Aus Gl. (3) und (8) ergibt sich

$$\widetilde{OV_{F}} = \frac{\pi \delta f \sqrt{\frac{1}{4} \left( D_{V2}^{4} + D_{V1}^{4} \right) + 16 \left[ \left( R_{L} + x \right)^{4} + R_{L}^{4} \right]}}{\pi / 6 \left( D_{V2}^{3} - D_{V1}^{3} \right) - 4\pi / 3 \left[ \left( R_{L} + x \right)^{3} - R_{L}^{3} \right]}$$
(12)

- 28 ---

nach 150  $\mu$ s ergibt sich 33.6 (%))

- Flüssigkeitsanteil F<sub>F</sub>. Aus Gl. (4) ergibt sich

$$F_{F} = \frac{V_{F}}{\Delta V_{V}} [1 \pm (\widetilde{\delta V_{F}} + \widetilde{\delta \Delta V_{V}})]$$
(13)

mit Gl. (8) wird abgeleitet

$$\widetilde{\delta F}_{F} = \widetilde{\delta V}_{F} + \widetilde{\delta \Delta V}_{V} = \widetilde{\delta V}_{F} + 2\widetilde{\delta V}_{V}$$
(14)

nach 150 $\mu$ s ergibt sich 36 (%)

Die hier eingesetzten Werte von Durchmessern sowie der Wasserbewegung stammen aus den Versuchsdaten mit Natrium-Pentan, siehe Abb. 12. Hierbei nimmt die Wachstumsrate sowie die Beschleunigung nach 100  $\mu$ s ihren maximalen Wert und der Flüssigkeitsteil F<sub>F</sub> nach 150  $\mu$ s seinen maximalen Wert  $\Delta n$ . Nach dem maximalen Wert verringert sich jeder Relativfehler, z. B. ergibt sich der Relativfehler des Flüsssigkeitsgehalts V<sub>F</sub> sowie des Flüssigkeitsanteils  $\delta F_F$  nach 500  $\mu$ s von Beginn der Reaktion zu 10.5 % bzw 12.7%. Die zeitlichen Abläufe der Reaktion haben so deutliche Tendenzen, wie nachfolgende Versuchsergebnisse zeigen, daß trotz dieser Fehler gewisse Aussagen aus Versuchsergebnissen und deren Interpretation möglich sind.
### 4. Versuchsergebnisse

### 4.1 Allgemeine Bemerkungen

## 4.1.1 Siedeform

In den Versuchen ohne externen Trigger sowie während des Eintauchens des Natriumtropfens in das Pentan, werden zwei unterschiedliche Siedeformen beobachtet. Wenn die Tropfentemperatur über einen gewissen Wert, hier etwa 140<sup>°</sup>C, liegt, sieht die Grenzfläche zwischen Dampf und Flüssigkeit sowie die Oberfläche des Tropfens glatt aus. Bevor der Tropfen den Boden des Gefäßes erreicht, werden einige Dampfblasen, die die gleiche Größe wie der Tropfen selbst haben, abgetrennt. Diese Beobachtungen weisen darauf hin, daß <u>Filmsieden</u> stattfindet.

Unter 140<sup>0</sup>C ist der Tropfen von einem dickeren Vielblasengebiet umgeben. Daher ist die Kontur des Tropfens nicht klar zu erkennen. Blasen werden noch häufiger aufgebaut und abgetrennt als in dem ersten Fall. Diese Beobachtung wird als ein typisches Anzeichen für eine Form des <u>Blasen - und</u> <u>Übergangssieden</u> gedeutet.

Diese beiden Siedeformen werden durch Beobachtungen mit der Hochgeschwindigkeitskamera zusätzlich bestätigt, siehe Kap. 4.2.2. Die gefundene minimale Filmsiedetemperatur von etwa 140<sup>°</sup>C stimmt mit Spieglers Filmsiedeexperiment mit Pentan /46/ überein.

Im Falle von Silikonöltropfen wurde nur Filmsieden beobachtet. Allerdings muß klargestellt werden, daß die absolute Temperatur des Silikonöltropfens stets höher als die minimale Filmsiedetemperatur war, obwohl die Kontakttemperatur teilweise darunter lag. Die Dicke des Dampffilms ergibt sich zu 0.1 bis 0.2 mm nach der Abschätzung auf den Hochgeschwindigkeitsfilmen (Aufnahmegeschwindigkeit 3000 Bilder pro Sekunde).

Der externe Trigger ist einer der wichtigsten Versuchsparameter. Vor der Durchführung der Versuche mußten daher die charakteristischen Merkmale des Triggerdrucks bekannt sein. Da die Triggerdruckwelle in diesen Versuchen durch eine Drahtexplosion erzeugt wird, kann die Größe des Triggerdrucks dadurch geändert werden, daß die dem Draht zugegebene elektrische Energie, d.h. praktisch die elektrische Spannung für den Kondensator geändert wird. Abb.9 zeigt einen typischen Verlauf der aufgenommenen Triggerdrucksignale. Eine Triggerdruckwelle besteht normalerweise aus mehreren Spitzen. Die erste Spitze ergibt sich nach der Anstiegzeit von einigen Mikrosekunden, dann folgt die zweite Spitze. Da die Eigenfreguenz des Druckmeßkopfs 400k Hz ist, kann eine Anstiegzeit kürzer als 2.5  $\mu$ s nicht genau damit gemessen werden. Dieser Vorgang zwei hoher Spitzen, der insgesamt ca. 30 µs dauert, wird praktisch als ein "Triggerdruckpuls" angesehen. Danach geht der Druck fast auf Systemdruck zurück. 50 µs nach Ankunft den erster Spitze folgt eine dritte Spitze, die fast ein drittel von der ersten ist. Das Ergebnis dauert etwa 10 µs. Diese Druckspitze sollte aus der Reflexion der ersten Spitze an dem Pentanspiegel stammen, weil es etwa 50 µs dauert, bis die erste Spitze nach der Reflexion an dem Pentanspiegel zum Meßort wieder zurückkommt. Nach der noch kleineren vierten Spitze folgt ein negativer Druck, dessen Höhe im Absolutwert so groß wie die vierte positive Spitze ist. Der negative Druck dauert ca. 80  $\mu$ s, aber dessen Absolutwert wird immer kleiner. Der nachfolgende Druck bis zu 0.8 ms nach dem Anfang der Triggerdruckwelle bleibt mehrfach niedriger als der erste "Triggerdruckpuls" und nimmt negative Werte an

Da der externe Trigger ein Versuchsparameter ist, sollte er mit einem oder durch mehrere Werte charakterisiert werden. In Tab. 2 ist eine Reihe von Triggerdruckpulsen anhand von wichtigen Parametern repräsentiert. Hierbei, bedeutet "Druck" Höhe des "Triggerdruckpuls", "Impuls" die zeitliche Integration, (Pdt, und (Pdv die gesamte Arbeit, die bei einer Drahtexplosion zur Verfügung steht. Diese Arbeit wurde durch Auswertung der Hochgeschwindigkeitsfilme abgeschätzt. Die vorliegenden vier Werte sind proportional zueinander. Die qualitativen Verläufe der verschiedenen Triggerdrücke sind untereinander ähnlich.

- 30 ---

Nummer	Elektrische	Druck	Impuls	(pdv	
	Energie (J)	(bar)	(Pa.s)	(J)	
1	0.4	1.6	-	_	
2	0.49	2.4	1.3	1.5	10 <sup>-2</sup>
3	0.64	4.0	20	3.6	10 <sup>-2</sup>
4	0.81	5.0	24	5.0	10 <sup>-2</sup>
5	1.0	6.4	30	-	-
6	1.4	8.0	40	1.2	10 <sup>-1</sup>
7	2.0	11.0	52	2.2	-
8	2.5	15.0	62	2.2	10 <sup>-1</sup>

Tabelle 2: Charakteristische Werte des typischen Triggerdruckpuls.

## 4.1.3. Überblick über die Versuchsserien

In Tab. 3 und Tab. 4 sind die Versuche zusammen mit den wichtigen Versuchsparametern für die Paarung Natrium-Pentan sowie Silikonöl-Pentan zusammengestellt. Dabei bedeutet "Temp.", die gemessene Temperatur der Natriumtropfen bezw. die abgeschätzte Temperatur des Silikonöltropfens. "Trig. Druck" entspricht der Höhe des sogenannten "Triggerdruckpulses", siehe Kap. 4.1.2. Mit "R.Druck" wird der maximale Reaktionsdruck und mit "Verzögerung" der Zeitabstand zwischen der ersten Triggerdruckspitze und der Spitze des Reaktionsdrucks, siehe Kap. 4.2.1., bezeichnet. "Impulsverhältnis" bedeutet das Verhältnis zwischen dem Impuls des Reaktionsdruckpulses und dem des Triggerdruckpulses. Diese drei abgeschätzten Werte sind aus den aufgenommenen Drucksignalen ermittelt. "Fragmentation" entspricht der Beobachtung aus den Hochgeschwindigkeitsfilmen. "Analyse" bedeutet, daß der betreffende Hochgeschwindigkeitsfilm ausgewertet wurde. Eine ausführliche Auswertung der Hochgeschwindigkeitsfilme, um die zeitlichen Verläufe der Reaktion zu erhalten, wurde nur für die Paarung Natrium-Pentan ausgeführt. Außer der in den Tabellen aufgeführten Versuche werden noch weitere Versuchsserien mit beiden Paarungen, wobei in den meisten Fällen nur Reaktionsdrücke aufgenommen worden sind, durchgeführt. Aus den Werten der Tab. 3 und Tab.4 werden folgende allgemeine Bemerkungen abgeleitet:

- Es gibt eine untere Schwelle für den externen Trigger um eine Reaktion bezw. Fragmentation des Tropfens einzuleiten.
- Die Reaktionen hängen von beiden, der Tropfentemperatur und dem Triggerdruck ab.
- Zur Einleitung einer Reaktion werden bei der Paarung Silikonöl-Pentan, immer kleinere externe Trigger benötigt.
- Die Impulsverhältnisse für die Paarung Silikonöl-Pentan sind mehrfach größer als die von Natrium-Pentan.

Um die erste Aussage zu erläutern, sind die Versuchspunkte für die beiden Paarungen Tropfentemperatur und externer Triggerdruck in den Abb. 7, 8 eingetragen. Die beiden Abbildungen zeigen: Es gibt einen minimalen Triggerdruck, genannt  $P_{Tr.min}$ , der erreicht werden muß, um die Reaktion einzuleiten. $P_{Tr.min}$  hängt von der Tropfentemperatur bzw. der Kontakttemperatur bei der Paarung Silikonöl-Pentan ab. Das Minimum von  $P_{Tr.min}$  liegt etwa bei  $T_{HN}$ , also der homogenen Keimbildungstemperatur des Pentans.  $P_{Tr.min}$  steigt in beiden Richtungen der Tropfentemperatur bzw. der Kontakttemperatur an. Über die Versuchsergebnisse mit einzelnen Versuchsparametern und deren weitgehende Diskussion wird in dem nachfolgenden Kapitel 4.3 detaillierter berichtet.

### 4.2 Ablauf der Reaktion

## 4.2.1. Verlauf des Reaktionsdrucks

Aus den gemessenen Druckverläufen der Reaktion können wesentliche charakteristische Merkmale des Reaktionsablaufs entnommen werden. Abb. 10 zeigt in einem Vergleich den Druckverlauf der Reaktion mit der Paarung Natrium-Pentan und den Triggerdruck allein. Der Verlauf A bzw. B ist mit entsprechenden Druckmeßköpfen aufgenommen, siehe Abb. 3. Wie in Abb. 10 deutlicher zu erkennen ist, steigt die erste Druckspitze mit der Anstiegszeit 2 bis 3  $\mu$ s an. Diese Anstiegszeit muß sich aus der Eigenfrequenz des Meßkopfes, 400 kHz, ergeben. Der erste Druckpuls, mit 2 Spitzen, steht etwa 30  $\mu$ s an. In dieser Zeitspanne ist der Verlauf mit Reaktion und der des Triggerdrucks allein vollständig identisch. Daher ist dieser Druckpuls "Trig-

gerdruckpuls" oder "Triggerdruckbereich" zu nennen. Danach folgt im Verlauf mit Reaktion eine erneute Druckerhöhung mit der längeren Anstiegszeit von 20  $\mu$ s und dauert 60 bis 80 $\mu$ s. Dies ist mehrfach länger als der Triggerdruckpuls selbst. Durch diesen längeren Druckpuls unterscheiden sich deutlich der Triggerdruckpuls und der Druck infolge der thermischen Reaktion zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit. Dieses zweite Ergebnis ist "Reaktionsdruck" zu nennen. Hierbei ist anzumerken, daß die Spitze in dem Reaktionsdruck des Verlaufs A höher als die des Verlaufs B ist. Dies ist mit der geometrischen Anordnung der Meßköpfe zu begründen. Wie Abb. 3 zeigt, ist der Meßkopf A näher dem vorausgesetzten Reaktionsort als der Meßkopf B. Mit Hilfe beider Signale und des Rechencodes /54/, siehe Anhang B, kann der wirkliche Reaktionsdruck am Reaktionsort abgeschätzt werden. Daraus ergibt sich, daß die Reaktionsdrücke am Reaktionsort nur um den Faktor 1.2 größer sein sollten, als die mit dem Meßkopf A gemessenen Druckwerte, d.h. der hier gezeigte Druckpuls repräsentiert den Reaktionsdruck am Tropfen recht gut.

Die Verzögerungszeit der Reaktionsdruckspitze zur ersten Spitze des Triggerdruckpulses ist etwa 50 µs. Es ist zu bemerken, daß keine Millisekunden dauernde Verzögerungszeit beobachtet wurde, d.h. die Reaktion der Paarung Natrium-Pentan sollte immer einer "Prompten Fragmentation" nach Ando /42/ entsprechen.

Das Impulsverhältnis bleibt bei etwa 1.5. Wie in der Tab. 3 gezeigt, nehmen die Versuchsergebnisse mit anderen Versuchsparametern ebenfalls die gleichen Werte für die Impulsverhältnisse an. Abb. 11 zeigt den typischen Druckverlauf der Reaktion mit Silikonöl und einem etwa gleich hohen Trigger allein. Zunächst kommt eine Druckspitze an, die einige Mikrosekunden dauert. Danach folgt der etwa 20  $\mu$ s dauerende Druckpuls, der aber nur ungefähr halb so hoch wie die erste Spitze ist. Diese beiden stammen aus der Drahtexplosion. Im Druckverlauf der Reaktion scheint es anders. Nach dem ersten Puls (Triggerdruckpuls) folgt eine Druckerhöhung mit mehreren freien Spitzen. Nach etwa 20  $\mu$ s erreicht der Druck sein Maximum und fällt dann ab. Dieses Druckergebnis dauert länger als 250  $\mu$ s. Die beiden Druckverläufe mit und ohne Reaktion unterscheiden sich durch diese Druckerhöhung. Dies ist daher mit dem Reaktionsdruck beim Silikonölversuch identisch.

— 33 —

Auch mit Silikonöltropfen wurde keine "Verzögerte Fragmentation" mit bis zu mehreren Millisekunden Verzögerung beobachtet.

Es ist nicht möglich, die Druckverläufe von Natriumtropfen und von Silikonöltropfen miteinander direkt zu vergleichen, weil die Größen des Tropfens sowie die Geometrie des Versuchgefäßes unterschiedlich sind. Aber es ist festzustellen, daß das Impulsverhältnis des Reaktionsdrucks zum Triggerdruckpuls bei der Paarung Silikonöl-Pentan mehrfach größer als das bei der Paarung Natrium-Pentan ist, siehe Tab. 3 und 4.

### 4.2.2 Reaktionsvorgang nach Hochgeschwindigkeitsfilmen

In Abb. 12 ist der zeitliche Ablauf eines typischen Versuches mit Fragmentation für Natriumtropfen bei  $T_1 = 150^{\circ}C$ ,  $P_{Tr} = 10$  bar wiedergegeben. Alle Werte mit Ausnahme des Druckverlaufs wurden durch direkte Auswertung des Hochgeschwindigkeitsfilms genommen. Dabei zeigt das obere Diagramm die zeitlichen Verläufe des Reaktionsdrucks und des Volumens des gesamten Reaktionsgebietes, das mittlere, die der Wachstumsgeschwindigkeit und der Beschleunigung der Grenzfläche und das untere Diagramm, die des Flüssigkeitsgehaltes und der Vermischungsrate in der Reaktionszone. Die Reaktionszone ist als das netto expandierende Volumen,  $V_V$ , definiert, siehe Abb. 5. Die Werte im unteren Diagramm wurden mit der in Kap. 3.2.2 beschriebenen Methode abgeschätzt.

Abb. 13 gibt eine Serie von Bildern aus dem betreffenden Hochgeschwindigkeitsfilm wieder. Die Aufnahmegeschwindigkeit ist 8000 Bilder pro Sekunde. Die Bilder von Nummer 1 bis 13 entsprechen der ursprünglichen Bildfolge, die Bilder nach Nummer 14 wurden ausgewählt. Die angeschriebenen Zeiten beziehen sich auf den Zeitabschnitt nach der Ankunft des Triggerdruckpulses am Tropfen.

In Abb. 14 ist das Wachstum des Volumens der Reaktionszone in der Reaktion wie auf den Bildern beobachtet symbolisch wiedergegeben. Aus dieser Abbildung ist auch der Flüssigkeitsanteil in der Reaktionszone zu entnehmen. Aus den vorliegenden Diagrammen und der Bildserie läßt sich der Reaktionsvorgang in folgende sechs Phasen unterteilen. Jede Phase ist mit einer römischen Zahl gekennzeichnet, siehe Abb. 12.

(I) Filmsieden

- Zeitraum : ca. 1 ms vor Ankunft des Triggerdruckpulses
- Bildnummern: auf Abb. 13 : 1

Auf dem Bild wird folgendes beobachtet: Die Kontur der Oberfläche des Tropfens erscheint dunkel, aber glatt. Obwohl der Dampffilm selbst erkennbar ist, sollte Filmsieden stattfinden. Der zentrale helle Fleck auf dem Tropfen ist auf die Reflektion des Lichtblitzes zurückzuführen. In dieser Phase wurde weder eine Bewegung noch Verformung des Tropfens beobachtet. Da die Fallgeschwindigkeit des Tropfens im Zustand des Filmsiedens ungefähr 0.5 mm/ms beträgt, ist es nicht möglich, eine Fallbewegung zu erkennen. In dieser Phase ist eine direkte Wechselwirkung zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit nicht zu beobachten. Diese Phase entspricht somit dem Ausgangszustand vor der Reaktion.

(II) Filmzusammenbruch und Direktkontakt

Zeitraum : Nach Ankunft des Triggerdruckpulses bis ca. 50 مر. Bildnummer: 2 bis 5

Der Filmzusammenbruch erfolgt so rasch, daß der genaue Vorgang auf den Bildern nicht beobachtet werden kann. Innerhalb von zwei Bildern, Bildnummern 1 bis 3, d.h. während eines Zeitraumes von etwa 25  $\mu$ s wird die Fläche des Tropfens teilweise weiß und silberfarbig. Auf dem Bild 2 ist dieser Farbumschlag an der unteren Halbkugel des Tropfens passiert. Auf dem oberen Teil des Tropfens ist ein relativ dicker Dampfraum zu beobachten, dessen Kontur nicht rund, sondern recht unregelmäßig aussieht. Dieser Dampfraum wird im Verlauf der Zeit, Bilder 3, 4 und 5, immer kleiner. Gleichzeitig erfolgt ein Farbumschlag von silbrig weiß zu matt weiß in dem mittleren Teil des Tropfens und wächst mit dem Zeitablauf.

In dem betrachteten Zeitraum wird weder ein deutlicher Druckanstieg, noch ein wesentliches Wachstum der Reaktionzone beobachtet. Ein Flüssigkeitsgehalt in der Reaktionszone ist noch nicht meßbar. Der hier beobachtete Farbumschlag der Grenzfläche von dunkel nach silber ist auf die Verdünnung des Dampffilms oder sogar auf die lokalen Direktkontakte zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit zurückzuführen., d.h. der Filmzusammenbruch erfolgt innerhalb dieses Zeitraums, von etwa 25 µs. So rasch ereignet sich der Filmzusammenbruch, daß der genaue Vorgang auf den Bildern nicht beobachtet werden kann. Der später erscheinende matte, weiße Gürtel im mittleren Teil des Tropfens entspricht der mit dem Direktkontakt verbundenen lokalen Verdampfung. Derartige Veränderungen beginnen nicht immer im unteren Bereich des Tropfens, wo die Triggerdruckfront zuerst ankommt, sondern oft wie hier gezeigt, in dem mittleren Teil des Tropfen insbesonders dann, wenn der Triggerdruck relativ niedrig ist. Diese Beobachtung wird bei der Diskussion über den Mechanismus der Einleitung einer Reaktion berücksichtig werden.

(III) Rasche Verdampfung und Fragmentation

- Zeitraum : 50 - 125 μs - Bildnummer : 5 - 11

Am Anfang dieser Phase, was der Bildnummer 5 bis 7 entspricht, breiten sich weiterhin matte, weiße Flecke auf der Oberfläche des Tropfens aus. Nach 100 µs, Bildnummer 9, ist die Oberfläche des Tropfens vollständig weißmatt. In dem oberen Teil des Tropfens finden kleine Eruptionen statt, aber noch ist keine sichtbare Verformung des Tropfens selbst zu beobachten. Die Reaktionszone expandiert in alle Richtungen.

Wie aus Abb. 12 zu entnehmen ist, steigt der Reaktionsdruck an, ebenso die Beschleunigung des Wachstums der Reaktionszone. Kurz vor 100  $\mu$ s wird der maximale Wert von  $1.2 \cdot 10^5$  m/s<sup>2</sup> erreicht. Mit einer kurzen Zeitverzögerung, etwa 30  $\mu$ s, folgt auch das Maximum der Wachstumsgeschwindigkeit der Reaktionszone mit 8 m/s. Am Ende dieser Phase geht der Reaktionsdruck auf Systemdruck zurück und die Beschleunigung nimmt negative Werte an. Der geringste Wert ergibt sich zu etwa  $-4.10^4$  m/s<sup>2</sup>. Erst nach 87.5  $\mu$ s, Bildnummer 8, beginnt der Flüssigkeitsanteil zu steigen und erreicht innerhalb von 50  $\mu$ s das Maximum mit 56%. In dem Zeitraum, in dem der Flüssigkeitsanteil zunimmt, wird die ganze Oberfläche des Tropfens weißlich matt, siehe Abb. 11, Bildnummer 9, 10 und 11. Diese Erscheinung ist deckungsgleich mit dem Anstieg des Flüssigkeitsanteils in der Reaktionszone, also der Vermischung mit Flüssigkeit. Durch diese Abschätzung ist hiermit zum ersten Mal quantitativ nachgewiesen, daß eine Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit stattfindet.

Punkt B auf Abb. 12 zeigt die Flüssigkeitsmenge, die verdampfen könnte, wenn alle thermische Energie des Tropfens zur Verdampfung der Flüssigkeit beitragen würde. Weitere Diskussionen darüber steht im nachfolgenden Kap. 5.1.5.

Bezogen auf den Gesamtablauf der Reaktion erreichen in dieser dritten Phase der Reaktionsdruck, die Beschleunigung bzw. die Expansionsgeschwindigkeit der Reaktionszone und die Vermischungsrate mit der Flüssigkeit, die maximalen Werte. Es ist daher anzunehmen, daß während dieser Phase III, die ca. 75 µs dauert, die wichtigsten Reaktionsvorgänge, nämlich Verdampfung der erhitzten Flüssigkeit, Fragmentation des Tropfens und Vermischung mit der Flüssigkeit stattfinden. Daher wird diese Phase "rasche Verdampfung und Fragmentation" genannt.

(IV) Übergang

Zeitraum : 125 - 200 µs Bildnummer : 11 - 15

Während dieses Zeitraums wird keine sichtbare Veränderung an der Struktur der Grenzschicht der Reaktionszone beobachtet. Die Reaktionszone wächst weiterhin in alle Richtungen. Auch die kleinen Eruptionen, die schon in der Phase III beobachtet worden sind, verstärken sich.

Der Reaktionsdruck geht auf den Systemdruck zurück, es folgt kein weiterer Druckpuls. Die Beschleunigung der Reaktionszone, die zum Ende der Phase III negative Werte annahm, kommt noch einmal in den positiven Bereich zurück. Das zweite Maximum der Beschleunigung ergibt sich zu ca.  $4 \cdot 10^4$  m/s<sup>2</sup>, d.h. nur ein drittel des Maximums der Phase III. Nach 30  $\mu$ s erreicht sie nochmals negative Werte zurück. Am Anfang der Phase IV geht die Wachstumsgeschwindigkeit auf 5.5 m/s zurück, um danach wieder anzusteigen. Es wird ein

--- 37 ----

zweites Maximum mit 6.5 m/s, das aber deutlich kleiner als das erste der Phase III ist. Der Flüssigkeitsanteil in der Reaktionszone geht von 56% auf 40% zurück. Die Vermischungsrate nimmt von 6 m/s auf 2 m/s ab.

(V) Langsame Vermischung und Expansion

Zeitraum : 200 - 500 µs Bildnummer : 15 - 19

Die Oberfläche der Reaktionszone wird nicht mehr so glatt wie zuvor, sondern es werden, insbesonders am Ende dieser Phase V, Bildnummer 18 und 19, kleine "Vorsprünge" nach der umgebenden Flüssigkeit auf der Oberfläche der Reaktionszone sichtbar. Diese haben schätzungsweise einige zehntel Millimeter Tropfendurchmesser und erscheinen in den Bildern als weiße Punkte auf der Grenzfläche der Reaktionszone. Die Kontur der Reaktionszone wird zunehmend unschärfer deutlich erkennbar am Ende dieser Phase V.

Der Reaktionsdruck ist offenbar nicht größer als der Systemdruck. Die Wachstumsgeschwindigkeit der Reaktionszone bleibt jedoch im Zeitraum zwischen 200 bis 400  $\mu$ s fast konstant, bei 6 m/s. Daher wächst das Volumen der Reaktionszone weiter. Die Vermischungsrate steigt wieder an und damit nimmt auch Der Flüssigkeitsanteil zu. Allerdings ist das zweite Maximum der Vermischungsrate mit 4 m/s stets niedriger als das erste Maximum während der Phase III mit 6.5 m/s. Es wird daher vermutet, daß der Vermischungsvorgang in dieser Phase V auf andere Ursachen und Mechanismen zurückgeht als in der Phase III.

Das charakteristische dieser Phase V zeigt sich in einem weiteren Wachstum der Reaktionszone und des Flüssigkeitsanteils in der Reaktionszone ohne daß ein deutlicher Reaktionsdruck aufgebaut wird. Diese Phase wird deshalb "Langsame Vermischung und Expansion" genannt.

. . . . .

(VI) Kondensation

Zeitraum : 500 µs bis ca. 1 ms Bildnummer : 20 und 21 In dem Zeitraum nach 500 µs wird kein weiteres Wachstum der Reaktionszone in den Hochgeschwindigkeitsbildern beobachtet, 20 bis 21 auf Abb. 13. Die Abgrenzung zwischen der Flüssigkeit und der Reaktionszone verschwimmt nach und nach. Gleichzeitig werden zum ersten Mal Fragmente von Natrium sichtbar, deren Positionen teilweise mit den in der Phase V beobachteten "Vorsprünge" an der Oberfläche der Reaktionszone übereinstimmen. Die Fragmente können als weiße Punkte auf den Bildern erkannt werden. Diese weißen Punkte, also Fragmente von Natrium, sind insbesonders in Bild 21 zu sehen.

Die Wachstumsgeschwindigkeit der Reaktionszone sowie die Vermischungsrate fällt auf Null zurück. Daher nehmen auch das Volumen der Reaktionszone und der Flüssigkeitsanteil in der Reaktionszone ab. Während der ersten 100 µs dieser Phase VI ist ein geringfügiges Wachstum des Volumens sowie des Flüssigkeitsanteils zu beobachten. Anschließend nehmen diese Werte wieder ab. Das erreichte Maximum der Wachstumsgeschwindigkeit, zum Beispiel, bleibt jedoch um den Faktor 7 bis 8 niedriger als das während der Phase III oder V. Da die Abnahme des Reaktionsvolumens auf der Kondensation des Dampfes beruht, wird diese Phase VI mit "Kondensation" bezeichnet.

Nach dem Ende des hier beschriebenen ersten Reaktionsvorganges oder in dem Zeitraum, während dessen sich die Reaktionszone wieder zusammenzieht, findet manchmal eine zweite Reaktion statt (nicht gezeigt Abb. 13). Der damit verbundene Druckaufbau ist zu klein, um ihn zu erkennen. Bei diesem Vorgang findet, wie auf dem Hochgeschwindigkeitsfilm beobachtet werden konnte, eine zweite Fragmentation des zunächst unfragmentierten Anteils des Tropfens statt.

## 4.2.3. Zusammenfassung

Es wurden die beobachteten Vorgänge und die charakteristischen Merkmale einer typischen Reaktion mit Natrium und Pentan erläutert. Damit ist gezeigt, wie eine Raktion abläuft. Es folgt nun die Zusammenfassung der wichtigsten Beobachtungen des Reaktionsvorganges:

 Ein Reaktionsdruck tritt nach einer gewissen Verzögerungszeit, etwa 50μs, nach der Ankunft des Triggerdruckpulses auf. Er führt zu einem längeren Druckaufbau, ca. 80 μs bei Natriumtropfen und ca. 250 μs bei Silikonöltropfen, als der Triggerdruckpuls selbst, der nur 20 bis 30 μs ansteht.

- Das Impulsverhältnis für die Paarung Silikonöl-Pentan ist mehrfach größer als für Natrium-Pentan.
- Der Reaktionsvorgang bei der Paarung Natrium-Pentan wird wie folgt unterteilt:
  - (I) Filmsieden
  - (II) Filmzusammenbruch und Direktkontakt
  - (II) Verdampfung und Fragmentation
  - (IV) Übergang
  - (V) Langsame Vermischung
  - (VI) Kondensation
- Beim Wachstum der Reaktionszone findet eine Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit statt. Infolge dessen enthält die Raktionszone eine gewisse Menge unverdampfter Flüssigkeit.
- Die Fragmentation des Tropfens findet überwiegend in der Phase III statt.
- Die Vermischung mit der Flüssigkeit findet überwiegend während der Phase III und Phase IV statt. Die Vermischungsmechanismen der beiden Phasen gehen auf unterschiedliche Ursachen zurück.

### <u>4.3 Einfluß der Versuchsparameter</u>

### 4.3.1 Zeitlicher Verlauf bei verschiedenen Versuchsparametern

In den Abb. 15 bis 18 sind die Versuchsergebnisse mit Natriumtropfen zum Vergleich bei verschiedenen Versuchsparametern gezeigt. Alle Abbildungen sind in der gleichen Weise wie in Abb. 12 dargestellt.

Abb. 15 zeigt die zeitlichen Verläufe der wichtigsten Werte des Reaktionsvorgangs für eine niedrigere Tropfentemperatur von 120<sup>0</sup> C. Als Triggerdruck wurde hier auch 10 bar gewählt. Nach dem Film ist zu beobachten, daß kein Filmsieden während der ersten Phase stattfindet, sondern ein typisches Übergangssieden mit größeren Dampfblasen. Nachdem die externe Triggerdruckfront am Ort des Tropfens angekommen ist, steigt zunächst der Reaktions-

druck mit einer gewissen Zeitverzögerung von ca. 60  $\mu$ s an, die mit der in Abb. 10 vergleichbar ist. Der Reaktionsdruck ist jedoch um etwa den Faktor 3 schmäler und um den Faktor 2 niedriger als der für höhere Tropfentemperatur 150 <sup>O</sup>C in Abb. 12 gezeigten. Die Beschleunigung und die Geschwindigkeit des Wachstums der Reaktionszone steigen ebenfalls an. Fast gleichzeitig steigt die Vermischungsrate gefolgt vom Flüssigkeitsanteil in der Reaktionszone selbst. Damit ist die Phase III deutlich zu erkennen. Die erreichten Maximalwerte der Beschleunigung, der Wachstumsgeschwindigkeit und der Vermischungsrate sind jedoch deutlich kleiner als die in Abb. 12 mit der hohen Tropfentemperatur von 150 <sup>O</sup>C gezeigten. Danach geht der Druck auf den Systemdruck zurück und ebenso die anderen Werte. Dieser Zeitraum kann wieder mit der Phase IV gekennzeichnet werden. Eine konstante Wachstumsgeschwindigkeit der Reaktionszone und die Wiederherstellung der Vermischungsrate erfolgen während der Phase V. Der Maximalwert der Vermischungsrate in der Phase V ist jedoch nur halb so groß wie der in Abb. 12. Allgemein ist folgendes festzustellen: Die Reaktion oder die Fragmentation läuft bei niedrigerer Tropfentemperatur (120°C) milder ab, als bei höherer Tropfentemperatur (150°C), wenn der gleiche Triggerdruckpuls angewandt wird.

Abb. 16 zeigt nun den Reaktionsvorgang bei einer höheren Tropfentemperatur, 400  $^{O}$ C, aber gleichen Triggerdruck von 10 bar. Auch dieser Reaktionsvorgang läßt sich in sechs Phasen wie in Abb. 12 mit der Tropfentemperatur von 150  $^{O}$ C unterteilen. Der maximale Reaktionsdruck ergibt sich zu 8 bar, der kleiner als die 12 bar bei 150  $^{O}$ C ist. Die Beschleunigung und die Geschwindigkeit des Wachstums der Reaktionszone nehmen niedrigere Werte an, wie auch die Vermischungsrate und der Flüssigkeitsanteil. Aus den Ergebnissen ist festzustellen, daß die Vermischung mit Flüssigkeit bei 400  $^{O}$ C in Abb. 16 während der Phase V verglichen mit der Reaktion mit der niedrigeren Tropfentemperatur, 120  $^{O}$ C, eine relativ größere Rolle spielt, obwohl in den beiden Fällen nur relativ milde Reaktionen stattfinden. Der Versuch mit einer mittleren Tropfentemperatur von 150  $^{O}$ C ergab dem\_gegenüber die heftigste Reaktion.

Vergleiche zwischen Versuche mit verschieden hohen externen Triggerdrücken wurden ebenfalls durchgeführt. Abb. 17 zeigt die ausgewerteten Reaktionsvorgänge eines Versuchs mit dem Triggerdruck  $P_{Tr} = 4$  bar und der Tropfentemperatur  $T_T = 180$  <sup>O</sup>C, und Abb. 18 mit  $P_{Tr} = 8$  bar und  $T_T = 180$  <sup>O</sup>C. Beide gehen von einer gleichen Tropfentemperatur aus. Alle abgeschätzten maxima-

-- 41 ---

len Werte des Versuchs mit dem größeren Triggerdruck, 8 bar, sind um den Faktor 1.5 bis 2 größer als die mit dem kleineren Triggerdruck mit Ausnahme des Volumenverhältnisses V/Vo. Die größten Unterschiede ergeben sich beim Reaktionsdruckpuls, der Beschleunigung des Wachstums der Reaktionszone und der Vermischungsrate mit der Flüssigkeit, also während der Phase III. Das heißt, daß ein externer Trigger nicht nur den Dampffilmzusammenbruch, sondern auch die Verdampfungs- und Fragmentationsphase beeinflußt.

Trotz dieser Unterschiede sind die zeitlichen Verläufe der Wachstumsgeschwindigkeit, der Beschleunigung der Reaktionszone und der Vermischungsrate der Flüssigkeit sowie des Flüssigkeitsanteils bei allen Versuchen ähnlich. Die in Kap. 4.2.2 beschriebenen sechs Phasen sind auch hier deutlich zu unterscheiden. Daraus ergibt sich, daß die sinnvolle Unterteilung in sechs Phasen im allgemeinen erscheint.

### 4.3.2 Reaktionsdruck und Verzögerungszeit

Um den Einfluß der Tropfentemperatur auf die Reaktion deutlich zu machen, sind in Abhängigkeit der Tropfentemperatur der maximale Reaktionsdruck in Abb. 19 und die maximale Vermischungsrate mit der Flüssigkeit in der Phase III in Abb. 20 für das System Natrium-Pentan wiedergegeben. Die beiden Diagramme zeigen folgendes:

- Für den Triggerdruck, 10 bar, ergeben sich deutlich größere Reaktionsdrücke und Vermischungsraten (Faktor  $\sim$  1.5) in dem Temperaturbereich zwischen T<sub>HN</sub> und T<sub>Kr</sub> als außerhalb dieses Temperaturbereichs.
- Bei kleinerem Triggerdruck, 4 bar, nehmen die Reaktionsdrücke fast gleich hohe Werte an, also 3 bis 4 bar. Diese Werte sind immer kleiner als die bei einem Triggerdruck von 10 bar jeweils gleich hohe Tropfentemperatur vorausgesetzt.
- Auch bei höherer Tropfentemperatur von 360 <sup>O</sup>C, ergibt sich der größere Reaktionsdruck von etwa 10 bar, wenn ein größerer Triggerdruck von 15 bar aufgegeben wird.

 Die Vermischungsrate bei kleinerem Triggerdruck von 4 bar, ist nur halb so groß wie die bei 10 bar. Diese Auswertung wurde nur für eine Tropfentemperatur von 180 <sup>O</sup>C durchgeführt.

Die Abb. 21 zeigt den maximalen Reaktionsdruck im System Silikonöl-Pentan für die jeweilige Tropfentemperatur, dabei ist der Triggerdruck fast konstant zwischen 0.8 bis 1.3 bar. die Punkte auf der Abbildung kommen aus einer Versuchsserie, die in Tab. 4 nicht beschrieben ist. Die gezeigten Tropfentemperaturen sind mit der in Anfang A beschriebenen Methode korrigiert worden. Sie entsprechen gerade der Tropfentemperatur vor Ankunft des Triggerdruckpulses. Nach Anfang A kann insbesondere der Abfall der Oberflächentemperatur des Silikonöltropfens während des Filmsiedens nicht vernachlässigt werden. Auch hier ist zu entnehmen, daß der sich aufbauende Reaktionsdruck deutlich ansteigt, wenn die Kontakttemperatur T<sub>K</sub> über T<sub>HN</sub>= 145 °C, liegt. Bei einer Kontakttemperatur von 180 °C erreicht der Reaktionsdruck sein Maximum. Der Unterschied zwischen diesem Maximum und den niedrigeren Werten bei niedrigerer Kontakttemperatur liegt etwa bei Faktor 2.5. Über einer Kontakttemperatur von 180 <sup>O</sup>C nehmen die gemessenen Reaktionsdrücke ab. Bei derartigen Versuchen wurde folgendes beobachtet: Nach der Reaktion bleiben unfragmentierte Anteile des Tropfens im Zustand des Filmsiedens bestehen, da zunächst nur ein Anteil des Tropfens an der Reaktion beteiligt ist. Dieser Vorgang wird als "Teilweise Fragmentation" bezeichnet. Der sich aufbauende Reaktionsdruck fällt daher niedriger aus als der bei niedrigerer Kontakttemperatur. Da es bei Versuchen mit Silikonöl nicht möglich war, den Tropfen so zu erhitzen, daß eine Kontakttemperatur über der kritischen Temperatur des Pentans, 198 <sup>O</sup>C, erreicht wurde, ist der gemessene Bereich eingeschränkt. Dennoch ist eine Tendenz zu erkennen, daß sich die Reaktionsdrücke im Temperaturbereich nahe von T<sub>Kr</sub> bezogen auf die Kontakttemperatur wesentlich reduzieren. Die Tendenz stimmt mit den Versuchen mit Natriumtropfen, Abb. 19 überein.

Die Verzögerungszeit, die als der zeitliche Abstand zwischen dem maximalen Triggerdruckpuls und dem maximalen Reaktionsdruck definiert ist, ist auch ein wichtiger zu berücksichtigender physikalischer Wert. Die Verzögerungszeit setzt sich grob aus folgenden physikalischen Vorgängen zusammen: Dampffilmzusammenbruch, erste Wechselwirkungen zwischen heißen Tropfen und kalter Flüssigkeit, bestimmt durch Wärmeübertragung und Verdampfung der überhitzten Flüssigkeit und schließlich Reaktionsdruckaufbau. D.h., die Verzögerungszeit kann als eine charakteristische Größe für die Auswirkungen eines externen Triggerdrucks auf den Reaktionsdruckaufbau angesehen werden. Er bestimmt wesentlich die Heftigkeit der Anfangsphase der Reaktion. Abb. 22 und Abb. 23 geben die Verzögerungszeiten als Funktion der Tropfentemperatur bzw. des Triggerdrucks für die Paarung Natrium-Pentan wieder. Abb. 22 zeigt, daß für Temperatur niedriger als  $T_{Kr}$  sich die Verzögerungszeit verringert, über  $T_{Kr}$  steigt sie wieder an. Diese Funktion ist gegenläufig zu der des Reaktionsdrucks in Abb. 19. Abb. 23 zeigt weiterhin dieses gegenläufige Verhalten der Verzögerungszeit zum maximalen Reaktionsdruck sehr deutlich. Eine kürzere Verzögerungszeit wird sich infolge einer heftigeren Wechselwirkung zwischen Tropfen und Flüssigkeit zum Beispiel bedingt durch einen höheren Wärmeübergang vom heißen Tropfen zur kalten Flüssigkeit ergeben. Diese stärkere Wechselwirkung führt zu einem höheren Reaktionsdruckaufbau.

In Abb. 24 ist für die Paarung Silikonöl-Pentan die Verzögerungszeit als Funktion der Kontakttemperatur aufgetragen. Unterhalb einer Kontakttemperatur von 180 <sup>O</sup>C zeigt die Verzögerungszeit ebenfalls eine abnehmende Tendenz mit der Kontakttemperatur. Im Vergleich mit den Ergebnissen der Paarung Natrium-Pentan scheinen die Verzögerungszeiten des Silikonöl-Pentan im allgemeinen die kleineren Werte, durchschnittlich 40  $\mu$ s, zu ergeben. Da ein Versuch mit einer Kontakttemperatur über 180<sup>O</sup> C bei der Paarung Silikonöl-Pentan nicht möglich war, ist offen, ob sich eine steigende Tendenz der Verzögerungszeit über T<sub>Kr</sub> ergibt.

### 4.3.3 Zusammenfassung

Es folgt eine Zusammenfassung der Einflüsse der verschiedenen Versuchsparameter auf die Versuchsergebnisse:

Im Temperaturbereich T<sub>HN</sub> (T<sub>K</sub> (T<sub>K</sub>, ergeben sich die heftigsten Reaktionen mit hohen Reaktionsdrücken und Vermischungsraten mit der Flüssigkeit bezogen auf einen gewissen Triggerdruck. Dieser Bereich ist daher als der energetisch ergiebigste anzusehen. In diesem Sinne entspricht er gut der seit langem bekannten "Thermischen Interaktionszone" (TIZ).

--- 44 ----

- Der externe Triggerdruck setzt nicht nur die Reaktion in Gang, sondern er beherrscht auch den ganzen Vorgang bis hin zum Aufbau des Reaktionsdrucks, der durch die Verdampfung von überhitzter Flüssigkeit und Fragmentation des Tropfens verursacht wird.
- Um eine voll ausgebildete Reaktion eines Tropfens bei extrem hoher Tropfentemperatur, also weit über T<sub>Kr</sub> der Flüssigkeit, bezogen auf die Kontakttemperatur zu erreichen, ist ein größerer externer Triggerdruck erforderlich.
- Eine heftige Reaktion verbunden mit einem hohen Reaktionsdruck bedingt eine kurze Verzögerungszeit.

### 4.4 Energetik des Triggers und der Reaktion

Für die auf den Bildern ausgewerteten Versuchen mit Natriumtropfen kann die thermodynamische Arbeit der Reaktion mit der Gleichung (Pdv abgeschätzt werden. Mit der gleichen Methode kann auch die gesamte thermodynamische Arbeit des Triggers, die während der Drahtexplosion freigesetzt wird, abgeschätzt werden. Allerdings steht nur ein geringer Teil dieser Triggerarbeit der Reaktion zwischen heißen Tropfen und kalter Flüssigkeit zur Verfügung. In folgender Tabelle 5, sind einige typische Versuche mit Natriumtropfen beider Arbeiten mit der thermischen Energie (ohne Erstarrungsenergie) des Natriumtropfens verglichen.

	V.19	V.20	V.36
Tropfentemp. T <sub>T</sub> ( <sup>O</sup> C)	180	180	360
Triggerdruck	4	8	15
P <sub>Tr</sub> (bar)	,		
Thermische Energie	11	27	32
E <sub>th</sub> (J) Triggerarbeit	3.6 <sup>.</sup> 10 <sup>-2</sup>	1.2-10 <sup>-1</sup>	2.2·10 <sup>-1</sup>
(J)			
Reaktionsarbeit (J)	5.6.10-3	5.1.10-2	8.6.10 <sup>-2</sup>
Querschnittsfaktor			
des Tropfens zum Gefäß	3.3-10 <sup>-2</sup>	6.0 10 <sup>-2</sup>	3.1•10 <sup>-2</sup>

# <u>Tabelle 5:</u> Vergleich zwischen thermischer Energie und Reaktionsarbeit für System Natrium/Pentan

Diese Rechenbeispiele zeigen, daß eine höhere Tropfentemperatur und ein größerer Triggerdruck eine höhere Reaktionsarbeit mit sich bringen. Die gesamte Triggerarbeit selbst ist größer als die entsprechende Reaktionsarbeit. Der wirksame Anteil der Triggerarbeit, der durch Multiplizierung mit dem Querschnittsfaktor abgeschätzt werden kann, ist jedoch erheblich kleiner als die Reaktionsarbeit. Die sich daraus ergebenden Werte betragen nur ein zehntel bis ein fünftel der jeweiligen Reaktionsarbeit. D.h. die eingesetzte Triggerarbeit allein ist zu klein, um die Reaktion voll in Gang zu setzen. Dabei spielt die thermische Energie eine dominante Rolle. Allerdings bleibt der Konversionsfaktor von thermischer in thermodynamischer Arbeit sehr gering, bei etwa 0.3%.

# 4.5 Analyse der Fragmente von Natriumtropfen

Die Natriumfragmente erstarren nach einer Reaktion und können somit nachuntersucht werden. Feine Fragmente sind im allgemeinen kugelförmig, obwohl es einige große Bruchteile mit Durchmesser größer als 1 mm, gegeben hat. Dies ist ein sicheres Anzeichen, daß die Fragmentation vor der Erstarrung des Natriums stattgefunden hat. Abb. 25 und Abb. 26 zeigen die Ergebnisse der Analyse der Fragmente. In allen Fällen ist ein fast gleicher externer Triggerdruck von etwa 10 bar aufgegeben worden. als Tropfentemperatur wurde  $120^{\circ}$  C,  $150^{\circ}$  C,  $200^{\circ}$  C und  $400^{\circ}$  C ausgewählt. Abb. 25 zeigt die Massenanteile der Fragmente für die jeweilige Gruppe der Fragmente. Bei einer Tropfentemperatur von  $120^{\circ}$  C und  $400^{\circ}$  C ist der Anteil an Fragmenten, deren Durchmesser über 1 mm groß ist, etwa 50%. Das ist doppelt so groß wie der bei  $150^{\circ}$  C bzw.  $200^{\circ}$  C. Hierzu kommt, daß der Anteil von kleineren Fragmenten, also 0.2 bis 0.5 mm, bei  $150^{\circ}$  C bzw.  $200^{\circ}$  C mehrfach größer ist, als der bei  $120^{\circ}$  C bzw.  $400^{\circ}$  C. Diese Verhältnisse stellen sich klar vor, wenn der durchschnittliche Durchmesser angenommen wird. Der durchschnittliche Durchmesser, D, für  $150^{\circ}$  C sowie  $200^{\circ}$  ca. 1.2 mm ist deutlich kleiner als der für  $120^{\circ}$  C sowie  $400^{\circ}$  C, ca. 1.5 mm. Abb. 26 zeigt zahlenmäßige Anteile auch für jeweilige Gruppen der Fragmente. Der Anteil der Fragmente bis 0.5 mm auf dem Durchmesser für  $150^{\circ}$  C und  $200^{\circ}$  C ist größer als der für die andere Tropfentemperatur.

Aus diesen Ergebnissen der Nachuntersuchung der Fragmente ergeben sich folgende Aussagen: Im Temperaturbereich zwischen 150<sup>°</sup> C und 200<sup>°</sup> C hat tatsächlich eine heftige Fragmentation stattgefunden, die zu feinen Fragmenten führte. Dieser Temperaturbereich ist verbunden mit der "thermischen Interaktionszone" (TIZ), bei der sich heftige Reaktionen mit hohen Reaktionsdrücken und Vermischungsraten mit Flüssigkeit ergaben.

### 5. Diskussion der Versuchsergebnisse

### 5.1 Physikalische Erklärung der Reaktionsvorgänge

Im letzten Kapitel wurden Versuchsergebnisse über den Reaktionsvorgang und dessen Abhängigkeit von Versuchsparametern beschrieben. Es konnte nicht nur der qualitative Ablauf der Reaktion beobachtet werden, sondern es wurde mit gewissen Einschränkungen, d.h. mit relativ hohem Meßfehler ( $\sim 30$ %) und unter der Voraussetzung der Kugelsymmetrie, auch eine quantitative Aussage ermöglicht. In nachfolgenden Kapiteln wird für jede einzelne Phase, in die der Reaktionsvorgang unterteilt wurde, eine plausible physikalische Erklärung gegeben. Teilweise werden plausible Hypothesen zur Erklärung eingeführt.

Die Filmsiede- und Kondensationsphasen (Phase I und IV) werden dabei ausgenommen, da das Filmsieden keiner neuen Erklärung bedarf und die Kondensationsvorgänge nur eine geringfügige direkte Beziehung zur Fragmentation des Tropfens und der Vermischung mit der Flüssigkeit haben.

# 5.1.1 Propagation der Triggerdruckwelle und Kinetik des Dampffilmzusammenbruchs (Phase II)

Es wurde festgestellt, daß der Dampffilm beim Filmsieden durch eine Wirkung des Triggerdrucks zum Zusammenbruch gebracht wird. In diesem Abschnitt wird versucht klarzustellen, welcher Mechanismus dabei vorherrscht. Dies ist für spätere Überlegungen zur ersten Wechselwirkung zwischen dem Tropfen und der umgebenden Flüssigkeit sehr wichtig, weil diese Wechselwirkung möglicherweise vom Kontaktmode abhängt.

Die Druckfront einer Drahtexplosion breitet sich näherungsweise mit Schallgeschwindigkeit in der Flüssigkeit aus. Diese Druckfront wird "Triggerdruckfront" genannt. Das Druckverhältnis, P<sub>Tr</sub>/P<sub>sys</sub> beträgt max. 15, d.h. es handelt sich um eine kleine Stoßfront. Es ist dabei anzunehmen, daß die Bewegung der Flüssigkeit hinter der Front und/oder höherer Systemdruck hinter der Front beim Zusammenbruch des Dampffilms bewirken. Die Bewegung der Flüssigkeit, deren Geschwindigkeit wie folgt bestimmt wird,

$$u = \frac{P_1 - P_0}{C \rho_0} = \frac{P_{Tr}}{C \rho_0}$$
(15)

führt zur Bewegung der Grenzfläche zwischen der Flüssigkeit und dem Dampffilm, und der höhere Systemdruck selbst auch zur Kollabierung des Dampffilms.

Der wirkliche Filmzusammenbruch steht jedoch unter dem Einfluß verschiedenster Faktoren wie z.B. örtliche Unterschiede der Filmstärke. Grenzflächenwellen aufgrund der Beschleunigung der Flüssigkeit u.a.m. Diese mikroskopischen Einflüsse machen es sehr schwierig, präzise Modelle zum Dampffilmzusammenbruch zu entwickeln. Deshalb werden nur makroskopische Modelle zum Dampffilmzusammenbruch anhand der hier vorliegenden zwei Mechanismen vorgestellt und diskutiert.

Wie Abb. 27 zeigt, ist der Tropfen vor der Ankunft der Triggerdruckfront von einem Dampffilm umgeben. Sobald die Triggerdruckfront an der Grenze zwischen Dampf und umgebender Flüssigkeit ankommt, beginnt die Grenze sich zu bewegen (der erste Mechanismus). Diese Geschwindigkeit kann statt mit Gl. 15 die nur unter Zweiphasenbedingungen gilt, mit folgender Gleichung für die Zweiphasenanordnung bestimmt werden:

$$u_{G} = \frac{2(P_{2} - P_{1})}{C_{P_{0}}^{(1)}(1)} + C_{P_{0}}^{(2)}(2)} = \frac{2P_{Tr}}{C_{P_{0}}^{(1)}(1)} + C_{P_{0}}^{(2)}(2)}$$
(16)

Abb. 28 zeigt die gerechnete Geschwindigkeit der Phasengrenze als Funktion des Triggerdrucks. Ein Triggerdruck von 10 bar entspricht einer Geschwindigkeit der Phasengrenze von 2.7 m/s.

Wird eine Dampffilmstärke von 0.2 mm, wie aus dem Versuch mit Silikonöl gewonnen, angenommen, würde es mindestens 75  $\mu$ s dauern, bis es zum ersten Kontakt zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit kommt. Dieser errechnete Zeitraum ist wesentlich größer als der des wirklich beobachteten Vorgangs des Dampffilmzusammenbruchs, der in Kap. 4.2.2 Phase II beschrieben ist. So zeigt die Beobachtung, daß der Farbumschlag des Tropfens von dunkel zu weiß oder silbrig, Abb. 13, also innerhalb von 25  $\mu$ s, stattfindet. D.h. es besteht ein Widerspruch zwischen dem ersten Modell und dem Versuchsergebnis. Es wird daraus geschlossen, daß der erste Mechanismus keine wesentliche Rolle beim Dampffilmzusammenbruch spielt.

Eine Triggerdruckfront durchläuft bei Schallgeschwindigkeit in etwa 7 s die Umgebung des Tropfens. Solange der Triggerdruckpuls andauert, bleibt ein hoher Druck in der Umgebung des Tropfens erhalten. Dieser hohe Umgebungsdruck kann den kugelsymmetrischen Filmzusammenbruch verursachen (der zweite Mechanismus). Eine derartige Modellierung für den kugelsymmetrischen Zusammenbruch wurde von Drumheller /47/ vorgestellt. Dieses Modell basiert auf folgenden Annahmen: Kugelsymmetrie, Flüssigkeit inkompressibel, keine Viskosität der Flüssigkeit und keine Berücksichtigung einer endlichen Geometrie um den Tropfen. Um die Kinetik des Dampffilmzusammenbruchs abzuschätzen, wurde hier eine Nachrechnung mit einer vereinfachten Methode durchgeführt. Zusätzlich wurde eine weitere vereinfachende Annahme, d.h. keine Temperaturerhöhung durch Wärmeübertragung an der Flüssigkeitsgrenze getroffen. Abb. 29 zeigt eine schematische Darstellung der Rechengeometrie. Die angewandten Gleichungen ergeben sich zu:

$$R_V \dot{R}_V + 3/2 \dot{R}_V = (P_V - P_{sys})/\rho_F$$
 (17)

(Rayleigh-Gleichung)

$$\frac{d}{dt} \left[ \frac{4\pi}{3} \left( R_V^3 - R_T^3 \right) \right] = 4\pi \frac{2}{N} \left( \frac{M}{2\pi R_T} \left( R_{edt}^3 \left( T_F \right) - R_V \right) \right)$$
(18)

(Massenübergang durch Verdampfung und Kondensation)

$$F_{V} = \rho \frac{\overline{R}}{M} T_{V}$$
<sup>(19)</sup>

(Zustandsgleichung)

Die Dampfdichte  $\int_V$  wird mit Gl. 18 und Gl. 19 eliminiert und die Filmstärke S statt des Radius des Dampfraums R<sub>v</sub> wird verwendet:

$$(S + R_{T})\ddot{S} + \frac{3}{2}\dot{S}^{2} = (R_{F} - R_{ys})/\rho_{F}$$
(20)  
$$\frac{d}{dt}(R_{V}S) = \alpha \sqrt{\frac{T_{V}R}{2\pi M}}(R_{sot}(T_{F}) - R_{V})$$
(21)

wobei 
$$V_V = 4\pi R_V^2 \cdot S$$
, weil  $S \ll R_T$  ist.

Für den erhöhten Systemdruck  $P_{sys}$  der Triggerdruckfront wird der gemessene Triggerdruck, der etwa 30  $\mu$ s, andauert, eingesetzt. Dabei wird zur Vereinfachung der wahre Druckverlauf stufenförmig angenähert. Als Verdampfungsbzw. Kondensationskoeffizient & wird der Wert 0.1 eingesetzt.

Abb. 30 zeigt für geschmolzenes Eisenoxyd in Wasser ein Rechenbeispiel mit dem vorliegenden vereinfachten Modell im Vergleich zu den Rechenergebnissen von Drumheller. Obwohl es einen Unterschied, insbesondere gegen das Ende des betrachteten Zeitraums gibt, sind die beiden Ergebnisse miteinander vergleichbar. Möglicherweise ist der Unterschied durch den im vereinfachten Modell nicht berücksichtigten Wärmeübergang begründet. Wenn zudem berücksichtigt wird, daß der Temperaturunterschied zwischen Natrium- bzw. Silikonöltropfen und Pentan um ein vielfaches kleiner ist als derjenige zwischen geschmolzenem Eisenoxyd und Wasser, kann das vorliegende vereinfachte Rechenmodell zur Beschreibung des Vorgangs des Dampffilmzusammenbruchs bei diesem Versuch mit Natrium- bzw. Silikonöltropfen angewendet werden.

Abb. 31 zeigt ein Rechenbeispiel für die Natrium-Pentan-Paarung. Die Zusammenbruchszeit des Dampffilms, dessen Stärke auch mit 0.2 mm angenommen wurde, ergibt etwas weniger als 25 µs. Sie stimmt gut z.B. mit dem Versuchsergebnis überein, das in Kap. 4.2.2 beschrieben ist, daß nämlich der Farbumschlag des Tropfens innerhalb von 25 µs nach Ankunft der Triggerdruckfront stattfand. Die mittlere Stoßgeschwindigkeit der umgebenden Flüssigkeit mit dem Tropfen ist etwa 7.5 m/s, d.h. über zweimal größer als die Geschwindigkeit der Grenze am vorderen Staupunkt des Tropfens durch die Bewegung der Flüssigkeit hinter der Druckfront (siehe Abb. 28; 2.7 m/s). Dieser Vergleich zeigt, daß die hier vorgestellte kugelsymmetrische Bewegung der umgebenden Flüssigkeit zum Tropfen hin vorherrscht. Für einen anderen kleineren Triggerdruck z.B. von 4 bar, ergibt sich die gerechnete Zusammenbruchszeit zu ca. 30 µs. Der beobachtete Farbumschlag des Tropfens bei V.19 mit 4 bar Triggerdruck erfolgte nach der Ankunft der Triggerdruckfront. Der Unterschied bleibt jedoch innerhalb des Fehlers der zeitlichen Zuordnung, siehe Kap. 3.5. Im allgemeinen sind die beobachteten Werte immer kleiner als die mit dem vorliegenden Rechenmodell gerechneten Werte für die Dampffilmzusammenbruchszeit. Dies ist möglicherweise damit zu erklären, daß die wirkliche Dampffilmstärke kleiner als die hier eingesetzte Stärke von 0.2 mm ist.

Aufgrund dieser Überlegungen kann geschlossen werden, daß der Vorgang des Dampffilmzusammenbruchs mit dem kugelsymmetrischen Modell, angewendet auf die Situation eine Erhöhung des Systemdrucks hinter der Druckfront, makroskopisch erklärt werden kann.

Eine Modellierung des wirklich ablaufenden Filmzusammenbruchs muß noch feiner strukturiert werden. Die örtlichen Unterschiede in der Dampffilmstärke und den Grenzflächenwellen (Rayleigh-Taylor-Instabilität) durch Abbremsung der Flüssigkeit spielen dabei eine große Rolle. Abb. 32 zeigt auch die Druckerhöhung im Dampffilm kurz vor dem Zusammenstoß mit dem Tropfen. Bei dem wirklichen System muß dieser höhere Druck eine Abbremsung der Flüssigkeit bewirken, die die Rayleigh-Taylor-Instabilität in Gang setzt. Diese beiden Effekte lassen zunächst nur lokal direkte Kontakte zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit zu,oder es bildet sich sogar ein Flüssigkeitsstrahl infolge der Rayleigh-Taylor-Instabilität. Die Zusammenbruchszeit des Dampffilms selbst bleibt jedoch auch unter der Einwirkung der Rayleigh-Taylor-Instabilität erst in der letzten Stufe des Zusammenbruchs des Dampffilms auszuwirken beginnt.

Nach dem Filmzusammenbruch findet ein Direktkontakt zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit statt. Dabei findet zwischen den beiden ein Wärmeübergang durch Kontaktwärmeleitung statt. Der Wärmefluß ergibt sich zu:

$$\mathbf{q} = \frac{1}{\overline{\mathbf{m}}} \left( \frac{1}{\overline{\mathbf{n}}_{T}} + \frac{1}{\overline{\mathbf{n}}_{F}} \right)^{1} \frac{\Delta T}{\sqrt{T}}$$

(22)

--- 52 ----

Durch zeitliche Integration und Berücksichtigung der gesamten Kontaktfläche wird die gesamte Wärme Q ermittelt, die von dem Tropfen zur Flüssigkeit übertragen wird.

$$Q = \frac{2}{\sqrt{\pi}} A_{\kappa} \left(\frac{1}{\Omega_{T}} + \frac{1}{\Omega_{F}}\right)^{-1} \Delta T \sqrt{t} \kappa$$
(23)

Es folgt daraus, daß mit größerer Kontaktfläche  $A_{K}$  und längerer Kontaktzeit  $t_{K}$  auch die übertragene Wärme größer wird. Diese Wärmeübertragung ist die erste Wechselwirkung zwischen den Tropfen und der Flüssigkeit. Die dadurch zur Flüssigkeit übergehende Wärme stellt eine wichtige Energiequelle für die nachfolgende Reaktion dar. So kann eine größere Wärmemenge Q zu einer heftigeren Reaktion mit höherem Reaktionsdruckaufbau und höherer Wachstumsrate der Reaktionszone führen. Wenn berücksichtigt wird, daß unter gleichen Temperaturbedingungen der Einsatz eines größeren Triggers, z.B. 8 bar, eine heftigere Reaktion mit höherem Reaktionsdruck und höherer Wachstumsrate der Reaktionszone ermöglicht, als mit dem niedrigeren Triggerdruck von 4 bar, siehe Abb. 17 und Abb. 18 ist einleuchtend, daß ein externer Trigger bei dieser Wärmeübertragung eine wichtige Rolle spielen muß. Aus diesen Argumenten folgt, daß durch einen größeren Trigger also die Kontaktfläche vergößert und/oder die Kontaktzeit verlängert wird.

# 5.1.2 Grenzflächeninstabilitäten (Phase III)

Nach Dampffilmzusammenbruch finden zunächst lokale Direktkontakte zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit statt. Die Flüssigkeit am Kontaktort wird durch Direktkontaktwärmeleitung überhitzt, und verdampft. Insbesondere, wenn die Kontakttemperatur über der spontanen Keimbildungstemperatur liegt, muß eine spontane Keimbildung stattfinden, die zur momentanen Verdampfung führt. Aus der Verdampfung der überhitzten Flüssigkeit erfolgt ein Druckaufbau bis zum Sättigungsdruck entsprechend der Kontakttemperatur am Direktkontaktort. Durch diesen örtlich hohen Dampfdruck werden die beiden Flüssigkeiten, also Tropfen und umgebende Flüssigkeit, zurückgestoßen. Gleichzeitig werden Dampfströmungen entlang der Grenzfläche angetrieben. Dabei können zwei Grenzflächeninstabilitäten entstehen, wie in Abb. 33

gezeigt. Eine Instabilität kann durch die hohe Beschleunigung verursacht werden, die vom Dampf (leichte Phase) auf die beiden Flüssigkeiten (schwere Phase) ausgeübt wird. Sie wird Rayleigh-Taylor-Instabilität (R-T) genannt. Die andere Instabilität ergibt sich durch die örtliche Relativgeschwindigkeit zwischen dem Dampf und der Grenzfläche. Sie wird Kelvin-Helmholz Instabilität (K-H) genannt. R-T-und K-H-Instabilitäten beziehen sich auf den Dampfdruck bzw. die Dampfgeschwindigkeit. In Abb. 33 ist eine plausible Darstellung der Verteilung des Dampfdrucks und der Dampfgeschwindigkeit gezeigt. Der Dampfdruck erreicht sein Maximum im Zentrum der lokalen Kontaktstelle und fällt zur Umgebung der Kontaktstelle hin ab. Die Verteilung der Dampfströmungsgeschwindigkeit zeigt ein gegenläufiges Verhalten. Der Wirkungsbereich der R-T-Instabilität liegt im Zentrum der Kontaktstelle der K-H-Instabilität in der Umgebung der Kontaktstelle. Die Grenzflächenwellen aufgrund dieser beiden Instabilitäten, deren Wachstum schneller als die Dampfdruckabsenkung ist, ermöglichen eine Fragmentation des Tropfens sowie eine Vermischung mit der Flüssigkeit.

Nach Kelvin, zitiert in /33/, ergibt sich allgemein folgende Gleichung für Grenzflächenwellen nach der Linearisierung

$$\gamma^{2} = \frac{\rho_{T} \rho_{V} \kappa^{2}}{\rho_{T} + \rho_{V}} U_{V}^{2} + \frac{\rho_{T} - \rho_{V}}{\rho_{T} + \rho_{V}} a_{T} \kappa - \frac{\sigma_{T} \kappa^{3}}{\rho_{T} + \rho_{V}}$$
(24)

Das erste Glied dieser Gleichung entspricht der K-H-Instabilität, das zweite Glied der R-T-Instabilität. Wenn  $\gamma^2>0$ , können die Amplituden der Wellen exponential wachsen. Aus dieser Gleichung können folgende charakteristischen Größen allgemein für die Grenzflächenwellen abgeleitet werden:

Kritische Wellenlänge Rayleigh-Taylor Kelvin-Helmholz  $\lambda_{\rm Kr} = 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_{\rm T}}{\sigma_{\rm T}(\rho_{\rm T} - \rho_{\rm V})}} 2\pi \frac{\sigma_{\rm T}(\rho_{\rm T} + \rho_{\rm V})}{\rho_{\rm T}^2 \rho_{\rm V}^2}$ (25)

die am schnellsten wachsende Wellenlänge

V3 NKr 3 Jr = (26)

Wachstumsrate für 🔨 🔨

$$q' = \left(\frac{2}{3!3}\frac{1}{7}\frac{\left[\alpha_{T}(\rho_{T}-\rho_{V})\right]^{\frac{3}{4}}}{\sigma_{T}^{\frac{1}{2}}(\rho_{T}+\rho_{V})}\right) \left(\frac{4}{27}\frac{1}{\sigma_{T}(\rho_{T}+\rho_{V})^{\frac{3}{2}}}{\sigma_{T}(\rho_{T}+\rho_{V})^{2}}\right) (27)$$

als "kritische Wellenlänge" wird die kürzeste Welle bezeichnet, die entstehen kann. "Die am schnellsten wachsende Wellenlänge" wird jene genannt, deren Wachstumsrate einen maximalen Wert annimmt.

Die durch den hohen Dampfdruck verursachte Beschleunigung der Grenzfläche ergibt sich zu:

$$a_{T} = \frac{P_{V}}{\rho_{T} L}$$
(28)

wobei L eine Schicht im Tropfen bedeutet, O(L(R, die später an der Fragmen-tation beteiligt ist.

Abb. 34(A) zeigt die instabilste Wellenlänge für den jeweiligen Dampfdruck bzw. L und die der Wellenlänge entsprechende Wachstumszeitkonstante, die mit Gl. 27 und Gl. 28 errechnet wurden. Wenn der Dampfdruck nahe beim kritischen Druck des Pentans liegt, sind die Wellen bei einer Länge von 50 bis 100 µm am instabilsten. Die Wachstumszeitkonstante in Abb. 32(B) zwischen 1 und 10 µs ist kurz genug um eine Fragmentation des Tropfens zu ermöglichen.

Die Dampfströmung kann unter der Voraussetzung einer stationären isentropen Zustandsänderung errechnet werden.

$$\rho_{V}U_{V}^{2} = \mathcal{G}2P_{V}\left(\frac{\lambda}{\chi-1}\right)\left[1 - \left(\frac{P_{sys}}{P_{V}}\right)^{\frac{\chi-1}{\pi}}\right]$$
(29)

 $\mathcal Y$  ist hierbei die Reibungsziffer. Sie nimmt Werte zwischen O und 1 an.

Abb. 35 zeigt Rechenergebnisse zur Kelvin-Helmholz-Instabilität, die mit Hilfe der Gl. 25, 26, 27 und 29 gewonnen wurden. So werden z.B. für  $\mathcal{Y}$ = 0.1, 5 bis 10 m lange Wellen am instabilsten. Die Wachstumszeitkonstante ergibt sich zu 0.5~0.1  $\mu$ s. Diese Zahlen weisen darauf hin, daß durch die K-H-Instabilität auch eine Fragmentation des Tropfens bewirkt werden kann. Die vorliegenden Rechenbeispiele gelten für Instabilitäten an der Grenzfläche des Tropfens. Dazu wurde der vorliegende Mechanismus zur Grenzflächeninstabilität auf die Oberfläche der Flüssigkeit, also des Pentans angewendet. Da die Oberflächenspannung des Pentans um den Faktor 10 kleiner ist als die des Natriums, muß die Oberfläche des Pentans weitaus instabiler sein. Diese Grenzflächeninstabilität wiederum stellt eine Voraussetzung für die Vermischung der Flüssigkeit in der Reaktionszone dar. Es ist einleuchtend, daß die beiden Phänomene, also Fragmentation und Vermischung, eng miteinander gekoppelt sind. Die rasche Verdampfung der überhitzten Flüssigkeit und die dadurch entstehende Beschleunigung der Flüssigkeiten und die örtlichen Dampfströmungen verursachen die Fragmentation des Tropfens und die Vermischung mit der Flüssigkeit.

Diese Rechenergebnisse zeigen andererseits, daß die beiden Instabilitäten unterschiedlich und in verschiedenen Zeiträumen wirken, siehe Tab. 6:

- K-H-Instabilität verbreitet sich relativ schnell in der Richtung parallel zur Grenzfläche aus.
- Die infolge von K-H-Instabilität entstehenden Fragmente sollten vielfach kleiner sein, als die infolge R-T-Instabilität.
- Die R-T-Instabilität wirkt relativ langsamer und die Fragmente sind grob im Vergleich zur K-H-Instabilität. Die Wachstumszeitkonstante ist jedoch immer noch klein genug, um eine Fragmentation zu bewirken.
- Zum Reaktionsablauf ergibt sich daraus, daß keine Dampfströmung d.h. keine K-H-Instabilität wieder zu erwarten ist, sobald das Reaktionsgebiet die ganze Oberfläche des Tropfens überdeckt. Dies dürfte der Situation auf Bild 9 und 10 in Abb. 13 entsprechen, wo die ganze Oberfläche des Tropfens matt geworden ist.

Aus diesem Vergleich und dieser Überlegung wird gefolgert:

 Die K-H-Instabilität spielt lediglich eine große Rolle bei der schnellen Ausbreitung des Reaktionsgebietes mit sehr feiner Fragmentierung und Vermischung.  Die R-T-Instabilität verursacht die Fragmentation und die Vermischung nachdem sich das Reaktionsgebiet über die ganze Oberfläche des Tropfens ausgebreitet hat.

Da die Ausbreitung der K-H-Instabilität sehr schnell vor sich geht, ist es nicht möglich, die Vorgänge von dem kleinen Tropfen mit der Hochgeschwindigkeitskamera aufzunehmen. Es hat den Anschein, daß der Einfluß auf den wirklichen Fragmentations- und Vermischungsvorgang relativ gering ist. In einem System mit einer großen Menge der heißen Flüssigkeit sollte jedoch die K-H Instabilität eine wichtige Rolle spielen, denn die schnelle Ausbreitung des Reaktionsgebietes kann zu einem gleichzeitigen hohen Dampfdruckaufbau führen.

Andererseits gilt für den kleinen Einzeltropfen, daß die Fragmentation sowie Vermischung überwiegend auf der R-T Instabilität basieren, insoweit eine optische Beobachtung möglich ist.

Mit der von Filmbeobachtungen abgeschätzten Beschleunigung des Wachstums der Reaktionszone kann eine Vermischungsrate der R-T-Instabilität für die umgebende Flüssigkeit berechnet werden:

$$\dot{V}_{\rm F} = A \cdot 4\pi R_{\rm V}^2 \sqrt{a_{\rm F} \lambda_{\rm kr}}$$
(30)

Da  $\sim_{\mathrm{Kr}}$  die kritische Wellenlänge ist,

$$\lambda_{\rm kr} = 2\pi \sqrt{\frac{\sigma_{\rm F}}{\sigma_{\rm F}(\rho_{\rm F} - \rho_{\rm V})}}$$
(31)

Damit ergibt sich die Vermischungsrate pro Einheit der Oberfläche zu:

$$\dot{V}_{F} / 4\pi R_{V}^{2} = A \left( 4\pi^{2} \frac{q_{F} \sigma_{F}}{(\rho_{F} - \rho_{V})} \right)$$
 (32)

wobei nach Corradini A≃4 ∘Ac ist, Ac bedeutet den Anteil der Direktkontaktfläche, der hier einen Wert von 0.5 annimmt.

Abb. 36 zeigt die Rechenergebnisse zur Vermischungsrate im Vergleich mit den Versuchsergebnissen. Dabei wurde für ein Versuchsergebnis der maximale Wert der Vermischungsrate in der Phase III angenommen, siehe Abb. 12. Obwohl die Versuchsergebnisse etwas davon abweichen, ist die Tendenz der beiden ähnlich und in guter Übereinstimmung für den Fall A=2. Dies weist darauf hin, daß der optisch beobachtbare Vorgang der Vermischung mit der Flüssigkeit sowie auch der Fragmentation des Tropfens mit der R-T-Instabilität erklärt werden kann.

Die Analyse der Fragmente unterstützt zusätzlich diese Aussage. Die Durchmesser der meisten Fragmente liegen in einem Bereich von 0.05 bis 0.5 mm, die mit den auf R-T-Instabilität zu erwartenden Fragmentdurchmessern vergleichbar sind. Aufgrund der Anwesenheit der noch feineren Fragmente kann ein Effekt der K-H-Instabilität nicht ausgeschlossen werden.

Durch Fragmentation des Tropfens wird die gesammte Oberfläche des Tropfens bzw. die Direktkontaktfläche zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit vergrößert. Dies führt zu weiteren Wechselwirkungen zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit in Form von Wärmeübergang, Verdampfung der überhitzten Flüssigkeit, und infolge dessen Druckaufbau im Dampfraum. Der Druckaufbau dauert solange an, bis der Druckaufbau durch Verdampfung von Flüssigkeit und Druckabnahme durch die Expansion der Reaktionszone im Gleichgewicht sind. Mit dem Wachstum der Reaktionszone wird die Möglichkeit, neuen Direktkontakt zwischen dem Tropfen und der Flüssigkeit zu erreichen, immer weniger, und schließlich nach Erreichen eines Druckmaximums beginnt dieser wieder zu fallen.

### 5.1.3 Übergangsphase und langsame Vermischung (Phase IV,V)

Nach Erreichen der maximalen Werte in der Phase III nimmt der Dampfdruck bzw. die Wachstumsbeschleunigung der Reaktionszone ab. Der Übergang in die Phase IV findet statt, siehe Abb. 12. Dabei können zwar noch Wechselwirkungen stattfinden, aber wegen des anwachsenden Dampfraums nimmt die Zahl der Direktkontakte zwischen den Tropfen, den Fragmenten und der Flüssigkeit weiter ab. Dadurch wird die Verdampfungsrate und die Wachstumsrate der Reaktionszone stark reduziert. Gleichzeitig wird die Grenzfläche zwischen Flüssigkeit und Reaktionszone wieder stabil, da sich die Beschleunigung der Flüssigkeit umkehrt. Diese Verlangsamung der Grenzflächenbewegung führt zu einer wachsenden Geschwindigkeitsdifferenz zwischen der Grenzfläche selbst und den Fragmenten, die infolge ihrer Trägheit eine größere Geschwindigkeit in Richtung auf die Grenzfläche hin beibehalten. Dadurch erreichen Fragmente des Tropfens die Grenzfläche und können in die Flüssigkeit eintauchen. Dies hat eine erhöhte Wärmeübertragung zwischen den Fragmenten und der umgebenden Flüssigkeit und damit eine zusätzliche Verdampfung zur Folge. Das dadurch neu entstehende Mehrphasengebiet erweitert die Reaktionszone und es bildet sich eine neue Grenzfläche. Selbstverständlich bedeutet dies auch eine weitere Vermischung mit der Flüssigkeit.

Zu diesem Vorgang können zwar keine quantitativen Angaben gemacht werden, er war jedoch auf den Hochgeschwindigkeitsfilmen klar zu beobachten. Die "Vorsprünge" zur Flüssigkeit hin auf der Oberfläche der Reaktionszone, die in Kap. 4.2.2 Phase IV,V, beschrieben sind, sind als ein Eintauchen der Fragmente zu sehen.

Aus der vorhergehenden Diskussion der Versuchsergebnisse ist nachgewiesen, daß das Eintauchen von Fragmenten in die umgebende Flüssigkeit als der Hauptmechanismus zur Ausbreitung der Reaktionszone während der Phase V anzusehen ist. Er bleibt bis zur Abkühlung der Fragmente erhalten.

In Abb. 37 sind die einzelnen Vorgänge bzw. Phase I bis VI der Reaktion, wie sie in den vorausgegangenen Kapiteln beschrieben wurden, noch einmal schematisch zusammengefaßt. Der vorliegende Fragmentationsmechanismus in der Phase III beruht zwar auf hydrodynamischen Vorgängen, nämlich der Ausbildung von Grenzflächenwellen, aber diese hydrodynamischen Vorgänge werden nicht durch externe Druckwellen oder Geschwindigkeitsdifferenzen ausgelöst, sondern durch den thermodynamisch bedingten Druckaufbau, infolge lokaler Verdampfung. Es handelt sich deshalb bei der diskutierten Modellvorstellung um eine thermisch bedingte Fragmentation.

### 5.1.4 Abschätzung der minimalen Vermischungsenergie

In vorausgegangenen Kapiteln wurde gezeigt, daß eine Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit in der Reaktionszone in der Phase III sowie V stattfindet. Es wurde eine plausible Erklärung dafür gegeben. In diesem Kapitel wird der Vermischungsvorgang vom Standpunkt der Energetik aus diskutiert, ob und unter welchen Bedingungen diese Vermischung mit der Flüssigkeit stattfinden kann. Cho et al. /48/ gibt eine Methode zur Abschätzung der notwendigen Energie für einen vereinfachten hypothetischen Fragmentationsvorgang an. Diese Methode wurde ohne Veränderung zur Abschätzung der notwendigen Energie zur Vermischung mit der Flüssigkeit angewendet. Folgende Voraussetzungen werden getroffen: Die Flüssigkeitsteilchen haben alle dieselbe Größe, Kugelform und Geschwindigkeit. Wechselwirkungen untereinander gibt es nicht. Wie Abb. 38 zeigt, ist der Vermischungsvorgang in folgende Stufen unterteilt:

# 1) Aufbrechphase

Zur Zerteilung in kleine Flüssigkeitsteile ist folgende Energie erforderlich:

$$E_{\sigma} = N \left(4\pi R_{F}^{2}\right) \sigma_{F}$$
(33)

2) Bewegungsphase

Fein verteilte Flüssigkeit expandiert und bewegt sich durch den Dampfraum. Dazu werden kinetische Eenergie und Reibarbeit benötigt. Diese ergeben sich zu:

$$E_{kr} = N (4\pi R_F^3 / 3) \rho_F U_F^2 / 2$$
 (34)

$$E_{R} = N c_{D} \pi R_{F}^{2} (\rho_{V} U_{F}^{2} / 2) L_{0}$$
(35)

wobei  $L_0$  die durchschnittliche Mischungsweglänge ist.

Wird die Anzahl N der Teilchen der Flüssigkeit durch das Mischungsvolumen V<sub>F</sub> ersetzt, erhält man hierfür:

$$E_{\sigma} = 3 \sqrt{e} \sigma_{F} / R_{F}$$

$$E_{ki} = V_{F} \rho_{F} U_{F}^{2} / 2$$

$$E_{R} = V_{F} c_{D} (3/8) \rho_{V} U_{F}^{2} L_{0} / R_{F}$$
(36)

Bei der Berechnung kann die Vermischungsrate  $V_F/4\pi R^2$  als  $U_F$  und die Dicke der Reaktionszone als L<sub>0</sub> verwendet werden. Für R<sub>F</sub> wird der durch R-T-Instabilität abgeschätzte Wert angenommen. Die Berechnung ergibt folgende Werte:

ET	=	1,5	10 <sup>-4</sup>	(J)
E Ki	=	5,4	$10^{-3}$	(J)
ER		2,6	$10^{-3}$	(J)

Die thermische Energie des Tropfens ohne die Schmelzwärme ergibt sich zu:

$$E_{\rm T} = \int_{-\infty}^{\infty} V_{\rm T} c_{\rm pT} \Delta T = 28 \quad (J) \tag{37}$$

für  $T_{T} = 150^{\circ}$  C; Natriumtropfen.

Daraus folgt, daß die abgeschätzte Vermischungsenergie sehr klein im Vergleich nicht nur zur vorhandenen thermischen Energie, sondern auch zur thermodynamischen Energie der Reaktion, siehe Tab. 5, ist. Energetisch betrachtet ist dies ein Nachweis, daß eine Vermischung der Flüssigkeiten in der vorliegenden geometrischen Anordnung möglich ist.

# 5.1.5 Interne Energiebilanz der Reaktionszone

Die fein unterteilten Flüssigkeitsteilchen in der Reaktionszone wirken als Wärmesenke für den heißen Tropfen oder dessen Fragmente. Um sie zu verdampfen wird eine gewisse Wärme benötigt. Um die Gesamtenergiebilanz zu verstehen, ist es notwendig, den Anteil der zur Verdampfung der untermischten Flüssigkeit erforderlich ist, zu bestimmen und mit der thermischen Energie des Tropfens zu vergleichen. Hierzu wird eine grobe Abschätzung durchgeführt.

Nahezu die gesamte thermische Energie des Tropfens steht zur Erhitzung und Verdampfung der Flüssigkeit zur Verfügung. Diese ergibt sich für Natrium:

$$E_{T} = \rho_{T} V_{T} [ c_{PT} (T_{T} - T_{satF}) + W_{m} ]$$
(38)

Für  $T_{T} = 150^{\circ}$  C erhält man  $E_{T}$  zu etwa 64 J.

Das Volumen der Flüssigkeit, das mit  $E_{\pi}$  verdampft werden kann, ist:

$$V_{FV} = \frac{E_{T}}{\rho_{F} [c_{PF} (T_{satF} - T_{F}) + W_{V}]}$$
(39)

- 61 ---

Mit den betreffenden Zahlen errechnet sich ein Wert von ca. 0,27  $\text{cm}^3$ .

Auf Abb. 12 ist diese Flüssigkeitsmenge in der Reaktionszone in Punkt B angezeigt. Wenn alle thermische Energie des Tropfens zur Verdampfung der Flüssigkeit beiträgt, kann über den Punkt B hinaus keine weitere Flüssigkeitsmenge in der Reaktionszone verdampft werden. Mit anderen Worten, die untermischte Flüssigkeit in der Reaktionszone wirkt sich oberhalb des Punktes B als Wärmesenke in der Wärmebilanz aus. Die untermischte Flüssigkeit, die wahrscheinlich aus kleinen Tröpfchen besteht, hat eine große Gesamtoberfläche. Es ist daher möglich, daß diese innere Wärmesenke den größeren Teil des Wärmeübergangs zwischen Dampf und Flüssigkeit ausmacht. Daraus ergibt sich folgende Aussage: Bei einer wirklichen Reaktion sollte wegen der inneren Wärmesenke der Zusammenbruch der Reaktionszone früher erfolgen als bei einer vorausgesagten Reaktion bei der eine Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit nicht berücksichtigt ist. Es gilt ferner, daß die Reaktionszone bei Vermischung mit Flüssigkeit nicht so weit anwachsen wird, wie ein Modell ohne Vermischung bestimmt.

# 5.2 Rolle der homogenen Keimbildungstemperatur (T<sub>HN</sub>-Kriterium)

Die Versuchsergebnisse mit Natriumtropfen haben ergeben, daß die Reaktion heftiger abläuft, wenn der Tropfen über T<sub>HN</sub> des Pentans erhitzt wird. Die Versuchsergebnisse mit Silikonöl zeigen ebenfalls, daß der aufgebaute Reaktionsdruck deutlich ansteigt, wenn die Kontakttemperatur über T<sub>HN</sub> liegt. Da ein hoher Reaktionsdruck mit einer feinen Fragmentation des Tropfens sowie einer intensiven Vermischung mit der kalten Flüssigkeit verbunden ist, ist einleuchtend, daß T<sub>HN</sub> eine wichtige Rolle bei der Siedefragmentation spielt.

Diese Versuchsergebnisse und deren Auslegung liegen innerhalb der Ergebnisse, die bisher von verschiedenen Autoren angeführt wurden. In den neuerdings vorliegenden Versuchen dieser Arbeit mit Silikonöltropfen wurde anhand der Hochgeschwindigkeitsfilme folgendes Reaktionsverhalten detaillierter beobachtet. Es ist in Abb. 39 und Abb. 40 dargestellt.

- Fall 1 T<sub>K</sub> < T<sub>HN</sub> Abb. 39

Nach dem Dampffilmzusammenbruch hat sich zuerst ein lokales kleines Mischungsgebiet ausgebildet. Danach wuchs das Mischungsgebiet weiter bis die ganze Oberfläche des Tropfens eingenommen wurde. Gleichzeitig expandierte das Mischungsgebiet. Der Zeitraum beträgt etwa 300 µs.

- Fall 2 
$$T_{K} > T_{HN}$$
 Abb. 40

Nach der Ankunft der Triggerdruckwelle bedeckte zuerst eine weiße Schicht, die der Reaktionszone entspricht, die ganze Oberfläche. Dies dauerte etwa 50  $\mu$ s, dann wuchs die Reaktionszone rasch weiter.

Daraus wird folgender einfacher Mechanismus vermutet. Über  $T_{HN}$  verdampft die überhitzte Flüssigkeit ohne Verzögerung. Das heißt, wenn  $T_K > T_{HN}$  ist, kann an verschiedenen lokalen Direktkontaktstellen gleichzeitig ein schneller Aufbau des Dampfdrucks stattfinden. Dies bewirkt einen hohen Reaktionsdruck und in der Folge heftige Instabilitäten, die die Fragmentation des Tropfens sowie die intensive Vermischung mit der Flüssigkeit verursachen.

Die vorliegenden Versuchsergebnisse, nicht nur aufgnommene Hochgeschwindigkeitsfilme, sondern auch Reaktionsdruckmessungen, siehe Abb. 19 und Abb. 21, weisen darauf hin, daß das Fauske-Kriterium eine wichtige thermische Bedingung für eine heftige Dampfexplosion ist. Aber es gilt auch, daß eine Reaktion mit Fragmentation des Tropfens im Temperaturbereich niedriger als  $T_{\rm HN}$ nicht ganz auszuschließen ist, siehe Abb. 19. Es haben Reaktionen, die nicht so heftig wie die mit einer höheren Tropfentemperatur abliefen, tatsächlich stattgefunden. Also ist das  $T_{\rm HN}$ -Kriterium nicht eine notwendige, sondern nur eine hinreichende thermische Bedingung für eine heftige thermische Reaktion.

### 5.3 Rolle des externen Triggerdrucks

Die vorliegenden Versuchsergebnisse zeigen, daß ein erforderlicher Triggerdruck zur Einleitung der Reaktion zwischen dem Tropfen und der umgebenden Flüssigkeit von der Tropfentemperatur abhängt, siehe Abb. 7 und Abb. 8. Im Temperaturbereich über T<sub>HN</sub> bezogen auf die Tropfentemperatur (Natriumtropfen) bzw. die Kontakttemperatur (Silikonöltropfen) nimmt der erforderliche Triggerdruck mit der Tropfentemperatur zu. Dafür wird folgende Erklärung gegeben:

- Aus der Literatur ist bekannt, daß die Stabilität des Filmsiedens vom Temperaturunterschied der beteiligten Materialien abhängt. Von Yao /6/ wurde beobachtet, daß die spontanen lokalen intermittierenden Direktkontakte der beiden Materialien beim Filmsieden immer seltener wurden, je höher die Temperatur des heißen Materials war. Dieses gilt insbesondere für Temperaturen über der kritischen Temperatur T<sub>Kr</sub> der kalten Flüssigkeit.
- Im Falle einer externen Störung, hier infolge der Triggerdruckwelle, sollten ähnliche Verhältnisse vorliegen. Wegen der höheren Temperatur wird vor einem Direktkontakt mehr Flüssigkeit verdampft. Dadurch werden der Filmzusammenbruch und der anschließende Direktkontakt, der die Reaktion einleitet, verzögert oder sogar ganz verhindert.

Bei Temperaturen unter T<sub>HN</sub> nimmt der erforderliche Triggerdruck mit Abnahme der Tropfentemperatur auch zu. Daraus kann geschlossen werden, daß die Abnahme der thermischen Energie des Tropfens durch den externen Triggerdruck kompensiert werden muß.

Andererseits zeigen die Versuchsergebnisse, siehe Abb. 7 und 8, daß der Natriumtropfen mindestens 3 bar als externen Triggerdruck benötigt, während für Silikonöl ca. 1 bar ausreichten. Es muß außerdem berücksichtigt werden, daß bei einer Kontakttemperatur in Höhe von T<sub>HN</sub> die Tropfentemperatur für Silikonöl höher ist, als die für die Natriumtropfen. Würde angenommen, daß der externe Triggerdruck nur den Zusammenbruch des Dampffilms bewirkt, müßte bei gleich hohem minimalem Triggerdruck bei beiden Materialpaarungen Na-Pentan und Silikonöl-Pentan, eine Reaktion erfolgen. Dies trifft nicht zu.

Auch die Reaktionsverläufe bei zwei unterschiedlichen Triggerdrücken aber mit derselben Tropfentemperatur, siehe Abb. 17 und Abb. 18 in Kap. 4.3, weisen darauf hin, daß ein externer Triggerdruck nicht nur die Reaktion in Gang setzt, sondern, daß er auch den ganzen Ablauf der Reaktion beherrscht.

Diese Tatschen deuten an, daß der externe Trigger die beiden Flüssigkeiten, Tropfen und umgebender Flüssigkeit nicht nur zum Direktkontakt bringt, sondern daß auch weitergehende dynamische und/oder thermische Wechselwirkungen stattfinden. Diese können wie folgt gedeutet werden:
#### <u>Erklärung 1</u>

Wie im Kap. 5.1.1 beschrieben, ist der Mechanismus des Zusammenbruchs des Dampffilms folgender:

Nachdem die Druckwelle am Tropfen, der sich im Filmsiedezustand befindet, vorbeigegangen ist, steigt der Umgebungsdruck an. Der Dampffilm bricht durch diese Erhöhung des Umgebungsdrucks kugelsymmetrisch zusammen. Daher sind folgende Ereignisse denkbar:

- Außer der kugelsymmetrischen Bewegung bewegt sich die umgebende Flüssigkeit auch in Richtung der Triggerdruckwelle.
- Wenn die Flüssigkeit mit dem Tropfen zusammenstößt, nimmt diese Relativgeschwindigkeit ein Maximum am Äquator senkrecht zur Bewegungsrichtung der Triggerdruckwelle des Tropfens an.
- Diese Relativgeschwindigkeit verursacht eine Vermischung beider Flüssigkeiten, d.h. des Tropfens mit der umgebenden Flüssigkeit, aufgrund hydrodynamischer Effekte, z.B. Grenzschichtabstreifung.

Die Hochgeschwindigkeitsfilme zeigen, daß insbesondere, wenn der Triggerdruck klein ist, das Reaktionsgebiet zu Beginn der Reaktion an diesem Äquator des Tropfens entsteht. Daher ist zu vermuten, daß eine erste Vermischung am Äquator des Tropfens durch hydrodynamische Effekte stattfindet. Diese Vermutung wird nachfolgend näher untersucht.

Für die Geschwindigkeitsentwicklung in zwei Grenzschichten mit unterschiedlicher Ausgangsgeschwindigkeit ergibt, kurz nachdem Flüssigkeit und Tropfen in Kontakt gekommen sind:

$$\frac{\partial U_F}{\partial t} = \sqrt[3]{\frac{\partial U_F}{\partial y^2}}$$
$$\frac{\partial U_T}{\partial t} = \sqrt[3]{\frac{\partial^2 U_T}{\partial y^2}}$$

(40)



Aus Gl. 40 kann die Grenzflächengeschwindigkeit  $U_{K}$  abgeleitet werden:

Damit ergibt sich die an der Grenzfläche wirkende Schwerkraft:

$$\mathcal{T} = \frac{1}{(1+\xi)\sqrt{\pi t}}$$
(42)

Die Anfangsrelativgeschwindigkeit  $U_{O}$  am Äquator des Tropfens ergibt sich aus Gl. 16:

 $U_0 = 3/2 U_0$  (43)

Für 10 bar von einem externen Trigger zum Natriumtropfen ergibt sich  $\tau$  zu 160 N/m<sup>2</sup>, t = 10  $\mu$ s. Dieser Wert ist größer als der der Oberflächenspannung, die sich aus  $2\tau/R_T$  zu 50N/m<sup>2</sup> ergibt, d. h. eine Grenzflächenabstreifung sollte stattfinden. Dies führt möglicherweise zu einer Vergrößerung der Kontaktfläche bzw. zu einer größeren Wärmeübertragung zwischen beiden Flüssigkeiten.

## Erklärung 2

Inoue /49/ stellte in seiner experimentellen Arbeit an einem nicht schmelzenden erhitzten Metalldraht in Wasser fest, daß sobald das Filmsieden durch einen externen Trigger zusammenbricht, sich die Eigenschaft des Wärmeübergangs bei einer Schwelle für den Triggerdruck ändert. Liegt ein externer Triggerdruck auf dieser Schwelle, ist die Wärmeübertragung von dem heißen zum kalten Material mehrfach größer als unterhalb dieser Schwelle. Bei einem gewissen Triggerdruck nimmt die Wärmeübertragung ihr Maximum an, sofern die Kontakttemperatur bei der kritischen Temperatur des Wassers liegt.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zur Verzögerungszeit zwischen Triggerdruckspitze und dem Reaktionsdruck in Abb. 22, 23 und 24 zeigen:

- Je größer der Triggerdruck, desto kürzer die Verzögerungszeit und desto größer der Reaktionsdruck.
- Bei einem gewissen Triggerdruck und T<sub>Kr</sub> nimmt die Verzögerungszeit ihr Minimum und der Reaktionsdruck sein Maximum an.

Dies ist qualitativ gut vergleichbar mit Inoues Ergebnissen. Dies deutet an, daß der externe Trigger in beiden Versuchsserien dieselbe Rolle spielt.

Abb. 41 zeigt eine einfache Darstellung des Mechanismus eines externen Triggers. Beide Fälle, Vorvermischung durch Grenzflächenabstreifung oder erhöhte Kontaktwärmeübertragung, haben einen Anstieg der Mitteltemperatur der kalten Flüssigkeit in der überhitzten Grenzschicht zur Folge. Die höhere Flüssigkeitstemperatur bewirkt einen höheren Dampfdruck. Dies leitet eine heftigere Reaktion ein.

#### 5.4 Einfluß der wichtigsten Materialeigenschaften auf die Fragmentation

Im vorausgegangenen Kapitel wurde eine Erklärung des Mechanismus der Fragmentation des Tropfens, also der heißen Flüssigkeit bzw. der Vermischung mit der umgebenden, also kalten, Flüssigkeit gegeben. In diesem Abschnitt wird der Einfluß der Materialeigenschaften der beteiligten Paarungen auf die Fragmentation diskutiert. Darüber hinaus wird eine Vorhersage des Fragmentationsverhaltens der in Kernreaktoren vorliegenden Materialpaarungen versucht.

Eine thermische Reaktion mit Fragmentation des Tropfens und Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit besteht, wie im vorausgegangenen Kapitel beschrieben ist, aus mehreren einzelnen Phasen. Die dritte Phase (Phase III) spielt hier die Hauptrolle. Diese Phase wird durch die zwei Instabilitäten der Grenzfläche beherrscht (siehe Kap. 5.2.2). Die Wachstumsraten dieser zwei Instabilitäten, also Rayleigh-Taylor bzw. Kelvin-Helmholz, ergeben sich aus Gl. 27 zu:

$$\gamma_{\rm RT} = (2/3\sqrt{3})^{\frac{1}{2}} \frac{\left[a_{\rm T}(\rho_{\rm T}-\rho_{\rm V})\right]^{\frac{3}{2}}}{\sigma_{\rm T}^{\frac{1}{2}}(\rho_{\rm T}+\rho_{\rm V})^{\frac{3}{2}}}$$
$$\gamma_{\rm KH} = (4/27)^{\frac{1}{2}} \frac{(\rho_{\rm T}\rho_{\rm V})^{\frac{3}{2}}v_{\rm V}^{3}}{\sigma_{\rm T}(\rho_{\rm T}+\rho_{\rm V})^{\frac{3}{2}}}$$

Je größer diese beiden Wachstumsraten werden, desto heftiger wird der heiße Tropfen fragmentieren, was zu einer starken Dampfexplosion führt. Unter der Voraussetzung eines lokalen Direktkontakts zwischen den heißen und kalten Flüssigkeiten, wird durch die rasche Verdampfung der kalten Flüssigkeit der Dampfdruck ansteigen. Dieser Anstieg kann theoretisch bis zum Sättigungsdruck für die entsprechende Kontakttemperatur anwachsen, in Wirklichkeit wird er aber durch die schnelle Expansion abgebremst. Der mittlere Druck soll daher nur proportional zum Sättigungsdruck sein. Nach Corradini /39/ ergibt sich zu P<sub>eff</sub> = 1/4 P<sub>sat</sub> (T<sub>K</sub>), also hierfür

 $\overline{P_V} \propto P_{sat}(T_K)$  (44)

Die Beschleunigung der Tropfenoberfläche  $a_T$  sowie der Dampfstömung  $\rho_V U_V^2$ wird durch P<sub>v</sub> angetrieben. Aus Gleichung 28 und Gl. 29 ergeben sich:

$$a_{T} \propto \frac{P_{V}}{\rho_{T}L}$$

$$P_{V} V_{V}^{2} \propto \overline{P_{V}}$$
(45)
(45)
(46)

Aus den Gl. 27, Gl.44, Gl. 45 und Gl. 46, sowie Annahme  $\rho_V << \rho_T$ ergeben sich folgende Ansätze:

$$Y_{RT} \propto \frac{P_{at}(T_{K})^{2}}{\sigma_{T}^{1/2}\rho_{T}^{1/2}} = \left(\frac{P_{sat}}{\sigma_{T}^{2}}\right)^{\frac{3}{4}}$$
 (47)

$$\gamma_{\rm KH} \propto \frac{P_{\rm sot}(T_{\rm K})^{2}}{\sigma_{\rm T}^{2}\rho_{\rm T}^{4/2}} = (\frac{P_{\rm sat}}{\sigma_{\rm T}^{2}3\rho_{\rm T}^{4/3}})^{\frac{3}{2}}$$
 (48)

Die Ausdrücke  $\frac{P_{sct}}{\sigma_T^{\frac{1}{3}} \rho_T^{\frac{2}{3}}}$  und  $\frac{P_{sct}}{\sigma_T^{\frac{2}{3}} \rho_T^{\frac{1}{3}}}$  können als Kennzahlen für die zu erwartende Heftigkeit der Siedefragmentation betrachtet werden. Diese Kennzahlen werden größer, wenn:

- 1) der Sättigungsdruck entsprechend der Kontakttemperatur ansteigt und
- 2) die Oberflächenspannung und Dichte der heißen Flüssigkeit kleiner werden.

Die vorliegenden Materialeigenschaften, M.E. 1) und M.E. 2) sind somit mit der Heftigkeit der Siedefragmentation direkt zu verbinden.

In der Tab. 7 sind diese Kennzahlen für verschiedene Materialkombinationen zusammengestellt. Diese Tabelle zeigt, daß die Materialpaarungen, bei denen eine starke explosive Reaktion für gewisse Bedingungen bisher beobachtet wurde, die relativ größeren Zahlen ergeben. Hierbei können die unterschiedlichen Ergebnisse von Fragmentationsversuchen mit verschiedenen Materialpaarungen einfach erklärt werden.

- Bei geschmolzenem Metall Wasser erfolgt eine heftige Fragmentation, /19/, /20/, /21/,, /22/. Das kommt aus M.E. 1).
- Bei Wasser Freon, Mineralöl-Freon oder Silikonöl-Pentan findet eine heftige Fragmentation trotz des kleineren Sättigungsdruckes der kalten Flüssigkeit statt /23/, /26/. Dies verbindet sich mit M.E. 2).
- Bei Kupfer Wasser wird die Fragmentation aufgrund der M.E. 2) leichter eingeleitet, wenn die Oberfläche des Kupfers oxydiert ist /50/.

- Bei Silikonöl-Pentan ergibt sich ein größeres Verhältnis des Impulses zwischen dem Reaktionsdruck und dem Triggerdruck als bei Natrium-Pentan, aufgrund der M.E. 2).

Damit besteht eine Beziehung der wichtigen Materialeigenschaften,  $p_{sat}$ ,  $\sigma_{T}$ und  $\rho_{T}$  mit der Heftigkeit der Siedefragmentation.

Die so errechneten Kennzahlen für die Paarung  $\mathrm{UO}_2$ -Natrium sind ebenfalls klein, was auf die niedrige Kontaktemperatur bzw. den niedrigen Sättigungsdruck des Natriums und die relativ große Dichte des  $\mathrm{UO}_2$  zurückzuführen ist. Daher ist anzunehmen, daß es zwischen geschmolzenem  $\mathrm{UO}_2$  und Natrium nur zu einer milden Reaktion mit grober Fragmentation des  $\mathrm{UO}_2$  kommt. Es mag möglich sein, daß unter gewissen Bedingungen das Natrium bis nahe der kritischen Temperatur erhitzt werden kann. Wenn kleine Mengen von Natrium in große Mengen von  $\mathrm{UO}_2$  eingezogen werden, kann die Kontaktemperatur mit der Natriumtemperatur ansteigen und die kritische Temperatur erreichen, denn die absolute Temperatur des geschmolzenen  $\mathrm{UO}_2$  liegt weit über der kritischen Temperatur des Natriums. In diesem Fall kann eine heftige, aber aufgrund dessen Kontaktmode nur inkohärente Reaktion eintreten, weil keine grobe Vormischung in der Anfangsphase erwartet werden kann.

Für die Paarung UO<sub>2</sub>-Wasser besteht dagegen die Möglichkeit, daß eine heftige Siedefragmentation stattfindet, sofern der externe Trigger groß genug ist, das stabile Filmsieden aufgrund des großen Temperaturunterschieds zu überwinden.

Die Heftigkeit der Fragmentation verbindet sich mit der Feinheit der Fragmente. Die feinen Fragmente ergeben sich aus der heftigen Fragmentation. Zum Nachweis dieser Aussage, gibt Abb. 42 einen Vergleich der Analyse der Fragmente aus verschiedenen Materialpaarungen. Der Massenanteil der feinen Fragmente von Natrium-Pentan und  $UO_2$ -Natrium, /51/, ist vergleichbar, während Kupfer (oxydiert) -Wasser /42/ bzw.  $UO_2$  /28/ sehr feine Fragmente zeigen. Dieser Vergleich ist in guter Übereinstimmung mit den Voraussagen aus Gl. 47 sowie Gl. 48 und den Versuchsergebnissen.

— 70 —

### 6. Zusammenfassung und Schlußfolgerung

In der vorliegenden Arbeit wurden Versuche, die zur Klärung der Siedefragmentation bei einer thermischen Reaktion durchgeführt wurden, deren Ergebnisse und Analysen, vorgestellt und diskutiert. In diesen Versuchen wurden einzelne erhitzte Tropfen, umgeben von Flüssigkeit, zur Reaktion gebracht. Diese Reaktion stellt sich als eine thermische Wechselwirkung zwischen heißen Tropfen und kalter, leichtflüchtiger Flüssigkeit dar. Bei einer Ansammlung einer Vielzahl heißer Tropfen in kalter Flüssigkeit kann es unter gewissen Randbedingungen zu einer heftigen Dampfexplosion mit großem Druckaufbau kommen. Die Versuche sind wie folgt zu charakterisieren: Der Einsatz der Hochgeschwindigkeitskamera, deren Aufnahmegeschwindigkeit bis auf 10<sup>5</sup> B/s erhöht werden kann, ermöglichte detaillierte Beobachtungen der Vorgänge, die bisher nicht möglich waren. Zur Reduzierung der hydrodynamischen Effekte zwischen heißen Tropfen und kalter Flüssigkeit wurden entsprechende Versuchspaarungen, wie Natrium und Silikonöl für den heißen Tropfen und Pentan für die kalte Flüssigkeit ausgewählt. Das Dichteverhältnis dieser Paarungen liegt nahe bei 1. Die Höhe einer Triggerdruckwelle zur Auslösung der Wechselwirkung war einer der Versuchsparameter. Aus diesen Versuchen ergeben sich folgende neue Erkenntnisse zum Reaktionsvorgang mit Siedefragmentation des heißen Tropfens bzw. können folgende Schlußfolgerungen gezogen werden:

Bei beiden Versuchspaarungen, Natrium-Pentan und Silikonöl-Pentan, tritt eine Reaktion mit Fragmentation des Tropfens nur dann auf, wenn der externe Triggerdruck eine gewisse Schwelle überschreitet. Dieser erforderliche Triggerdruck hat ein Minimum, wenn die Kontakttemperatur zwischen heißem Tropfen und Pentan im Bereich der homogenen Keimbildungstemperatur des Pentans liegt. Der von einem externen Trigger eingeleitete Reaktionsvorgang kann durch detaillierte visuelle Auswertung der aufgenommenen Hochgeschwindigkeitsfilme unter Einbeziehung der gemessenen hoch transienten Druckverläufe erstmals in folgende Einzelphasen, in denen jeweils unterschiedliche physikalische Vorgänge dominieren, unterteilt werden:

(I) Filmsieden

- (II) Filmzusammenbruch und Direktkontakt
- (III) Rasche Verdampfung und Fragmentation
- (IV) Übergang
- (V) Langsame Vermischung
- (VI) Kondensation

Ein Reaktionsdruck, der auf die thermische Wechselwirkung selbst zurückgeht, und eine Beschleunigung des Wachstums der Reaktionszone konnten nur während der Phase III (Rasche Verdampfung der Fragmentation) gemessen werden. Sie nimmt nur ein zehntel des gesamten Zeitraums der Reaktion, ca. 1 ms, ein. Es ist anzunehmen, daß in diesem Zeitraum auch die Fragmentation des Tropfens eintritt. Aus der visuellen Beobachtung auf den Hochgeschwindigkeitsfilmen folgt, daß die Fragmentation durch die Verdampfung der überhitzten Flüssigkeit an den Direktkontaktstellen eingeleitet wird. Die Grenzflächeninstabilitäten im Gebiet des sich rasch aufbauenden hohen Dampfdrucks, nämlich die Rayleigh-Taylor- sowie die Kelvin-Helmholz-Instabilität, bestimmen die weitere Entwicklung der Fragmentation des Tropfens.

Außerdem wurde bei der Auswertung der Hochgeschwindigkeitsfilme festgestellt, daß in der Phase III (Rasche Verdampfung und Fragmentation) eine intensive Vermischung mit der umgebenden Flüssigkeit stattfindet. Dies wurde durch die Messung der Bewegung der die Reaktionszone umgebenden Flüssigkeit erstmals quantitativ erfaßt. Es wird angenommen, daß der auslösende Mechanismus mit dem, der zur Fragmentation des Tropfens führt, identisch ist. Am Ende der Phase IV (Übergang) und in der Phase V (Langsame Vermischung) wurde eine erneute Zumischung von Flüssigkeit in der Reaktionszone beobachtet. Die Vermischungsrate ist allerdings mehrfach niedriger als die in der vorangegangenen Phase III. Die in der Reaktionszone eingeschlossene, fein verteilte Flüssigkeit trägt in der Phase III (Rasche Verdampfung und Fragmentation) zur weiteren Verdampfung und infolgedessen zum Wachstum der Reaktionszone bei. In den späteren Phasen V und VI (Langsame Vermischung) bzw. (Kondensation) wird jedoch durch die eingeschlossene Flüssigkeit nicht nur die Kondensation des Dampfes in der Reaktionszone beschleunigt, sondern die untermischte Flüssigkeit wirkt auch als innere Wärmesenke für den Tropfen und dessen Fragmente. Aus der Wärmebilanz ist eindeutig festzustellen, daß die thermische Energie des Tropfens nicht ausreicht, die gesamte Menge der untermischten Flüssigkeit, die bis zu 60 % des gesamten Volumens der Reaktionszone betragen kann, zu verdampfen. Eine quantitative Aussage zur Auswirkung der untermischten Flüssigkeit auf den Reaktionsvorgang konnte in dieser Arbeit zwar nicht gewonnen werden, aber es wurde qualitativ nachgewiesen, daß bei einer zukünftigen Modellierung der Dampfexplosion die Auswirkungen der Zumischung der Flüssigkeit in der Reaktionszone nicht vernachlässigt werden dürfen.

- Im Hinblick auf den Ablauf der Reaktion, der Intensität der Fragmentation und des sich einstellenden Reaktionsdruckaufbaus zeigen die Hochgeschwindigkeitsfilme weitere Einzelheiten: Lag die Kontakttemperatur über der homogenen Keimbildungstemperatur, T<sub>HN</sub>, breitete sich das Reaktionsgebiet über die gesamte Oberfläche des Tropfens aus, bevor eine Expansion der Reaktionszone einsetzte. Dies sollte den höheren gemessenen Reaktionsdruck bewirkt haben. War die Kontakttemperatur niedriger als T<sub>HN</sub>, erfolgte keine rasche Ausbreitung des Reaktionsgebietes, sondern es wurde nur ein örtliches Wachstum der Reaktionszone, z. B. in dem etwas nach oben versetzten Mittelteil des Tropfens, beobachtet. Dies war mit einem geringeren Reaktionsdruckaufbau verbunden. Die unterschiedlichen beiden Versuchsergebnisse weisen darauf hin, daß die homogene Keimbildung eine wichtige Rolle bei der Entstehung der Reaktionszone bzw. beim Reaktionsdruckaufbau spielt. Mit zunehmender Temperaturdifferenz zwischen Tropfen und Flüssigkeit, d. h. die Kontakttemperatur liegt weit über der kritischen Temperatur T<sub>Vr</sub> der Flüssigkeit, kann das stabile Filmsieden nur durch eine wesentliche Erhöhung des Triggerdrucks überwunden werden. In diesem Fall kann eine vollständige thermische Reaktion oder eine feine Siedefragmentation nur mit Hilfe eines großen externen Triggers eingeleitet werden. Werden diese Argumente auf die bei einem schweren hypothetischen Unfall (HCDA)vorliegenden Materialpaarungen, wie geschmolzenes UO2 mit Natrium bzw. geschmolzenes UO2 mit Wasser, angewendet, ist folgendes Verhalten zu erwarten:
  - Fall UO<sub>2</sub>-Natrium

Da die Kontakttemperatur immer niedriger als T<sub>HN</sub> des Natriums liegt, sollte nach dem Direktkontakt nur ein örtliches Wachstum der Reaktionszone stattfinden. Es sollte nur zu einem milden Druckaufbau kommen. - Fall UO<sub>2</sub>-Wasser

Bei einer Paarung mit hoch über dem Schmelzpunkt erhitztem UO<sub>2</sub> und Wasser kann sich eine Kontakttemperatur weit über  $T_{Kr}$  ergeben, d. h. eine schnelle Ausbreitung der Reaktionszone über die Tropfenoberfläche und infolgedessen ein großer Druckaufbau sind möglich, allerdings nur in Verbindung mit einem hohen externen Triggerdruck, der den Zusammenbruch des stabilen Dampffilms bewirkt.

- Aus den Versuchsergebnissen folgt weiterhin, daß der erforderliche Triggerdruck zur Einleitung einer Reaktion von der vorliegenden Materialpaarung abhängt. Überschreitet der Triggerdruck diese Schwelle, verursacht er nicht nur den Zusammenbruch des Dampffilms um den Tropfen, sondern bestimmt auch entscheidend die weiteren Wechselwirkungen zwischen den beteiligten Flüssigkeiten. In der vorliegenden Arbeit werden hierzu zwei Ursachen angeführt: Aufgrund des Geschwindigkeitsunterschiedes zwischen dem Tropfen und der umgebenden Flüssigkeit in der Phase II (Filmzusammenbruch und Direktkontakt) kommt es zu einer Grenzschichtabstreifung an den Kontaktstellen. Außerdem ändert sich der Wärmeübergang an den Kontaktstellen erheblich, so daß dort eine rasche Verdampfung mit hohem örtlichem Dampfdruckaufbau begünstigt wird. Die Frage einer quantitativen Modellierung bleibt jedoch offen. Dafür müßte eine noch präzisere Darstellung des Dampffilmzusammenbruchs und der Wechselwirkung zwischen den beiden Flüssigkeiten hinter der Triggerdruckfront erfolgen.
- Unter Einbeziehung der in dieser Arbeit neu gewonnenen Erkenntnisse zu den Siedefragmentationsvorgängen und der Analyse der wesentlichen Grenzflächeninstabilitäten wurde der Versuch unternommen, das zu erwartende Reaktionsverhalten von unterschiedlichen Materialpaarungen durch zwei Kennzahlen zu charakterisieren. In diesen Kennzahlen sind die wichtigsten physikalischen Eigenschaften, wie Dichte, Oberflächenspannung und Sättigungsdruck, bezogen auf die Kontakttemperatur, in einfacher Weise zusammengefaßt:

- P<sub>sat</sub> σ<sup>2</sup>/3 ρ<sup>1/3</sup>  $\frac{\Gamma_{\text{sat}}}{\sigma_1^{1/3} \rho_7^{2/3}}$ )

Je größer diese Kennzahlen werden, desto heftiger wird die Siedefragmentation ausfallen. Die Paarung Natrium-Pentan, deren relativ milde Reaktion nur von einer großen Fragmentation begleitet ist, hat wie erwartet um den Faktor 2 kleinere Kennzahlen, verglichen z.B. mit der Paarung Aluminium-Wasser. Bei dieser Paarung wurde eine heftige Reaktion mit feiner Fragmentation beobachtet. Die Anwendung dieser Kennzahlen auf die Paarung UO<sub>2</sub>-Natrium bzw. UO<sub>2</sub>-Wasser führt zu folgender Aussage:

## - Fall UO<sub>2</sub>-Natrium

Da die Paarung UO<sub>2</sub>-Natrium ungefähr gleiche Kennzahlen wie die der Paarung Na-Pentan aufweist, wird nur eine relativ milde Siedefragmentation erwartet.

## - Fall UO<sub>2</sub>-Wasser

Bei der Paarung UO<sub>2</sub>-Wasser sind dagegen die Bedingungen für eine heftige Siedefragmentation aufgrund der größeren Kennzahlen (Faktor 1.5 gegenüber Na-Pentan) gegeben. Die Kennzahlen sind vergleichbar mit denen der Paarungen Cu-Wasser oder Sn-Wasser, die auch zu heftigen Reaktionen mit feiner Fragmentation führen. Allerdings muß die schon wiederholt beschriebene Bedingung, daß das stabile Filmsieden des Systems UO<sub>2</sub>-Wasser durch einen großen externen Trigger zum Zusammenbruch gebracht wird, zusätzlich erfüllt sein.

#### 7. Anhang A

Verlauf der Tropfentemperatur während des Filmsiedens

#### - Silikonöl -

Während der heiße Tropfen sich in der kalten Flüssigkeit befindet, fällt die Oberflächentemperatur des heißen Tropfens wegen des Wärmeübertrags durch das Filmsieden ab. Damit die genaue Kontakttemperatur zwischen den beiden Flüssigkeiten berechnet werden kann, soll dieser Temperaturabfall abgeschätzt werden. Dafür ist eine Integralmethode angewendet worden.

Abb. A-1 zeigt die angenommene Temperaturverteilung.

Am Anfang ist die Temperaturverteilung flach  $(T_{TO})$ . Nach einer gewissen Zeit fällt die Oberflächentemperatur des Tropfens ab  $(T_{TS})$ , weil die Wärme durch den Dampffilm abströmt. Hier ist anzunehmen, daß die Temperaturverteilung innerhalb der thermischen Grenzschicht in dem Tropfen eine parabolische Funktion hat. Sie folgt:

$$\frac{T_{TO} - T(r)}{T_{TO} - T_{TS}} = \frac{(r - R_{TB})^2}{(R_T - R_{TB})^2}$$
(A-1)

Die Wärmebilanz innerhalb der thermischen Grenzschicht ergibt sich:

$$\begin{pmatrix} \mathsf{R}_{\mathsf{T}} \\ \mathsf{R}_{\mathsf{TB}} \end{pmatrix} = \frac{\partial \mathsf{T}(\mathsf{t},\mathsf{r})}{\partial \mathsf{t}} - \frac{\partial}{\mathsf{r}^{2}} \frac{\partial}{\partial \mathsf{r}} (\mathsf{r}^{2} \frac{\partial \mathsf{T}(\mathsf{t},\mathsf{r})}{\partial \mathsf{r}}) ] 4\pi \mathsf{r}^{2} d\mathsf{r} = 0$$
(A-2)

 $\theta = k/\rho c_p$  = Temperaturdiffusionsfähigkeit

Die Wärmebilanz des Ein- und Ausganges an der Oberfläche des Tropfens beträgt:

$$-k_{T}\frac{\partial T}{\partial r}\Big|_{r=R_{T}} = h_{FB}(T_{TS} - T_{F})$$
(A-3)

 $h_{FR} = W$ ärmeübergangskoeffizient

Aus Gl. (A-1) bis (A-2) ergeben sich folgende dimensionslose Größen:

$$\widetilde{T} = \frac{\overline{T_{10}} - \overline{T_{rs}}}{\overline{T_{10}} - \overline{T_{r}}} \quad \widetilde{R} = \frac{R_{TB}}{R_{T}} \quad \widetilde{Nu}_{T} = h_{HB} \frac{2R_{T}}{k_{T}} \quad \widetilde{t} = \frac{\theta}{R_{T}^{2}} t \quad (A-4)$$

Hinzu kommen folgende Gleichungen:

$$\frac{d\widetilde{T}}{d\widetilde{T}} = \frac{60\widetilde{T}}{(1-\widetilde{R})[(1-\widetilde{R})(\widetilde{R}^{2}+3\widetilde{R}+6)+\frac{\widetilde{T}(1-2\widetilde{T})}{\widetilde{Nu}_{T}(1-\widetilde{T})^{2}}[3\widetilde{R}^{2}+4\widetilde{R}+3)]} \qquad (A-5)$$

$$\widetilde{R} = 1 - \frac{4\widetilde{T}}{\widetilde{Nu}_{T}(1-\widetilde{T})} \qquad (A-6)$$

Da  $1-\widetilde{R} << 1$  und  $\widetilde{T}^4$  bzw.  $\widetilde{T}^5 << 1$  können diese Größen eliminiert werden, und es ergibt sich folgende Gleichung:

$$\frac{d\widetilde{T}}{d\widehat{t}} = \frac{15 \widetilde{Nu_T}^3}{50 \widetilde{Nu_T}\widetilde{T} + (90 \widetilde{Nu_T} - 56)\widetilde{T}^2}$$
(A-7)

also

$$25 \, \widetilde{Nu}_{T} \widetilde{T}^{2} + (30 \, \widetilde{Nu}_{T} - 56/3) \widetilde{T}^{3} = 15 \, \widetilde{Nu}_{T}^{3} \widetilde{t}$$
 (A-8)

Nach Frederking /53/ ergibt sich die Nusseltzahl für das Filmsieden bei Kugelsymmetrie zu:

$$Nu = \frac{2}{3} (Ra^{*})^{2} = h_{FB} \frac{2R_{V}}{k_{V}}$$
(A-9)

wobei R<sup>\*</sup><sub>a</sub> "modifizierte Rayleighzahl heißt, und es ergibt sich:

$$Ra^{*} = Gr_{V} \cdot Pr_{V} \frac{(W_{V} + 0.5 c_{PV} \Delta T_{V})}{c_{PV} \Delta T_{V}}$$
(A-10)

Gr: Grashofzahl bzw. Pr: Prantlzahl

Damit kann  $Nu_{T}$  berechnet werden.

$$\widetilde{Nu}_{T} = h_{BB} \frac{2R_{T}}{k_{T}} = Nu \frac{k_{V}}{2R_{V}} \frac{2R_{T}}{k_{T}} = Nu \frac{k_{V}}{k_{T}} = \frac{2}{3} \frac{k_{V}}{k_{T}} (Ra^{*})^{\frac{1}{4}}$$
(A-11)

Nach Einsetzen der Materialdaten ergibt sich für Silikonöl

$$\widetilde{Nu}_{T} = -4.4$$
 (A-12)

Abb. A-2 zeigt den Temperaturabfall und das Wachstum der thermischen Grenzschicht als Funktion der Zeit. Da das Filmsieden bis zur Ankunft der Triggerdruckwelle durchschnittlich 50 ms dauert, ergibt sich der Temperaturabfall<sup>2</sup><sup>15</sup> % der Temperaturdifferenz T<sub>TO</sub> - T<sub>F</sub>, wobei die thermische Grenzschicht im Tropfen bis 16 % von dessen Radius wächst.

- Natrium -

Die vorliegende Methode zur Abschätzung des Tropfentemperaturabfalls während des Filmsiedens ist für Natriumtropfen nicht anwendbar. Es kann eine noch einfachere Abschätzungsmethode, nämlich die "Punktnäherung", verwendet werden, denn das Natrium hat eine so hohe Wärmeleitfähigkeit, daß eine flache Temperaturverteilung in dem Tropfen näherungsweise angenommen werden kann.

Der Temperaturabfall wird folgendermaßen charakterisiert:

$$T_{T0} - T_{TS} = \frac{4\pi R_T^2 h_{FB} (T_{TS} - T_F) \cdot t_{FB}}{\rho_T V_T c_{PT}} - \frac{3 t_{FB} h_{FB}}{R_T \rho_T c_{PT}} (T_{TS} - T_F)$$
(A-13)

oder

$$\frac{T_{TO} - T_{FS}}{T_{TO} - T_{F}} = \widetilde{T} = \frac{(3 t_{FB} h_{FB}) / (R_T \rho_T c_{PT})}{[1 + (3 t_{FB} h_{FB}) / (R_T \rho_T c_{FT})]}$$
(A-14)

Wird  $t_{FB} = 50 \text{ ms}$  und  $h_{FB} = Nu \frac{K_V}{2R_V} = 220 \text{ W/m}^2 \text{K}$  angewendet, so ist der Temperaturabfall nur 0,7 %. Daraus folgert, daß im Fall von Natrium der Temperaturabfall während des Filmsiedens praktisch unberücksichtigt bleiben kann.

Der Temperaturabfall, resultierend aus der Strahlung und **der** Wärme, die am Anfang des Filmsiedens zur Erzeugung des Dampffilms benötigt wird, ist vernachlässigbar gering. Abschätzung des Drucks am Reaktionsort

Um die Abweichungen zwischen dem am Meßort aufgenommenen Druckwert und dem am Reaktionsort vorhandenen Druck abzuschätzen, wurde eine Nachrechnung mit dem dreidimensionalen Rechencode "SING", /54/, durchgeführt. Dieser Rechencode, der die Flüssigkeit als inkompressibel voraussetzt, gibt die räumliche Druckverteilung durch eine Punktquelle entlang des potentiellen Flusses wider.

Abb. B-1 zeigt ein Rechenergebnis zur Druckverteilung bezogen auf den Querschnitt, an dem zwei Druckmeßköpfe angebracht sind. Die horizontale Achse stellt die Entfernung vom Zentrum des Testgefäßes dar, die senkrechte Achse den entsprechenden relativen Druckwert. Ein Meßkopf befindet sich 7,5 mm entfernt vom Zentrum, der andere 15 mm entfernt an der Wand, siehe Abb. 2. Dem Rechenergebnis nach, sollten sich die beiden Meßwerte um den Faktor 1,28 unterscheiden.

Der Faktor aus den Meßergebnissen ergibt sich zu durchschnittlich 1,21, siehe Abb. Die beiden Faktoren stimmen gut überein. Darüber hinaus ergibt sich, daß die Reaktionsdrücke am Reaktionsort nach Abb. B-1 um den Faktor 1,2 größer sein sollten, als die mit dem Druckmeßkopf A gemessenen Druckwerte. D.h. die gemessenen Druckwerte repräsentieren die Reaktionsdrücke am Tropfen praktisch gut. Hierbei werden unter Reaktionsdrücken solche verstanden, die sich über die ganze Reaktionszone gleichmäßig verteilen. Die an lokalen Kontaktstellen aufgebauten sehr hohen Dampfdrücke können damit allerdings nicht verglichen werden.

## <u>9. Nomenklatur</u>

<u>Symbol</u>	Bedeutung	<u>Einheit</u>
A	Faktor der Direktkontaktfläche	_
Ac	Fiktiver Anteil der Direktkontaktfläche	-
A.,	Gesamte Direktkontaktfläche	m <sup>2</sup>
к С	Schallgeschwindigkeit	m/s
C	Reibkoeffizient	-
C.	Spezifische Wärme bei konstantem Druck	J/kg K
р D	Durchmesser	m
E	Energie	J
е	Energiedichte	J/m <sup>3</sup>
F.	Anteil der vermischten Flüssigkeit in der	
r	Reaktionszone	-
<i>d</i> f	Fehler	
g	Erdbeschleunigung	m/s <sup>2</sup>
h	Wärmeübertragungskoeffizient	W/K
J	Keimbildungsrate	1/s
К	Kreiswellenzahl	1/m
ĸ	Boltzmannkonstante	J/K
k	Wärmeleitzahl	W/K
L	Länge	m
М	Molgewicht	kg/mol
N	Anzahl	_
Nu	Nusseltzahl	-
Р	Druck	Pa,bar
Q	Wärme	J
q	Wärmestrom	J/m <sup>2</sup> g
R	Gaskonstante	J/mol K
R	Radius	m
R <sub>F</sub>	Radius des Flüssigkeitsteilchen	m
Ra Ra*	Rayleighzahl	-
S	Dampffilmstärke	m
SF	Wahrscheinlicher Fehler	
Т	Temperatur	°c
T HN	Homogene Keimbildungstemperatur	°c
t	Zeitdauer	S

u, U	Geschwindigkeit	m/s
` <b>v</b>	Volumen	m <sup>3</sup>
W	Blasenbildungsenergie	J
Wm	Schmelzwärme	J/kg
wv	Verdampfungswärme	J/kg
х	Bewegung der umgebenden Flüssigkeit	m

## Griechische Symbole

<u>Symbol</u>	Bedeutung	<u>Einheit</u>
б	Verdampfungs- und Kondensationskoeffizient	_
ß	Wärmeeindringzahl	J/ms1/2K
Y	Wachstumsrate der Grenzflächenwelle	1/sec
6, <b>Δ</b>	Differenz	-
θ	Temperaturdiffusionsfähigkeit	m <sup>2</sup> /s
X	Verhältnis der spezifischen Wärmekapazitäten	-
λ	Wellenlänge	m
2 Kr	Kritische Wellenlänge bei der Grenzflächen-	
	instabilität	m
$\lambda_{m}$	Am schnellsten wachsende Wellenlänge der Grenz-	
	flächeninstabilität	m
μ	Dynamische Viskosität	kg/ms
V	Kinematische Viskosität	m <sup>2</sup> /s
π	Kreiskonstante	-
9	Dichte	kg/m <sup>3</sup>
б	Oberflächenspannung	N/m
τ	Scherkraft	N/m <sup>2</sup>
J	Reibungsziffer	-

## <u>Indizes</u>

eff	effektiv
F	kalte Flüssigkeit
FB	Filmsieden
G	Grenzfläche
К	Kontakt
Кi	kinetisch
Kr	kritisch
L	Umgebung des heißen Tropfens
min	Minimum
R	Reibarbeit
sat	Sättigung
sys	System
Т	heißer Tropfen
TB	Thermische Grenzschicht
RS	Oberfläche des Tropfens
RT	Rayleigh-Taylor
KH	Kelvin-Helmholz
Tr	Trigger
V	Dampf
đ	Oberflächenenergie
$  ^{(1)},   ^{(2)}$	Medium 1, 2
$  _{1}$ , $  _{2}$ , $  _{1}$	Zeitverlauf
π	dimensionslos
l°l	zeitliche Ableitung

ĕ

### 10. Literaturverzeichnis

- /1/ Smidt, D.: Reaktortechnik, Bd. 2: Anwendungen G. Braun, Karlsruhe, 1977
- /2/ Schumann, U.: "Dampfexplosion - Physikalische Grundlagen und Bezug zur Reaktorsicherheit", KfK 3388, 1982
- /3/ Bankoff, S.G.: "Vapor Explosions", Reactor Safety Heat Transfer, Hemisphere Pub. Co., 1981
- /4/ Cronenberg, A.W. & Benz, R.: "Vapor Explosion Phenomena with Respect to Nuclear Reactor Safety Assessment", Adv. Nucl. Science and Technology, Vol. 12, 247-334, 1978
- /5/ Bradfield, W.S.: "Liquid-Solid Contact in Stable Film Boiling", I & EC Fundamentals, Vol. 5, 200-204, 1966 (Industrial and Engineering Chemistry)
- /6/ Yao, S. & Henry, R.: "An Investigation of the Minimum Film Boiling Temperature on Horizontal Surfaces", Int. Heat Transfer, Vol. 400, 260-267, 1978
- /7/ Hicks, E.P. & Menzies: "Theoretical Studies on the Fast Reactor Maximum Accident", ANL-7120, 654-670, 1965
- /8/ Anderson, R.P. & Armstrong, D.R.: "Comparison between Vapor Explosion Models and Recent Ex- perimental Results", AIChE Symposium Series, No. 138, Vol.70, 31-47, 1974

- /9/ Caldarola, L.:
   "A theoretical Model with Variable Masses for the Molten
   Fuel-Sodium Thermal Interaction in a Nuclear Fast Reactor",
   Nucl. Engrg. & Des., Vol. 34, 181-201, 1975
- /10/ Board, S.J. et.al.: "Detonation of Fuel Coolant Explosions", Nature, Vol. 254, 319-321, 1975
- /11/ Fishlock, T.P.: "Calculations on Propagating Vapor Explosions for the Aluminium/Water and UO<sub>2</sub>/Sodium Systems", Fourth CSNI Spec. Meetg. on Fuel-Coolant Interaction in Nucl. Reactor Safety, Bournemouth, CSNI Report No. 37, Vol. 1, 54-80, 1979
- /12/ Jacobs, H.: "Computational Analysis of Fuel-Sodium Interactions with an Improved Method", Proc. Int. Meetg. Fast Reactor Safety and Related Physics, Chicago, CONF-76100 1, Vol. 3, 926-935, 1976
- /13/ Fauske, H.K.:
   "The Role of Nucleation in Vapor Explosions", Trans. ANS,
   Vol. 15, 813-814, 1972
- /14/ Fauske, H.K.:
   "On the Mechanism of Uranium Dioxide-Sodium Explosive Inter actions", Nucl. Sci. and Engrg., Vol. 51, 95-101, 1973
- /15/ Fauske, H.K.:
   "Some Aspects of Liquid-Liquid Heat Transfer and Explosive
   Boiling", Proc. of the Fast Reactor Safety Meetg., Beverly
   Hills, CONF-740401, 992-1005, 1974
- /16/ Ochiai, M. & Bankoff, S.G.: "Liquid-Liquid Contact in Vapor Explosions", Proc. Int. Meetg. Fast Reactor Safety and Related Physics, Chicago, CONF-761001, Vol. 4, 1843-1851, 1976

- /17/ Anderson, R.P. & Armstrong, D.R.: "R-22 Vapor Explosions", Nucl. Reactor Safety Heat Transfer, Proc. Winter Annual Meetg. ASME, Atlanta, 31-45, 1977
- /18/ Briggs, A.J.: "Experimental Studies of Thermal Interactions at AEE Winfrith", Third Specialist Meetg. on Sodium Fuel Interactions, Tokyo, PNC N251, 75-96, 1976
- /19/ Board, S.G. & Hall, R.W.: "Propagatin of Thermal Explosions, Part 1: Tin/Water Expe-riments", CEGB Report RD/B/N2850, 1974
- /20/ Reynolds, J.A. et al.: "Fuel-Coolant Interactions - Some Basic Studies at the UKAEA Culham Laboratory", Third Spec. Meetg. on Sodium Fuel Interactions, Tokyo, PNC N251, 1976
- /21/ Sharon, A. & Bankoff, S.G.: "Fuel-Coolant Interaction in a Shock Tube with Initially- Established Film Boiling", Chemical Eng. Dep., Northwestern Univ., Evanson, IL 60201, C00-2512-16, 1979
- /22/ Fry, C.J. & Robinson, C.H.: "Experimental Observations of Propagating Thermal Interactions in Metal/Water Systems", Fourth CSNI Spec. Meetg. on Fuel-Coolant Interaction in Nucl. Reactor Safety, Bournemouth, CSNI Report No. 37, Vol. 2, 329-362, 1979
- /23/ Henry, R.E. et al.: "Large Scale Vapor Explosion", Fast Reactor Safety Meetg., Beverly Hills, CONF-740401, 922-934, 1974
- /24/ Board, S.J. et al.:
   "The Role of Spontaneous Nucleation in Thermal Explosions Freon / Water Experiments", Fast Reactor Saf. Meetg.,
   Beverly Hills, CONF-740401, 935-936, 1974

- /25/ Armstrong, D.R.: "Reactor Development Program Progress Report", ANL-RDP-2, 1972
- /26/ Amblard, M. & Berthoud, G.: "UO<sub>2</sub> - Na Interactions - The CORECT-II Experiment", Fourth CSNI Spec. Meeting on Fuel-Coolant-Interaction in Nucl. Reactor Safety, Bournemouth, CSNI Report, No. 37, Vol. 2, p. 508, 1979
- /27/ El-Genk, M.S. & Hobbins, R.R.: "Analysis of Molten Fuel-Coolant Interaction during a Reactivity Initiated Accident Experiment", The Winter Annual Meetg. of ASME, Washington, D.C., HTD-Vol. 19, 1-16, 1981
- /28/ Schmidt, T.R.: "LMFBR Prompt Burst Excursion (PBE) Experiments in the Annular Core Pulse Reactor (ACPR)", ANS/ENS Meetg., Chicago, Conference Oct. 1976, SAND-76-5386
- /29/ Wright, R.W. et al.: "Summary of Autoclave Treat Tests on Molten Fuel Coolant Interactions", Fast Reactor Safety Meetg., Beverly Hills, CONF- 740401, 254-267, 1974
- /30/ Patel, P.D. & Theofanous, T.G.: "Hydrodynamic Fragmentation of Drops", J. Fluid Mech., Vol. 103, 207-223, 1981
- /31/ Theofanous, T.G. et al.:
   "The role of hydrodynamic fragmentation in fuel coolant in teractions", Fourth CSNI Spec. Meetg. on Fuel-Coolant Inter action in Nucl. Reactor Safety, Bournemouth, CSNI Report,
   No. 37, Vol. 1, p. 112, 1979
- /32/ Bains, M. et al.: "The Hydrodynamics of Large-Scale Fuel-Coolant Interactions", Nuclear Techn., Vol. 49, 27-39, 1980

- /33/ Schriewer, J.: Zur Theorie der hydrodynamischen Fragmentation von Flüssigkeitstropfen in flüssigen Medien durch Stoßwellen mit Anwendung auf die Systeme Hg/H<sub>2</sub>O, Fe/H<sub>2</sub>O, Stahl/Na, UO<sub>2</sub>/Na", Dissertation, Institut für Kernenergetik und Energiesysteme, Univ. Stuttgart, 1980
- /34/ Swift, D. & Baker, L.: "Reactor Development Program Report", ANL-7152, 87-96, 1965
- /35/ Witte, L.C. et al.: "Heat Transfer and Fragmentation During Molten-Metal/Water Interactions", J. of Heat Transfer, Trans. ASME, Ser. C, Vol. 95 521-527, 1973
- /36/ Katz, D.L. & Sliepcevich, C.M.: "LNG/Water explosions: cause & effect", Hydrocarbon Processing, 240-244, Nov., 1971
- /37/ Wey, B.O. et al.: "Boiling Fragmentation Studies and their Relevance to the Initiation and Propagation of FCI's", ICHMT Seminar, International Centre for Heat and Mass Transfer, Dubrovnik, Sept., 1980
- /38/ Colgate, S.A. & Sigurgeirsson, T.: "Dynamic Mixing of Water and Lava", Nature, Vol. 244, 552-555, 1973
- /39/ Corradini, M.:
   "Analysis and Modelling of Steam Explosion Experiments",
   SAND 80-2131
- /40/ Buchanan, D.J.: "A Model for Fuel-Coolant Interactions", Journal of Physics, D-7, 1441-1457, 1974

- /41/ Caldarola, L. & Kastenberg, W.E.: "On the Mechanism of Fragmentation during Molten Fuel/ Coolant Thermal Interaction", Proc. of the Fast Reactor Safety Meetg. Beverly Hills, CONF-740104, 937-954, 1974
- /42/ Ando, M. & Caldarola, L.: "Triggered Fragmentation Experiments at Karlsruhe", Proc. Information Exchange Meetg. on Post Accident Debris Cooling, Karlsruhe, July, Braun, 13-21, 1982
- /43/ Beirak, E.: Docteur Thèse, "Étude de la Recondensation D'une Bulle Diphasique Chaude se Detendant Dans son Liquide Froid en Presence ou Non de Gaz Incondensables" L'Universite de Grenoble, 1981
- /44/ Lienhard, J.H. & Karimi, A.: "Homogeneous Nucleation and the Spinodal Line", J. Heat Transfer, Tran. ASME, Vol. 103, 61-64, 1981
- /45/ Hütte des Ingenieurs Taschenbuch: Maschinenbau Teil A, Verlag von Wilhelm Ernst & Sohn, Berlin, 1954
- /46/ Spiegler, P. et al.: "Onset of Stable Film Boiling and the Foam Limit", Int. Journal of Heat & Mass Transfer, Vol. 6, 987-994, 1963
- /47/ Drumheller, D.: "The Initiation of Melt Fragmentation in Fuel Coolant Interactions", Nucl. Sci. Engrg. Vol. 72, 347-350, 1979

/48/ Cho, D. et al.: "Some Aspects of Mixing in Large-Mass, Energetic Fuel Cool- ant Interactions", Proc. Int. Meeting Fast Reactor Safety and Related Physics, Chicago, CONF-761001, Vol. 3, 926-935, 1976

- /49/ Inoue, A. et al.:
   "Study on Transient Heat Transfer of Film Boiling due to
   Arrival of Pressure Shock", Proc. the Seventh Int. Heat
   Transfer Conf., München, Vol. 4, 403-408, 1982
- /50/ Zyskowski, W.: "Results of Measurements of Thermal Interaction between Molten Metal and Water", KfK 2193, 1975
- /51/ Mizuta, H.: "Fragmentation of Uranium Dioxide after Molten Uranium Dioxide Sodium Interaction", Journal of Nucl. Sci. Techn. Vol. 11, 480-487, 1974
- /52/ McClure, J.A.:
   "Particle Size Distributions from Fuel Rods Fragmented
   during Power Burst Test in the Capsule Driver Core",
   IN-1428, 1970
- /53/ Frederking, T.H.K.:
   "Laminar Two-Phase Boundary Layers in Natural Convection
   Film Boiling of Subcooled Liquids", Journal of Applied
   Math. and Phys., Vol. 15, 388-399, 1964
- /54/ Hoang, Y.S.:
   (Persönliche Mitteilung)

#### (Liste der Tabellen und Abbildungen)

- Tab. 1 Eigenschaften der Versuchsmaterialien
- Tab. 2 Charakteristische Werte des typischen Triggerdruckpuls (Seite 31)
- Tab. 3Ergebnisse der Versuche für unterschiedliche Versuchsbedingungenim System Na/Pentan
- Tab. 4Ergebnisse der Versuche für unterschiedliche Versuchsbedingungenim System Silikonöl/Pentan
- Tab. 5 Vergleich zwischen thermischer Energie und Reaktionsarbeit für System Natrium/Pentan (Seite 46)
- Tab. 6 Vergleich zwischen den beiden Instabilitäten
- Tab. 7 Werte der Kennzahlen für verschiedene Materialpaarungen
- Abb. 1 Ereignisfolgen, die zu einer Dampfexplosion mit großem Schadenspotential führen, nach /4/.
- Abb. 2 Schematischer Aufbau der Versuchsanlage
- Abb. 3 Schema der Geometrie der Reaktionsumgebung und der Instrumentierung im System Na/Pentan
- Abb. 4 Schema des Gas-Vakuumsystems und der Natriumdestillation
- Abb. 5 Schema des Prinzips zur Messung der Bewegung der umgebenden Flüssigkeit
- Abb. 6 Schematische Darstellung des zeitlichen Ablaufs der Ereignisse
- Abb. 7 Einordnung der Versuchsergebnisse von Natriumtropfen in Pentan
- Abb. 8 Einordnung der Versuchsergebnisse von Silikonöltropfen in Pentan
- Abb. 9 Gemessener Triggerdruckverlauf
- Abb. 10 Gemessener Reaktionsdruckverlauf und Triggerdruckverlauf im System Natrium/Pentan
- Abb. 11 Gemessener Reaktionsdruckverlauf und Triggerdruckverlauf im System Silikonöl/Pentan
- Abb. 12 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (1)
- Abb. 13 Aufgenommene Hochgeschwindigkeitsbilder
- Abb. 14 Wachstum der Reaktionszone und des Flüssigkeitsgehaltes
- Abb. 15 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (2)
- Abb. 16 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (3)
- Abb. 17 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (4)

Abb. 18 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (5) Abb. 19 Max. Reaktionsdruck als Funktion der Tropfentemperatur für Natriumtropfen Abb. 20 Max. Vermischungsrate als Funktion der Tropfentemperatur für Natriumtropfen Abb. 21 Max. Reaktionsdruck als Funktion der Tropfentemperatur für Silikonöltropfen Abb. 22 Verzögerungszeit als Funktion der Tropfentemperatur für Natriumtropfen Abb. 23 Verzögerungszeit als Funktion des Triggerdrucks für Natriumtropfen Abb. 24 Verzögerungszeit als Funktion der Tropfentemperatur für Silikonöltropfen Abb. 25 Massenanteil der Natrium-Fragmente Abb. 26 Häufigkeitsverteilung der Natrium-Fragmente Abb. 27 Propagation der Druckwelle und Dampffilmzusammenbruch Abb. 28 Grenzflächengeschwindigkeit durch die Druckwelle Abb, 29 Schematische Darstellung des symmetrischen Dampffilmzusammenbruchs Abb. 30 Rechenbeispiel zum Verlauf des Dampffilmzusammenbruchs für Eisenoxyd und Wasser im Vergleich mit Berechnungen nach Drumheller /47/ Abb. 31 Ermittelter Verlauf des Dampffilmzusammenbruchs im System Natrium/Pentan Abb. 32 Geschwindigkeit der Flüssigkeit und Dampfdruck vor dem Zusammenstoß mit dem Natriumtropfen Abb. 33 Schematische Darstellung der Instabilitäten an einer lokalen Kontaktstelle Abb. 34 "Am schnellsten wachsende Wellenlänge" und Wachstumszeitkonstante für Rayleigh-Taylor Instabilität Abb. 35 "Am schnellsten wachsende Wellenlänge" und Wachstumszeitkonstante für Kelvin-Helmholz Instabilität Abb. 36 Max. Vermischungsrate der Flüssigkeit aus Versuchsergebnissen im Vergleich mit Rechenergebnissen Abb. 37 Schema für ein Fragmentationsmodell Abb. 38 Schema zur Abschätzung der Vermischungsenergie Abb. 39 Aufgenommene Hochgeschwindigkeitsbilder im System Silikonöl/Pentan (1)

- Abb. 40 Aufgenommene Hochgeschwindigkeitsbilder im System Silikonöl/Pentan (2)
- Abb. 41 Schematische Darstellung des Mechanismus des externen Triggerdrucks
- Abb. 42 Massenanteil der Fragmente für verschiedene Materialpaarungen
- Abb. A-1 Schematische Temperaturverteilung vor der Fragmentation
- Abb. A-2 Zeitlicher Verlauf der Temperatur und der thermischen Grenzschicht des Tropfens
- Abb. B-1 Rechenergebnis zur örtlichen Druckverteilung

## Tab. 1 Eigenschaften der Versuchsmaterialien

	Silikonöl DC 710	Na	Pentan
Siedepunkt ( <sup>O</sup> C) bei 1 bar	_	880	36
Kritische Temperatur ( $^{\circ}$ C)		2235	197
Kritischer Druck (bar)		256 ~ 400	34
Homogene Keimbildungs- temperatur (°C)	<b>-</b> .	1600 ~ 1900	145
Wärmeleitzahl (W/Km)	0,14	62	0,12
Wärmekapazität (J/kg K)	1560	1250	2250
Dichte $(kg/m^3)$ <u>1</u>	850 ~ 900	880	630
Wärmeeindringzahl (J/m sec <sup>2</sup> K)	450	7800	375
Verdampfungswärme (J/kg)		3,6 · 10 <sup>6</sup>	3,6 · 10 <sup>5</sup>
Oberflächenspannung (N/m)	0,02	0,14	0,01
Viskosität (kg/msec)	0,27	0,2 · 10 <sup>-3</sup>	0,23 · 10 <sup>-3</sup>
Schallgeschwindigkeit (m/sec)	~ 900	2500	1170

.

(

Versuchs-	Temp.	Trigger	R.Druck	Verzö-	Verhält-	Fragmen-	Filmau	Enahme	Э
nummer		Druck	D	gerung	nis des Impuls	tation	Auf-	Ana-	 
	( <sup>0</sup> C)	(bar)	(bar)	(µs)	Reak/Trig		nanme	турс	
V 1	120	2	-	-	-	-	-	-	
V 2	120	4		_	_	_	0	-	
V 3	120	5	2.8	60	0.56	Teilw.	0	-	
V 4	120	5	2	70	0.4	Teilw.	0	-	
V 5	120	10	6.2	60	0.744	Ja	0	Abb.	15
V 6	120	10	6.0	60	0.55	Ja	0	0	
V 7	135	2	-	-	_	-	0	-	
V 8	130	4.5	3	60	1.0	Ja	0	Mone	
V 9	130	7.5	5	50	0.9	Ja	0	· -	
V 10	140	1.5	-	_	_		0	-	
V 11	140	3	2	50	1.6	Ja	0	-	
V 12	142	8	7.5	50	1.25	Ja	0		
V 13	155	2			-	_	0		
V 14	150	4	2.5	50	1.1	Ja	0	-	
V 15	150	10	11.0	50	1.5	Ja	0	Abb.	12
V 16	150	10	10	40	1.5	Ja	0	-	
V 17	160	2	-	_	-	_ `	0	-	
V 18	175	$\overline{2}$	-	_	-	-	0	-	
V 19	180	4	3	60	0.75	Teilw.	0	Abb.	17
V 20	180	8	6	45	1.0	Ja	0	Abb.	18
V 21	295	3.5	-	_	-	_			
V 22	200	3.0			-		-		
V 23	200	10	12	20	1.6	Ja	0		
V 24	200	10	10	30	1.3	Ja	0	o	
V 25	220	3	-	-	-	-	0		
V 26	220	4	4 2	50	1.7	Teilw.	0		
V 27	220	8	8	35	1.4	Ja	0		
V 28	250	4	-		_	-	0		
V 29	260	9	б	40	1.0		0		
V 30	290	5 5	ů 4	60	0.7	Ja	0		
V 31	305	5	4	65	0.8	Teilw.	0		
V 32	300	9	6	50	0.9	Ла	0	0	
V 33	340	4 5	-	-	-	-	0	-	
V 3A	360	7	Λ	70	0.6	Teilw	0		
V 35	360	10	5	60	0.0	.Ta	ñ	0	
V 36	360	15	10	55	0.0	Ja	Õ		
v 30 v 37	300	т. Б. Б.	2 2	60	0.4	Teilw	0		
v 37 V 38	370	5.5	<u> </u>	-	-		0		
V 30	400	U Q	55	65	07	.Te	0		
v JJ	400	10	J.J 7	55	0.7	Ja To	0	۸bb	16
V 30 V 41	400	10	7	50 50	0.33	Ja Ja	0	. uun 0	10
V *2 I	400	10	/	00	0.7	υα	Ŷ	0	

## <u>Tab. 3:</u> Ergebnisse der Versuche für unterschiedliche Versuchsbedingungen im System Na/Pentan

Versuchs-	Temp.	(T <sub>K</sub> )	Trigger	RDruck	Verzö-	Verhält-	Frag-	Filmauf-
numer	( <sup>0</sup> C)	(°C)	Druck	(bar)	gerung	nis des	menta-	nahme
			(bar)		(µs)	Impuls	tion	
VS 1	190	(115)	2.0	2		<1.0	Ja	Abb. 39
VS 2	180	(115)	1.0	-	-	-	-	
VS 3	200	(127)	1.0	-	-	-	-	0
VS 4	210	(133)	0.5	-	-	-		0
VS 5	210	(133)	1.0	-	-	-	-	0
VS 6	210	(133)	1.5	1.2	30	4	Ja	0
VS 7	220	(138)	0.5	-	-	-	-	0
VS 8	220	(138)	7.5	1.2	25	3	Ja	0
VS 9	220	(138)	2.5	2.2	25		-	-
VS 10	235	(145)	2	2.5	25	5.6	Ja	0
VS 11	240	(150)	0.5	0.4	30	3	-	-
VS 12	245	(150)	1.5	1.2	20	5.4	Ja	Abb. 40
VS 13	247	(155)	1.2	1.4	20	7.3	-	
VS 14	260	(160)	1.0	0.8	40	2,6	Ja	0
VS 15	260	(160)	1.6	2.0	20	5.3	Ja	0
VS 16	270	(165)	0.5	Pre-	-	-	-	-
VS 17	275	(108)	1.2	2.3	10	9.6	Ja	-
VS 18	275	(168)	2.2	2.5	10	5.7	Ja	0
VS 19	290	(176)	2.0	2.2	10	8.8	Ja	0
VS 20	310	(185)	1.0	-			-	
VS 21	310	(185)	1.5	-	-		-	-
VS 22	310	(185)	3.0	3.2	20	6.7	Ja	0

.

,

<u>Tab. 4:</u> Ergebnisse der Versuche für unterschiedliche Versuchsbedingungen im System Silikonöl/Pentan

## Tab. 6 Vergleich zwischen den beiden Instabilitäten

Charakt <b>e</b> ristische Menge	Rayleigh-Tayl <b>o</b> r	Kelvin-Helmholz
Antriebsereignis	Beschleunigung der Grenzfläche	Impulsstrom des Dampfs
länge für P <sub>sat</sub>	50 ~ 100 μm	1 ~ 10 μm
Zı erwartende Wachs- tumprate	kleiner	größer
Zı erwartende Wachs- tumszeitkonstante	1 ~ 10 µs	0.1 ~ 1 µs
Ausrichtung zur Grenzfläche	senkrecht	parallel

# Tab. 7 Werte der Kennzahlen für verschiedene Materialpaarungen

		:	
Paarung			$\mathbf{P}_{\perp}(\mathbf{T}_{\mathbf{Y}})$ , (5)
heiß - kalt	(T <sub>K</sub> )	$\frac{15 \text{ gr}(1 \text{ K})}{673} (\times 10^3)$	$\sigma_{r}^{r}$ $\rho_{r}^{r}$ $\rho_{r}^{r}$ (x 10°)
Silikonöl -	Pentan		
	(T <sub>HN</sub> ~ T <sub>K</sub> r)	0,7~1,4	2,3 ~ 4,9
Wasser-Freo	n-22		
	(T <sub>HN</sub> ~ T <sub>Kr</sub> )	0,8 ~ 1,3	2,0 ~ 3,3
Aluminium-W	asser		
	(T <sub>Kr</sub> )	1,3	1,7
Zinn - Wass	er		
•	(T <sub>Kr</sub> )	0,72	1,6
Kupfer - Wa	sser		
(oxydiert)	(T <sub>kr</sub> )	0.85	1.6
Kupfer - Wa	sser	0,56	1,0
Natrium - P	entan		
	(T <sub>HN</sub> - T <sub>Kr</sub> )	0,35 ~ 0,71	0,61 ~ 1,2
UO <sub>2</sub> - Wasse	r		
٢	(T <sub>Kr</sub> )	0,77	1,6
UO <sub>2</sub> - Natri	um		
2	(T <sub>K</sub> )	0,25	0,33
	(T <sub>HN</sub> ) T <sub>HN</sub> = 1900 C	0,8	1,6

P (Pa) ,  $\sigma(N/m)$  ,  $p(kg/m^3)$ 



Abb. 1 Ereignisfolgen, die zu einer Dampfexplosion mit großem Schadenspotential führen, nach /4/



## Abb. 2 Schematischer Aufbau der Versuchsanlage

- 99 -



Abb. 3 Schema der Geometrie der Reaktionsumgebung und der Instrumentierung im System Na/Pentan


Abb. <sup>4</sup> Schema des Gas-Vakuumsystems und der Natriumdestillation



Abb. 5 Schema des Prinzips zur Messung der Bewegung der umgebenden Flüssigkeit



Abb. 6 Schematische Darstellung des zeitlichen Ablaufs der Ereignisse



Abb. 7 Einordnung der Versuchsergebnisse von Natriumtropfen in Pentan

- 104



Einordnung der Versuchsergebnisse von Silikonöltropfen in Pentan Abb. 8







Abb. 10 Gemessener Reaktionsdruckverlauf und Triggerdruckverlauf im System Natrium/Pentan



Abb.11 Gemessener Reaktionsdruckverlauf und Triggerdruckverlauf im System Silikonöl/Pentan



Abb. 12 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (1)

## T<sub>T</sub> = 150℃ Natrium - Pentan



Trigger Ankunft 1. (I)



2. (I)



3. 25 Jusec





4.

5. 50 µsec



(III)



75,LGec 7.



8.



9. 100 usec



10.



11. 125 usec



12. (IV)



13. 150 Jusec



14. 175 usec

15. 200 usec



17. 300 usec (V)



18. 400 usec



19. 500 µsec



20.700 usec (VI)



21.900 µsec



16. 250 usec



Abb. 14 Wachstum der Reaktionszone und des Flüssigkeitsgehaltes



Abb. 15 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (2)



Abb. 16

— 113 —



## Abb. 17

Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (4)

— 114 —



Abb. 18 Verlauf der Reaktion im System Natrium/Pentan (5)





116 —



Abb. 20 Max. Vermischungsrate als Funktion der Tropfentemperatur für Natriumtropfen



Abb. 21 Max. Reaktionsdruck als Funktion der Tropfentemperatur für Silikonöltropfen



Abb. 22 Verzögerungszeit als Funktion der Tropfentemperatur für Natriumtropfen

- 119 -



## Abb.23 Verzögerungszeit als Funktion des Triggerdruck für Natriumtropfen



Verzögerungszeit als Funktion der Tropfentemperatur für Silikonöltropfen Abb.24



Abb. 25 Massenanteil der Natrium-Fragmente



Abb. 26 Häufigkeitsverteilung der Natrium-Fragmente



Abb. 27 Propagation der Druckwelle und Dampffilmzusammenbruch



Abb. 28 Grenzflächengeschwindigkeit durch die Druckwelle



Abb. 29 Schematische Darstellung des symmetrischen Dampffilmzusammenbruchs



Abb. 30 Rechenbeispiel zum Verlauf des Dampffilmzusammenbruchs für Eisenoxyd und Wasser im Vergleich mit Berechnungen nach Drumheller /47/

- 127 -



Abb. 31 Ermittelter Verlauf des Dampffilmzusammenbruchs im System Natrium/Pentan



Abb. 32 Geschwindigkeit der Flüssigkeit und Dampfdruck vor dem Zusammenstoß mit dem Natriumtropfen



Abb. 33 Schematische Darstellung der Instabilitäten an einer lokalen Kontaktstelle



Abb. 34 Am schnellsten wachsende Wellenlänge und Wachstumszeitkonstante für R-T Instabilität



Abb. 35 Am schnellsten wachsende Wellenlänge und Wachstumszeitkonstante für K-H Instabilität



Abb. 36 Max. Vermischungsrate der Flüssigkeit aus Versuchsergebnissen im Vergleich mit Rechenergebnissen



Abb. 37 Schema für ein Fragmentationsmodell



Vor der Vermischung

(Filmsieden)



Aufbrechen





- 135 ---

Bewegung

Vermischung

27111/17

Abb. 38 Schema zur Abschätzung der Vermischungsenergie



Abb. 39 Aufgenommene Hochgeschwindigkeitsbilder im System Silikonöl/Pentan (1)


Abb. 40 Aufgenommene Hochgeschwindigkeitsbilder im System Silikonöl/Pentan (2)





Abb. 42 Massenanteil der Fragmente für verschiedene

42 Massenanteil der Fragmente für verschiedene Materialpaarungen



- 140 ---



Abb. A-2 Zeitlicher Verlauf der Temperatur und der thermischen Grenzschicht des Tropfens



