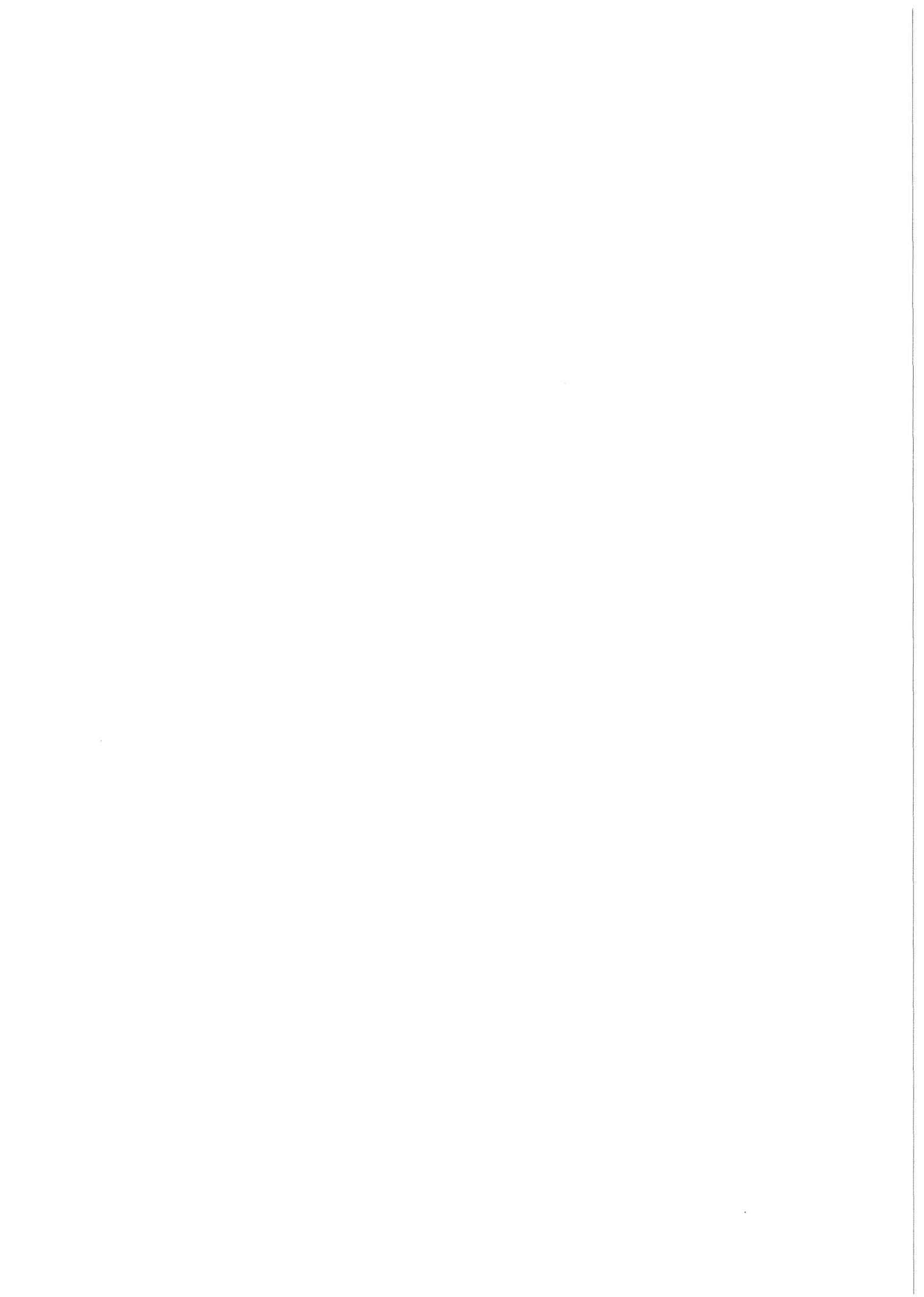


KfK 4574  
Juni 1989

# **Untersuchungen zur Dampfexplosion mit Aluminiumoxid-Tropfen in Natrium**

H.-J. Zimmer  
Institut für Reaktorentwicklung  
Projekt Schneller Brüter

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Reaktorentwicklung

Projekt Schneller Brüter

KfK 4574

Untersuchungen zur Dampfexplosion mit Aluminiumoxid-Tropfen  
in Natrium

Hans-Josef Zimmer

Dissertation genehmigt von der Fakultät  
für Maschinenbau der Universität Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe G.m.b.H., Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

## Untersuchungen zur Dampfexplosion mit Aluminiumoxid-Tropfen in Natrium

### Zusammenfassung

Bei der Analyse von schweren, hypothetischen Schnellbrüterstörfällen sind die Auswirkungen einer BNR, d.h. thermischen Reaktion des heißen Brennstoffs mit Natrium, zu berücksichtigen. Um die thermische Fragmentation eines Einzeltropfens zu untersuchen, wurden Experimente mit schmelzflüssigen Aluminiumoxid-Tropfen in Natrium durchgeführt. Bei den Experimenten wurden Aluminiumoxidtemperaturen bis zu 3100 K und Natriumtemperaturen bis zu 1143 K erreicht. Es ist erstmals gelungen den Filmsiedezustand zwischen einem Aluminiumoxid-Tropfen und Natrium einzustellen.

Bei einigen Experimenten, in denen sich der Tropfen im Filmsieden befand, wurde die Fragmentation durch eine extern erzeugte Triggerdruckwelle eingeleitet. In diesen Experimenten erfolgte nach Erreichen einer Kontakttemperatur von 2060 K  $\pm$  160 K eine prompte Reaktionsdruckverstärkung nach der Triggerung. In Analogie zu Tropfenexperimenten mit anderen Materialien entspricht diese Kontakttemperatur etwa der homogenen Keimbildungstemperatur des Kühlmittels.

Basierend auf den vorhandenen und früheren experimentellen Ergebnissen wurde ein Modell für die Fragmentation entwickelt.

Investigations of vapour explosions with alumina-droplets in sodium

Abstract

Within the analysis of severe hypothetical fast breeder accidents the consequence of a fuel-coolant interaction has to be considered, i.e. the thermal interaction between hot molten fuel and sodium. Experiments have been performed to study the thermal fragmentation of a molten alumina droplet in sodium. Alumina temperatures up to 3100 K and sodium temperatures up to 1143 K were used. For the first time film boiling of alumina drops in sodium was achieved. With some droplets undergoing film boiling, the fragmentation was triggered by an externally applied pressure wave. In these experiments, the trigger was followed promptly by a strong reaction pressure wave if and only if a contact temperature threshold of  $T_I = 2060 \text{ K} \pm 160 \text{ K}$  was exceeded. In agreement with similar experiments in which other materials were studied, this threshold corresponds to an interfacial temperature close to the homogeneous nucleation temperature of the vapourising liquid. Based on the present and previous experimental results a model concept of thermal fragmentation is developed.

## Inhaltsverzeichnis

Liste der Abbildungen und Tabellen	IV
1. EINLEITUNG	1
1.1 Problemstellung	1
2. ÜBERBLICK ÜBER DIE WICHTIGSTEN THEORETISCHEN UND EXPERIMENTELLEN ARBEITEN UND ZIELSETZUNG DIESER ARBEIT	2
2.1 Allgemeine Definition	2
2.2 Theoretische Arbeiten	3
2.3 Experimentelle Arbeiten	10
2.4 Fragmentationsmodelle	14
2.5 Ziele dieser Arbeit	18
3. EXPERIMENTE	19
3.1 Experimenteller Aufbau	19
3.2 Temperatur- und Druckmeßtechnik, Akustik des Na-Behälters	29
3.3 Durchführung der Experimente	35
3.4 Fehlerabschätzung	37
4. VERSUCHSERGEBNISSE	40
4.1 Zusammenstellung der Wechselwirkungsarten	40
4.2 Experimentelle Bestimmung der Siedeformen in Natrium	41
4.2.1 Selbsttriggernde Wechselwirkung im unterkühlten Blasen- sieden	47
4.2.2 Selbsttriggernde Wechselwirkung im Filmsieden	49
4.2.3 Getriggerte Wechselwirkung mit verzögerter Druck- verstärkung	53
4.2.4 Getriggerte Wechselwirkung mit prompter Druckverstärkung	55
4.3 Nachuntersuchungen der Fragmente	60
4.4 Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse	61

5.	THEORETISCHE ARBEITEN	63
5.1	Berechnung der minimalen Filmsiedetemperatur und Anwendung auf die experimentellen Ergebnisse	63
5.2	Nachrechnungen zum Krustenwachstum und Bestimmung des Wärmeübergangskoeffizienten im Natrium-Filmsieden als Funktion der Unterkühlung	68
5.3	Nachrechnungen zum getriggerten Dampffilmkollaps um eine Kugel mit Hilfe der Kollokationsmethode	74
6.	INTERPRETATION DER ERGEBNISSE	84
6.1	Physikalische Interpretation der Wechselwirkungsmechanismen und Modellvorstellungen zur Fragmentation	84
6.1.1	Modell der selbsttriggernden Wechselwirkung im unterkühlten Blasensieden	84
6.1.2	Modell der selbsttriggernden Wechselwirkung im Filmsiedezustand	87
6.1.3	Modell der getriggert verzögerten bzw. prompten Wechselwirkung im Filmsiedezustand	93
6.2	Die Rolle der spontanen Keimbildungstemperatur	97
7.	ZUSAMMENFASSUNG	99
8.	LITERATUR	101
9.	NOMENKLATUR	113
APPENDIX A:	Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse Thermophysikalische Eigenschaften der Versuchsmaterialien	116
APPENDIX B:	Technische Realisierung der Schmelzeinrichtung	120
APPENDIX C:	Korrektur der HENRY-Korrelation hinsichtlich des Strahlungseinflusses	123
APPENDIX D:	Mathematische Beschreibung des Dampffilmkollapsmodells	126

APPENDIX E:	Einfluß der Marangoni-Instabilitäten auf die thermische Wechselwirkung	132
APPENDIX F:	Makro- bzw. REM-Aufnahmen ausgewählter Experimente	136

## Liste der Abbildungen und Tabellen

Abbildung 2.1	Dampfexplosionskriterium nach Fauske	6
Abbildung 2.2	Schematische Darstellung einer Temperaturwechselwirkungszone, "TIZ"	12
Abbildung 2.3	Benötigter externer Triggerdruck zur Einleitung der Fragmentation in Na-Pentan Tröpfchenexperimenten /2/	13
Abbildung 2.4	Maximaler Reaktionsdruck als Funktion der Kontakttemperatur in Silikonöl-Pentan Experimenten /2/	14
Abbildung 3.1	Prinzipskizze der Gesamtanlage	20
Abbildung 3.2	Handschuhbox	21
Abbildung 3.3	Schmelzeinrichtung	23
Abbildung 3.4	Schmelzeinrichtung für den Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tropfen	24
Abbildung 3.5	Schematische Darstellung des Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tropfens im Strahlungssofen	25
Abbildung 3.6	Natrium-Versuchsbehälter	26
Abbildung 3.7	Versuchsbehälter nach der Fertigung	27
Abbildung 3.8	Versuchsbehälter nach der Montage an die Handschuhbox	28
Abbildung 3.9	Schematische Darstellung des Versuchsbehälters hinsichtlich der Reaktions- und Triggerdruckwellenausbreitung	31
Abbildung 3.10	Maximale Triggerdruckamplitude im Behälter, DA-oben als Funktion der Kondensatorspannung	32
Abbildung 3.11	Druckimpulsverlust als Funktion der Kondensatorspannung	32
Abbildung 3.12	Druck am Reaktionsort als Funktion des gemessenen Triggerdruckes im Behälter, DA-oben	33
Abbildung 3.13	Zeitlicher Ablauf der Experimente	36
Abbildung 4.1	Gesamtdarstellung aller ausgewerteten Experimente, geordnet nach dem vorgelegten Wechselwirkungsverhalten	40
Abbildung 4.2	Siedeformen beim "pool-boiling" /84/	42

Abbildung 4.3	Schematische Darstellung der Dampfblasenbildung beim unterkühlten Blasensieden /82/	43
Abbildung 4.4	Schnittbild durch einen erstarrten $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen	45
Abbildung 4.5	Tropfenverweilzeit im Natrium bis zur selbsttriggernden Wechselwirkung als Funktion der Kontakttemperatur	45
Abbildung 4.6	Reaktionsdruck DA-oben, als Funktion der Kontakttemperatur	46
Abbildung 4.7	Reaktionsdruck DA-Temperaturabklingstrecke, als Funktion der Kontakttemperatur	46
Abbildung 4.8	Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung im unterkühlten Blasensieden, DA-oben, V19	48
Abbildung 4.9	Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung im Filmsieden, DA-oben, V24	49
Abbildung 4.10	Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung im Filmsieden, DA-oben, V46	50
Abbildung 4.11	Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung, größere Zeitauflösung, DA-oben, DA-unten, V46	51
Abbildung 4.12	Tropfenverweilzeit im Natrium bis zur selbsttriggernden Wechselwirkung als Funktion der Kontakttemperatur	52
Abbildung 4.13	Reaktionsdruck der selbsttriggernden Reaktionen als Funktion der Kontakttemperatur, DA-oben	52
Abbildung 4.14	Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, verzögerten Wechselwirkung, DA-oben, V31	53
Abbildung 4.15	Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, verzögerten Wechselwirkung, DA-oben, DA-unten, V31	54
Abbildung 4.16	Triggerdruckverlauf ohne Wechselwirkungsergebnis Vorversuch zu V36, DA-oben	55
Abbildung 4.17	Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, prompten Wechselwirkung, DA-oben, V36	56
Abbildung 4.18	Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, prompten Wechselwirkung, DA-oben, DA-unten, V36	57

Abbildung 4.19	Reaktionsdruck der getriggerten Wechselwirkungen als Funktion der Kontakttemperatur, DA-oben	58
Abbildung 4.20	Reaktionsverzögerung als Funktion der Kontakttemperatur	59
Abbildung 5.1	Minimale Wandtemperatur nach Henry/55/ für $UO_2$ und $Al_2O_3$ als Funktion der Natriumtemperatur	65
Abbildung 5.2	Minimale Filmsiedetemperatur (Henry-Korrelation) als Funktion der Natriumtemperatur mit und ohne Berücksichtigung der Strahlung, experimentelle Ergebnisse der $Al_2O_3$ -Natrium Versuche	66
Abbildung 5.3	Minimale Filmsiedetemperatur (korrigierte Henry-Korrelation) als Funktion der Natriumtemperatur im System $UO_2$ -Natrium	67
Abbildung 5.4	Modellvorstellung zur Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten für das Natrium-Filmsieden	69
Tabelle 5.1	Anfangs- und Randbedingungen der nachgerechneten Experimente	71
Abbildung 5.5	Temperaturverteilung im $Al_2O_3$ -Tropfen zum Zeitpunkt der Wechselwirkung, Versuch 24	72
Tabelle 5.2	Lokale Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit des Winkels $\theta$	73
Abbildung 5.6	Wärmeübergangskoeffizient für das Na-Filmsieden als Funktion der Natriumtemperatur	73
Abbildung 5.7	Kontur und Geschwindigkeiten der Phasengrenzfläche bei einem $Al_2O_3$ -Wasser Experiment /39/	75
Abbildung 5.8	Zeitabhängige Phasengrenzflächenkontur während der Kompressionsphase, Beispiel 1	78
Abbildung 5.9	Phasengrenzflächengeschwindigkeit an den Kollisionspunkten in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 1	79
Abbildung 5.10	Druckverlauf im Dampf film in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 1	79
Abbildung 5.11	Zeitabhängige Phasengrenzflächenkontur während der Kompressionsphase, Beispiel 2	80

Abbildung 5.12	Phasengrenzflächengeschwindigkeit an den Kollokationspunkten in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 2	81
Abbildung 5.13	Druckverlauf im Dampffilm in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 2	81
Abbildung 6.1.1	Modellvorstellung der Wechseiwirkung im unterkühlten Blasensieden	85
Abbildung 6.1.2	Modellvorstellung der Wechselwirkung im Filmsieden	88
Abbildung 6.1.3	Modellvorstellung der getriggert, verzögerten bzw. prompten Wechselwirkung	94
Abbildung A.1	Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse	116
Abbildung B.1	Wirkschalplan der elektrischen Anlage	121
Abbildung D.1	Modellvorstellung zur Kollokationsmethode, hier mit fünf Kollokationswinkeln	131
Abbildung D.2	Modellvorstellung der Dampfströmung im Film	131
Abbildung E.1	Schematische Darstellung der Oberflächenturbulenz infolge Marangoni-Instabilitäten	133
Abbildung E.2	Geschwindigkeitsverteilung in der Grenzschicht der Dicke $\delta$	133
Abbildung F	Makro- bzw. REM-Aufnahmen der Fragmente	136

## 1. EINLEITUNG

### 1.1 Problemstellung

Im Rahmen von Sicherheitsanalysen für schnelle natriumgekühlte Brutreaktoren werden unter anderem auch Konsequenzen sogenannter hypothetischer Unfälle untersucht, d.h. Ereignisabläufe, deren Eintrittswahrscheinlichkeit extrem niedrig ist. In diesem Zusammenhang werden auch Kernschmelzunfälle diskutiert. Ein Zusammenreffen von Natrium und Oxidschmelze, dessen Temperatur weit oberhalb der Siedetemperatur des Kühlmittels liegt, könnte unter noch nicht vollständig verstandenen Voraussetzungen heftige, kohärente Dampfexplosionen, unter Freisetzung großer, mechanischer Energie zur Folge haben. Dies hätte für die Reaktorsicherheit ernste Folgen, da im Falle des Containmentversagens größere Mengen radioaktiver Stoffe in die Umgebung freigesetzt werden können.

Als Ursache für das Zustandekommen einer Oxidschmelze können folgende Einleitungsereignisse, bei denen es zu einer unkontrollierten Leistungsexkursion im Reaktorkern eines schnellen Brutreaktors kommt, genannt werden /1/:

- der unkontrollierte Kühlmitteldurchsatzstörfall, bei dem der extrem unwahrscheinliche Fall des gleichzeitigen Versagens aller Primärpumpen und beider Abschaltssysteme angenommen wird.
- der unkontrollierte Leistungsstörfall, bei dem, z.B. als Folge eines Ausfahrens einer Regelstabbank, eine Reaktivitätsrampe in den Reaktorkern eingeleitet wird, die beiden unabhängigen Abschaltssysteme die dadurch eingeleitete Leistungsexkursion aber nicht begrenzen, da sie ebenfalls versagen.

Eine solche unkontrollierte Leistungsexkursion führt dazu, daß die Brennstäbe überhitzen und letztendlich versagen. Die geschmolzene Masse aus Metalloxid ( $UO_2$ ) und Strukturmaterial tritt

mit dem Natrium in Kontakt und verursacht eine thermische Wechselwirkung.

Von entscheidender Bedeutung für die Interpretation einer solchen Wechselwirkung ist es thermische Randbedingungen zu bestimmen, die es erlauben, Aussagen über die Heftigkeit und das Zerstörungspotential einer thermischen Wechselwirkung zu treffen.

## 2. ÜBERBLICK ÜBER DIE WICHTIGSTEN THEORETISCHEN UND EXPERIMENTELLEN ARBEITEN UND ZIELSETZUNG DIESER ARBEIT

### 2.1 Allgemeine Definition

Eine Dampfexplosion ist ein sehr schnell ablaufender Wärmeübertragungsprozeß mit Dampfproduktion zwischen einer kalten, leicht flüchtigen Flüssigkeit (coolant) und einer sehr heißen Flüssigkeit (fuel), deren Temperatur weit über der Siedetemperatur der kälteren Flüssigkeit liegt. Während der Dampfexplosion findet ein rascher Wärmeübergang aufgrund einhergehender Fragmentation der heißeren Flüssigkeit statt. Damit es zu einer Explosion kommen kann, muß die Zeit, in der die Wärme übertragen wird klein sein gegenüber der Expansionszeit des Gemisches, sodaß ein wesentlicher Anteil der verfügbaren thermischen Energie in mechanische Arbeit umgesetzt werden kann.

Folgende Ereignisabläufe sind nach Cronenberg /3/ charakteristisch für eine Dampfexplosion:

Vorvermischungsphase: Eine heiße Flüssigkeit vermischt sich mit einer kälteren, leicht flüchtigen Flüssigkeit. Beide Komponenten sind zunächst durch einen Dampffilm voneinander getrennt.

Triggerphase: Der Dampffilm wird durch Druckstörungen oder thermische Effekte zum Zusammenbruch gebracht. Dabei kommt es zum

Flüssig-Flüssig Kontakt beider Komponenten, was einen intensiven Wärmeübergang und Druckaufbau zur Folge hat. Der direkte Flüssig-Flüssig Kontakt wird von Caldarola /4/ angezweifelt. Er stellte diese Voraussetzung infrage, da eine solche Kontaktart bei vielen der kalten Flüssigkeiten im überkritischen Temperaturbereich stattfinden müßte, was physikalisch undenkbar ist, z.B. in den Kupfer-Wasser Versuchen von Ando /5/.

Propagationsphase: Nach der Triggerung erfolgt die Wechselwirkung und Fragmentation der heißen Komponente. Der dadurch sprunghafte Anstieg der zur Wärmeübertragung zur Verfügung stehenden Oberfläche, kann zu einer großen Energiefreisetzung mit gleichzeitiger Verdampfung des Kühlmittels führen. Ist die Dampfexplosion an einer Stelle initiiert, erfolgt unter noch nicht vollständig geklärten Umständen eine Propagation der Reaktion über das gesamte Vorvermischungsgebiet.

Expansionsphase: Der durch die Reaktion entstandene hohe Dampfdruck wird durch Abgabe der Energie an die umgebende Flüssigkeit und unter Freisetzung mechanischer Energie an die Behälterwänden entspannt.

Im folgenden soll ein kurzer Überblick über die wichtigsten theoretischen und experimentellen Arbeiten zur Dampfexplosion gegeben werden. Da die Dampfexplosion bei einer großen Anzahl von Materialkombinationen beobachtet worden ist, umfaßt sie praktisch den gesamten technisch relevanten Temperaturbereich. Eine Vielzahl von Modelltheorien wurde bis heute zur Klärung der beobachteten Phänomene vorgestellt.

## 2.2 Theoretische Arbeiten

Auf die Möglichkeit einer Dampfexplosion im Reaktor weisen zum erstenmal Hicks und Menzies hin /6/. Die sehr konservative Ab-

schätzung zur maximal möglichen Energiefreisetzung beruht auf der Annahme, daß zwischen der heißen und kalten Flüssigkeit ein vollständiger Temperatúrausgleich nach der Vermischung stattfindet. Dies setzt eine ideale Feinfragmentation der Schmelze voraus. Das entstandene Gemisch aus Dampf- und Flüssigkomponenten wird danach unter Abgabe von Arbeit isentrop auf einen vorgegebenen Enddruck entspannt. Die hierbei berechneten Energiekonversionsraten liegen im Bereich von etwa 45%, was in deutlichem Widerspruch zu experimentell ermittelten Werten von maximal 1-4% steht.

Anderson und Armstrong /7/ modifizierten dieses Modell hinsichtlich der thermodynamischen Randbedingungen. In ihrem "adiabaten Modell" wird anstelle des plötzlichen Temperatúrausgleichs die isolierende Wirkung des Dampffilms zwischen Schmelze und Kühlmittel mit in Betracht gezogen. Die Rechenergebnisse zeigen, daß sich die thermisch freiwerdende Arbeit bis zu 50 % reduziert. Ähnliche Untersuchungen dieser Art wurden von Corradini /17/, Benz /9/, sowie Witte et al. /12/ durchgeführt. Eine ausführliche Beschreibung der zugrundegelegten Modellannahmen und benutzten Formeln, sowie parametrische Beispielberechnungen werden in /11/ angegeben.

Board und Hall /12-14/ haben in Anlehnung an die chemische Detonation, bei der die Energiefreisetzung infolge Verbrennung stattfindet, ein Modell für eine kohärente Dampfexplosion erstellt. Demnach soll eine Dampfexplosion nach dem gleichen Schema ablaufen wie eine chemische Detonation. Dieses Modell ist auf die Behandlung stationärer, ebener Druckwellenausbreitung beschränkt. Instationäre Modelle, wie sie von Jacobs /15/, Fishlock /16/ sowie Corradini /17/ vorgestellt wurden, ermöglichen darüberhinaus eine Aussage über den kleinstmöglichen Ausgangstrigger, der benötigt wird, um ein entsprechendes Detonationsverhalten zu initiieren. Berechnungen von Fishlock für die Systeme Al/H<sub>2</sub>O und UO<sub>2</sub>/Na zeigen zum Beispiel, daß ein Ausgangstrigger von 1 MPa für das erstgenannte System ausreicht, um in dem im Filmsiedezu-

stand vorvermischten System eine Detonationswelle entstehen zu lassen. Auch im  $UO_2/Na$ -System ist die Voraussetzung für eine kohärente Dampfexplosion eine Vorvermischung im Filmsiedezustand. Um hierzu die notwendigen Bedingungen zu schaffen werden, wie in einem späteren Kapitel deutlich gezeigt wird, extrem hohe Oxidtemperaturen und geringe Natriumunterkühlungen benötigt. Detaillierte, formelmäßige Beschreibungen zu den Detonationsmodellen findet man bei Goldammer /18/, Schwalbe /19/ und Schumann /11/.

Eines der wichtigsten und vieldiskutiertesten theoretischen Modelle ist das "spontane Keimbildungsmodell" nach Fauske /20-23/. Auf der Grundlage von Beobachtungen aus "large-scale" Experimenten (Experimente mit großen Massen) hat Fauské ein Temperaturkriterium zur Klärung der Dampfexplosion aufgestellt. Abb. 2.1 beschreibt in stark vereinfachter Form die grundlegenden Punkte seiner Hypothese.

"Eine Dampfexplosion kann nur dann stattfinden, wenn die sich einstellende Kontakttemperatur zwischen Schmelze und Kühlmittel oberhalb der spontanen Keimbildungstemperatur des Kühlmittels liegt."

Obwohl diese Hypothese aus den Ergebnissen von large-scale Experimenten entstanden ist, wurde auch in einigen "small-scale" Experimenten (Experimente mit kleinen Massen, z.B. Tröpfchenexperimente) eine erstaunlich gute Übereinstimmung zwischen Hypothese und experimentellem Befund festgestellt /2/, /24/. Da die erstmalige Überprüfung und Anwendbarkeit des Fauske-Kriteriums auf die reaktortypische Stoffkombination Oxidschmelze/Flüssigmetall zentraler Gegenstand dieser Arbeit darstellt, soll im folgenden etwas näher auf die theoretischen Hintergründe der spontanen Keimbildungstheorie eingegangen werden.

Die in Abb. 2.1 angegebene Kontakttemperatur  $T_I$  wird üblicherweise nach dem Modell zweier halbunendlicher Körper verschiedener Anfangstemperaturen berechnet, die zum Zeitpunkt Null in ideal

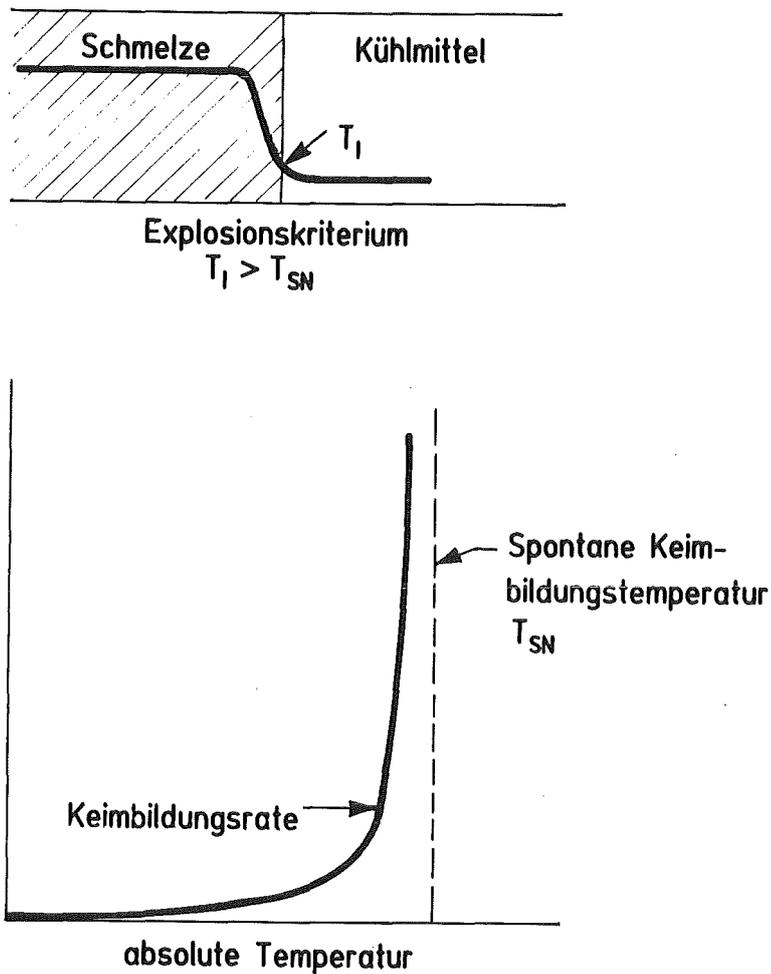


Abb. 2.1 Dampfexplosionskriterium nach Fauske

$$T_I = \frac{(\rho c_p \lambda)_H^{1/2} \cdot T_H + (\rho c_p d)_K^{1/2} \cdot T_K}{(\rho c_p \lambda)_H^{1/2} + (\rho c_p d)_K^{1/2}} \quad (2-1)$$

thermischen Kontakt gebracht werden. Gleichung (2-1) berücksichtigt jedoch nicht die eventuell freiwerdende Erstarrungswärme während der Kontaktierung. Korrigiert man (2-1) hinsichtlich dieser Tatsache, so erhält man die in dieser Arbeit benutzte Be-

ziehung für die Kontakttemperaturberechnung /25/.

$$T_I = \frac{(\rho c p \lambda)_H^{1/2} \cdot T_H + (\rho c p \lambda)_K^{1/2} \cdot T_K \cdot \operatorname{erf} \phi}{(\rho c p \lambda)_H^{1/2} + (\rho c p \lambda)_K^{1/2} \cdot \operatorname{erf} \phi} \quad (2-2)$$

mit

$$\frac{c p (T_H - T_K)}{\Delta h f g \cdot \sqrt{\pi}} = \phi e^2 \left\{ \frac{\lambda_H \sqrt{\frac{\lambda_H}{(\rho c p)_H}}}{\lambda_K \sqrt{\frac{\lambda_K}{(\rho c p)_K}}} + \operatorname{erf} \phi \right\} \quad (2-3)$$

Die spontane Keimbildungstemperatur  $T_{SN}$  geht aus der Ableitung der homogenen Keimbildungstemperatur  $T_{HN}$  unter Berücksichtigung der Benetzungseigenschaften zwischen den beiden flüssigen Komponenten während des Kontaktes hervor. Zur Bestimmung der homogenen Keimbildungstemperatur werden sowohl thermodynamische (siehe van Stralen und Cole /26/), als auch molekularkinetische Ansätze (siehe Blander und Katz /27/) herangezogen.

Die aus der thermodynamischen Betrachtungsweise gefundene Gleichung für die maximal mögliche Überhitzung einer Flüssigkeit, z.B. die van der Waals-Gleichung, wurden so angelegt, als ob die betrachtete Flüssigkeit oder das Gas ein Kontinuum darstellen und nicht aus Molekülen beständen. Molekulare Fluktuationen werden jedoch in Wirklichkeit beim Überhitzen die Flüssigkeit destabilisieren und zur Verdampfung anregen, bevor die thermodynamisch maximal erreichbare Überhitzungstemperatur, die Temperatur auf der Spinodale im Zweiphasengebiet, erreicht wird.

Die homogene Keimbildungstemperatur  $T_{HN}$  berechnet sich aus der van der Waals'schen Gleichung zu

$$T_{HN} = 27/32 \cdot T_{crit} \quad (2-4)$$

Nach der kinetischen Theorie für Gase und Flüssigkeiten können sich aufgrund der molekularen Bewegungen zufällig Dampfblasen-

keime bilden /26/. Der Modellvorstellung nach wachsen einzelne Siedekeime durch Absonderung einzelner Moleküle. Die Keimbildungsrate ist proportional der Keime pro Volumeneinheit, der Oberfläche der Keime, sowie der Rate, nach der einzelne Moleküle diese Oberfläche verlassen.

Findet die Siedekeimbildung in der Grenzfläche zweier Flüssigkeiten statt (in unserem Fall zwischen dem Oxid und dem Natrium), so ist die zur Siedekeimbildung benötigte Arbeit von der Benetzbarkeit der Flüssigkeiten untereinander und somit von den Verhältnissen der Oberflächenspannungen abhängig. Mit zunehmender Benetzung steigt die Keimbildungsarbeit und entspricht im extremsten Fall der homogenen Keimbildungsarbeit. Sinkt die Keimbildungsarbeit, d.h. im Falle schlechter Benetzung, so wird in der verdampfenden Flüssigkeit nur eine geringe Überhitzung benötigt, um hohe Keimbildungsraten zu erzielen. Die Keimbildungsarbeit kann mit Hilfe geometrischer Überlegungen hinsichtlich des Blasenwachstums an einer Flüssig-Flüssig-Grenzfläche berechnet werden, siehe van Stralen & Cole /26/ und andere Autoren /27/,/84/.

Auf diesen Grundlagen zur homogenen bzw. spontanen Siedekeimbildung hat Fauske sein Dampfexplosionsmodell aufgestellt. Folgende Anfangs- und Randbedingungen werden diesem Dampfexplosionsmodell zugrundegelegt:

- Schmelze und Kühlmittel müssen anfänglich durch einen Dampffilm voneinander getrennt sein, um eine Vorvermischung ohne größere Wärmeverluste zu erlauben. →(stabiles Filmsieden)
- Flüssig-Flüssig-Kontakt nach dem Dampffilmzusammenbruch
- Die sich instantan nach Kontakt an der Phasengrenze einstellende Kontakttemperatur  $T_I$  soll größer als die spontane Keimbildungstemperatur des Kühlmittels sein, um eine explosionsartige Verdampfung herbeizuführen (siehe Abb. 2.1).
- Ausreichende Verdämmung des Systems

Obwohl einige experimentelle Befunde die Anwendbarkeit des Temperaturkriteriums nach Fauske unterstützen, bleiben in diesem Modell weiterhin folgende Fragen unbeantwortet:

- Wieviel thermische Energie wird während der Dampfexplosion in mechanische Energie umgesetzt (Konversionsfaktor).
- In einigen Experimenten, z.B. Pentan/H<sub>2</sub>O, wurden Dampfexplosionen beobachtet, obwohl die Kontakttemperatur unterhalb der spontanen Keimbildungstemperatur lag. Fauske machte die sich plötzlich durch hydrodynamische Einflüsse ändernden Benetzungseigenschaften hierfür verantwortlich.
- Es werden Dampfexplosionen im System Stahl-Wasser in einem Kontakttemperaturbereich oberhalb der kritischen Temperatur des Wassers beobachtet /29/. Dies bedeutet, daß das von Dullforce /24/ erweiterte Fauske-Kriterium nicht vorbehaltlose Gültigkeit für alle denkbaren Materialkombinationen besitzt.
- Es fehlt der endgültige Beweis, ob die Wechselwirkung durch spontane Keimbildung oder durch den Zusammenbruch eines vorher vorhandenen Dampffilmes ausgelöst wird. Anhand der Experimente kann diese Frage nicht endgültig beantwortet werden. Beide Effekte treten etwa im gleichen Temperaturbereich auf /3/.

Weitere kritische Anmerkungen wurden von Board und Caldarola /30/ sowie Cronenberg et.al. /31/ gemacht. Trotz dieser Mängel hat jedoch das von Fauske aufgestellte Temperaturkriterium dazu beigetragen, die Erforschung der Dampfexplosion auf einige wenige Schlüsselphänomene zu konzentrieren. Nicht zuletzt die experimentellen Ergebnisse von Morita /2/ und deren weiterführende Interpretation von Jacobs und Pepler /32/ weisen darauf hin, daß das Temperaturkriterium nach wie vor als Voraussetzung für das Auftreten einer Dampfexplosion angesehen werden kann.

### 2.3 Experimentelle Arbeiten

In der Vergangenheit wurde eine Vielzahl von Experimenten zur Erforschung von Dampfexplosionen durchgeführt. Um bei der großen Zahl von Experimenten eine grobe Übersicht zu behalten, unterteilt man die Experimente sinnvollerweise nach den Experimenttypen, nach der Masse der beteiligten Komponenten sowie der verwendeten Stoffe:

- Experimenttypen:           Tropfenexperimente  
                          Eingußexperimente  
                          Einspritzexperimente  
                          Stoßrohrexperimente
  
- Masse der beteiligten  
  Materialien:           "large-scale" Experimente  
                          "small-scale" Experimente
  
- Stoffe:                   Metallische-, oxidische Schmelzen,  
                          organische Flüssigkeiten,  
                          Säuren

Einige Autoren haben eine nahezu vollständige Zusammenstellung der bisher durchgeführten experimentellen Untersuchungen aufgelistet, siehe hierzu /3/, /5/, /8/, /11/.

Im folgenden werden nochmals die wesentlichen Fakten dieser Experimente wiedergegeben:

- Bei allen heftigen Dampfexplosionen waren die heiße Komponente und das Kühlmittel in der Anfangsphase durch einen Dampffilm voneinander getrennt. Fand von Beginn der Kontaktierung an der Wärmeaustausch zwischen der heißen und kalten Komponente im unterkühlten Blasensieden (subcooled-boiling) oder im Übergangssieden statt, wurden sowohl in large-scale, als auch in

small-scale Experimenten nur gemäßigte, thermische Wechselwirkungen beobachtet /33/, /34/, /35/, /36/, /37/.

- Heftige Wechselwirkungen werden nach einer Wartezeit ("dwell-time") durch den Zusammenbruch des Dampffilmes ausgelöst.
- Bei einigen Experimenten tritt nur eine Wechselwirkung auf, bei anderen beobachtet man mehrzyklisches Reaktionsverhalten. Letztgenanntes beobachtet man häufiger in "large-scale" Experimenten.
- Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Reaktionsdruckwelle liegt unterhalb der Schallgeschwindigkeiten der einphasigen, flüssigen Komponenten. Zwei-Phasen-Effekte spielen hierbei die entscheidende Rolle.
- In einigen small-scale Experimenten (Zinn/Wasser, Freon/Wasser, Cerrotru/Wasser) konnten sogenannte thermische Interaktionszonen, "TIZ", nachgewiesen werden /24/.

Innerhalb dieser Wechselwirkungszonen sind Dampfexplosionen sehr oft zu beobachten, treten jedoch nicht unbedingt auf. Die Ausdehnung einer "TIZ" ist von mehreren Parametern abhängig, z.B. externer Trigger, sodaß die exakten Bedingungen für eine solche Interaktionszone nicht vollständig geklärt sind. Abb. 2.2 zeigt das charakteristische Aussehen einer Temperaturwechselwirkungszone. Bei der linken Berandung der Wechselwirkungszone fällt die Kontakttemperatur zwischen den beteiligten Komponenten nahezu mit der homogenen Keimbildungstemperatur des Kühlmittels zusammen. Die Kontakttemperatur in der Reaktionszone ist höher als die Schmelztemperatur der heißen Komponente. Die mit dem Nachweis der TIZ erlangten Ergebnisse zeigen eine gute Übereinstimmung mit dem Temperaturkriterium nach Fauske. Experimente, die die Existenz einer solchen Reaktionszone für schnellbrutreaktortypische Materialien wie  $UO_2/Na$  nachweisen sollten, konnten, aufgrund der hierfür notwendigen hohen Temperaturen für Oxidschmelze und Natrium,

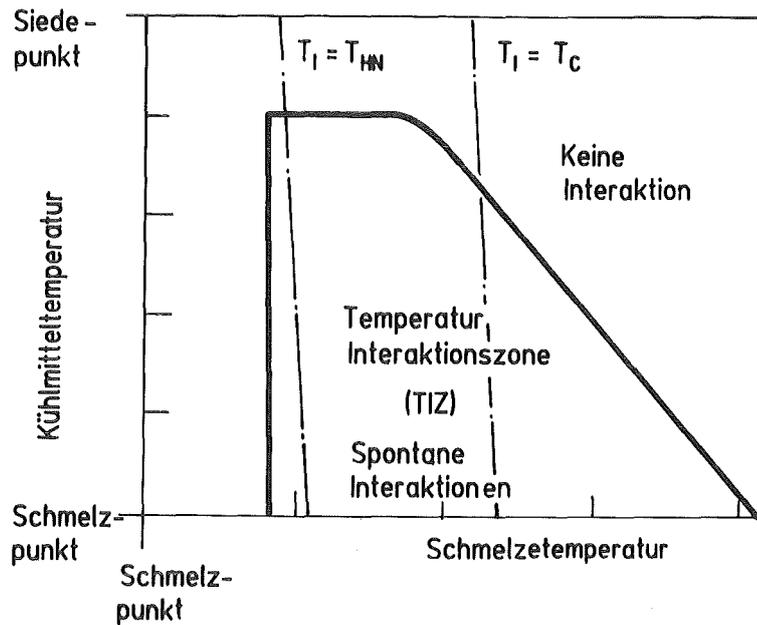


Abb. 2.2 Schematische Darstellung einer Temperaturwechselwirkungszone, "TIZ"

bisher noch nicht durchgeführt werden.

Armstrong /35/ bzw. Mizuta /37/ führten Mehrtröpfchenexperimente mit wenig über den Schmelzpunkt erhitzten  $\text{UO}_2$  in Natrium durch, ohne dabei nur in die Nähe der geforderten Temperaturbereiche einer "TIZ" zu gelangen. In diesen Experimenten lagen die Kontakttemperaturen weit unterhalb der Schmelztemperatur des Oxids bzw. der homogenen Keimbildungstemperatur des Natriums, sodaß mit einer frühen Erstarrung der Schmelze nach Eintritt ins Natrium zu rechnen war. Heftige Wechselwirkungen mit hohem Reaktionsdruckaufbau konnten in keinem der Experimente beobachtet werden. Ein interessanter Aspekt hinsichtlich des Kontakttemperaturkriteriums wurde von Morita /2/ in getriggerten Tröpfchenexperimenten mit Silikonöl und Natrium in Pentan gefunden. Die Analyse der Natrium-Pentan Experimente ergab, daß der zur Einleitung der thermischen Wechselwirkung benötigte Triggerdruck sein Minimum besitzt, wenn die Kontakttemperatur  $T_I$  etwa der homogenen Keimbildungstemperatur  $T_{HN}$  des Pentans entsprach, Abb. 2.3.

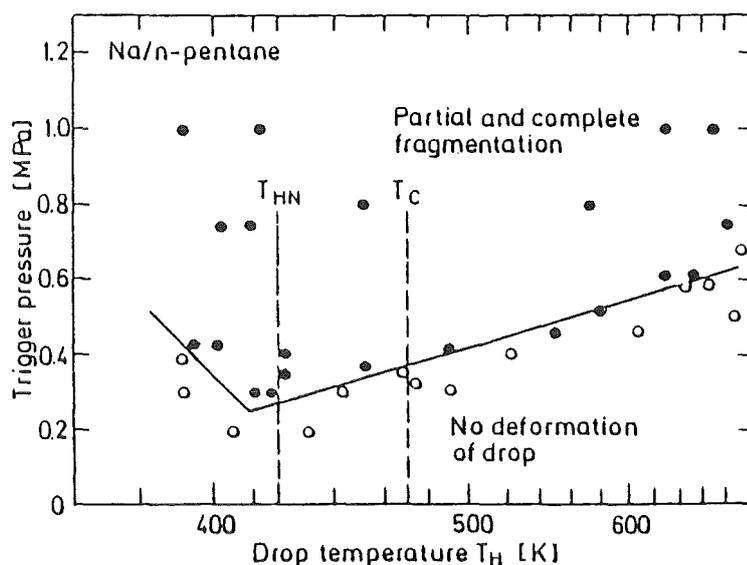


Abb. 2.3 Benötigter, externer Triggerdruck zur Einleitung der Fragmentation in Na-Pentan Tröpfchenexperimenten. Vertikale; gestrichelte Linien entsprechen konstante Kontakttemperaturen /2/

Die Triggerung der Experimente erfolgte mit Hilfe einer Drahtexplosion, "exploding-wire". In den Silikonöl-Pentan Versuchen konnte Morita /2/ zeigen, daß nach Erreichen einer Kontakttemperatur gleich  $T_{HN}$  eine prompte (Verzögerung zwischen ansteigender Triggerdruckflanke und Reaktionsbeginn  $< 60 \mu s$ ) Reaktionsdruckverstärkung nach der Triggerung erfolgt, siehe Abb. 2.4. Diese beobachteten Effekte, die ebenfalls stark mit der Fauske-Hypothese verknüpft sind, könnten hinsichtlich der Kohärenz und des Propagationsverhaltens auch bei Dampfexplosionen mit größeren Massen, die sich bereits im "coarse-mixing" befinden, eine entscheidende Rolle spielen /32/. Zum besseren Verständnis der Fragmentationsmechanismen wurden die Versuche von Morita, wie auch die von Ando /5/ und Pepler et al. /39/, mit Hilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera (max.  $10^5$  Aufnahmen pro Sekunde) aufgenommen. Wegen der fehlenden Aufnahmemöglichkeit von Hochge-

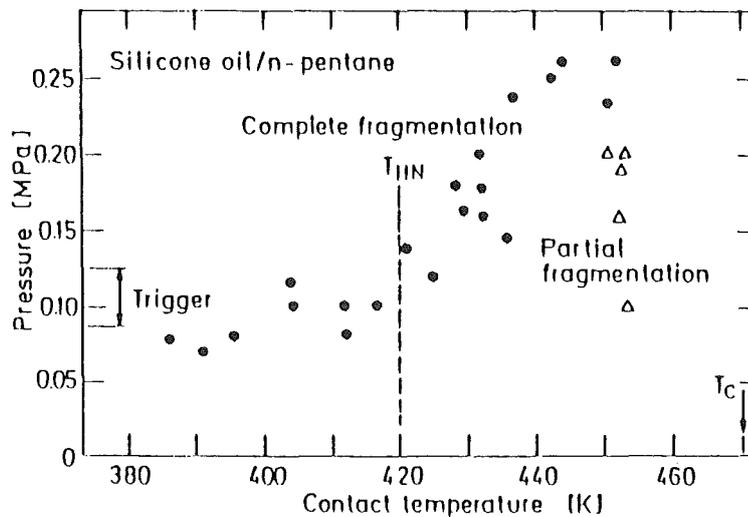


Abb. 2.4 Maximaler Reaktionsdruck als Funktion der Kontakttemperatur in getriggerten Silikonöl-Pentan Tröpfchenexperimenten; der verwendete Triggerdruck ist konstant /2/

schwindigkeitsbildern in den hier vorgestellten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Natrium Experimenten waren besonders die Aufnahmen aus den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser-Versuchen /39/ zur Herleitung der Wechselwirkungsmodelle von großer Bedeutung.

#### 2.4 Fragmentationsmodelle

Um in den Bereich einer explosionsartigen, thermischen Wechselwirkung zwischen der heißen und kalten Komponente zu gelangen, muß eine intensive Vorvermischung der Komponenten im Filmsieden vorausgegangen sein. Nur eine unmittelbar danach erfolgende, ausgeprägte Feinstfragmentation der heißen Schmelze, ermöglicht die zur raschen Dampfwicklung benötigte große Oberfläche.

Folgende Fragestellungen müssen zur Klärung des Fragmentations-

verhaltens beantwortet werden:

- Was sind die physikalischen Gründe für die Fragmentation?
- Ist der Fragmentationsgrad vorherbestimmbar?
- Wie lange dauert der Fragmentationsprozeß?

Die zur Klärung dieser Fragestellungen entwickelten Fragmentationsmodelle können in drei Gruppen unterteilt werden:

- thermisch bedingte Fragmentation
- hydrodynamische Fragmentation
- Fragmentation während der Erstarrung

zur thermischen Fragmentation:

Swift und Baker /40/ machten, nach Auswertung von Tröpfchenexperimenten mit verschiedenen Metallschmelzen in Wasser, unterkühltes Blasensieden für die Fragmentation verantwortlich. Während des hochturbulenten Blasenwachstums und Kollabierens an der Schmelzeoberfläche entstehen Flüssig-Flüssig Kontakte, deren hydrodynamische Kräfte ihrer Meinung nach ausreichen, die Oberflächenspannung der Schmelze zu überwinden und nachfolgend die Fragmentation einzuleiten.

Buchanan /41/ nimmt an, daß an der Schmelzeoberfläche kollabierende Dampfblasen, erklärbar mit dem Plesset & Chapman-Effekt /38/, Flüssigkeitsjets erzeugen, die mit hoher Geschwindigkeit die heiße Oberfläche durchdringen und die Fragmentation einleiten. Eine wesentliche Voraussetzung dieser Modelle ist jedoch, daß die Schmelze nur dann von "Jets" oder ähnlich destabilisierende Effekte zur Wechselwirkung veranlaßt wird, wenn noch keine

Erstarrung an der Oberfläche stattgefunden hat. Weiterhin erscheint es fragwürdig, ob bei large-scale Experimenten die Anzahl der durch Blaskollaps verursachten "Jets" ausreichen, um eine kohärente Dampfexplosion zu initiieren.

zur hydrodynamischen Fragmentation:

Hydrodynamische Fragmentationsmechanismen sind eng mit der Detonationstheorie von Board und Hall /12/ verknüpft. Wird ein Schmelzetropfen von einer Stoßwelle erfaßt, unterliegt er aufgrund des Dichteunterschiedes einer Geschwindigkeit relativ zu der ihn umgebenden Flüssigkeit. Durch die Staudruckverteilung an der Tropfenoberfläche werden Kräfte erzeugt die dazu führen, den Tropfen entgegen seiner Oberflächenspannung zu fragmentieren (Impaktfragmentation). Dieser Fragmentationsmechanismus wird vielfach als "Weber-Zerfall" bezeichnet. Die Weber-Kennzahl, das Verhältnis aus Staudruck (Trägheitskraft) und Oberflächenspannung, wird wie folgt definiert:

$$We = \frac{\rho_{liq} \cdot D \cdot u^2}{\sigma} \quad (2.5)$$

Ivins /42/ zeigte anhand einiger Experimente mit niedrigschmelzenden Metallen in Wasser, daß die Tropfen oberhalb einer Weberzahl von  $We \geq 20$  beim Aufprall auf eine Wasseroberfläche fragmentieren.

Kelvin-Helmholtz-Instabilitäten (parallel zur Fluidgrenzfläche) infolge von Relativgeschwindigkeiten an Fluidgrenzen, sowie Rayleigh-Taylor-Instabilitäten (normal zur Fluidgrenzfläche), verursacht durch Grenzflächenbeschleunigung in Richtung der dichteren Komponente, werden in vielen Dampfexplosionsmodellen als auslösende Mechanismen für die Fragmentation genannt /2/, /5/, /8/. Dagegen hat Schriever /43/ in seiner Arbeit darauf hingewiesen, daß Rayleigh-Taylor-, Kelvin-Helmholtz-Instabilitäten, sowie

Grenzschichtabstreifung allein, zur Fragmentation in Flüssig-Flüssig-Systemen nicht ausreichen.

Eine umfassende Diskussion der hydrodynamischen Fragmentationsmechanismen findet man in der Arbeit von Schriever /43/.

Fragmentation während der Erstarrung:

In den vorangegangenen Fragmentationsmodellen wurde generell angenommen, daß die heiße Komponente sich während der Wechselwirkung im schmelzflüssigen Zustand befindet. Bei hochschmelzenden Materialien, vor allem Metalloxide und Carbide, muß jedoch davon ausgegangen werden, daß während des "Quenching"-Vorganges im Kühlmittel, besonders im Natrium, ein Großteil der Schmelze erstarrt. In den bisher zitierten large- bzw. small-scale Versuchen mit Oxiden, lag die Kontakttemperatur zwischen den beteiligten Massen weit unterhalb der Schmelztemperatur der heißen Komponente, siehe /33/, /34/, /35/, /37/. Die Fragmentation wird in diesen Fällen wahrscheinlich durch thermisch bedingte Spannungen in der Kruste eingeleitet. Modellberechnungen zur maximal erreichbaren Krustendicke und Spannungsanalysen für die erstarrte Kruste werden in der Regel in viel zu vereinfachten Rechenmodellen zu lösen versucht. So werden die Dichteunterschiede beim Wechsel des Aggregatzustandes vernachlässigt /45/, /46/, /74/, was gerade bei der Betrachtung von Oxiden eine zu vereinfachte Randbedingung darstellt, z.B.  $\text{Al}_2\text{O}_3: \rho_{\text{fest}}/\rho_{\text{fl}} = 0,75$ .

Eine eingehende Beschreibung des Krustenwachstums und der dabei diskutierten Bruchmechanik zur Fragmentation findet man in den Arbeiten von Cronenberg /28/, Corradini /45/ und Bürger /47/.

## 2.5 Ziele dieser Arbeit

Wegen der guten Reproduzierbarkeit der thermischen Randbedingungen wurden bis heute eine Vielzahl von Tröpfchenexperimenten zum Verständnis der Dampfexplosionsphänomene durchgeführt. Grundlage der meisten Dampfexplosionsmodelle ist eine anfängliche Vorvermischung (coarse mixing) der heißen und kalten Komponente im Filmsiedezustand.

Das Ziel dieser Arbeit ist es deshalb einmal, genauere Kenntnisse und Voraussagen über die noch experimentell nicht untersuchten, minimalen Filmsiedebedingungen zwischen einem flüssigen Metalloxid (hier  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) und einem Flüssigmetall (hier Natrium) zu erlangen.

Im zweiten Schritt soll dann das Temperaturkriterium nach Fauske, sowie in Anlehnung daran die Existenz eines prompten, getriggerten Reaktionsdruckereignisses, wie es Morita /2/ nachweisen konnte, überprüft werden. Sind bei den bisher durchgeführten Experimenten zur Dampfexplosion überwiegend Simulationsmaterialien eingesetzt worden, so ist in diesem Experiment die Realitätsnähe der beteiligten Materialien zu Reaktorbrandstoff und Kühlmittel eines Schnellbrutreaktors gewährleistet.

Im experimentellen Teil der Arbeit wurde zunächst ein komplexer Versuchsstand konzipiert, der es ermöglichte, hohe Oxid- und Natriumtemperaturen für die Versuche bereitzustellen. Die entscheidenden Versuchsparameter (Natriumtemperatur,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Temperatur, Triggerdruckstärke) wurden derart variiert, daß die zur Überprüfung der Modelle interessierenden Bereiche überdeckt werden. Auf der Grundlage der Druckmessungen, der thermischen Randbedingungen, sowie der Nachuntersuchung der Fragmente sollte eine Interpretation der experimentellen Ergebnisse erfolgen.

### 3. EXPERIMENTE

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden die Anforderungen an den Versuchsaufbau und die Meßtechnik genannt und die daraus resultierenden Lösungen vorgestellt. Daran anschließend wird die experimentelle Durchführung der Versuche beschrieben. Im letzten Punkt dieses Kapitels werden die bei der Messung der physikalischen Größen entstehenden Meßfehler diskutiert.

#### 3.1 Experimenteller Aufbau

Im experimentellen Teil dieser Arbeit war zu untersuchen, ob und unter welchen thermischen Randbedingungen es zu Dampfexplosionen zwischen einem schmelzflüssigen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen hoher Temperatur und Natrium kommen kann.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und Natrium wurden unter dem Gesichtspunkt ausgewählt, eine annähernd reaktortypische (Schnellbrutreaktor) Simulation der Materialien zu gewährleisten.

Die zur Durchführung der Experimente entwickelte Versuchsanlage (Prinzipiskizze siehe Abb. 3.1) besteht aus folgenden Komponenten:

- Handschuhbox mit angekoppelter Gasreinigungsanlage
- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schmelzeinrichtung
- Na-Versuchsbehälter
- Magnethammersystem und Ignitron

Handschuhbox mit Gasreinigung:

Wegen der hohen Reaktionsneigung des flüssigen Natriums und des Schmelzofenmaterials mit Sauerstoff, mußten alle Experimente unter einer Schutzgasatmosphäre durchgeführt werden. Hierzu diente eine Handschuhbox, wie sie auch bei der Handhabung radioaktiver und toxischer Stoffe eingesetzt wird. Die Handschuhbox besitzt ein Volumen von etwa  $1,5 \text{ m}^3$  und ist über vier Handschuhstutzen einseitig bedienbar, Abb. 3.2. Das zugehörige Gasreinigungssystem

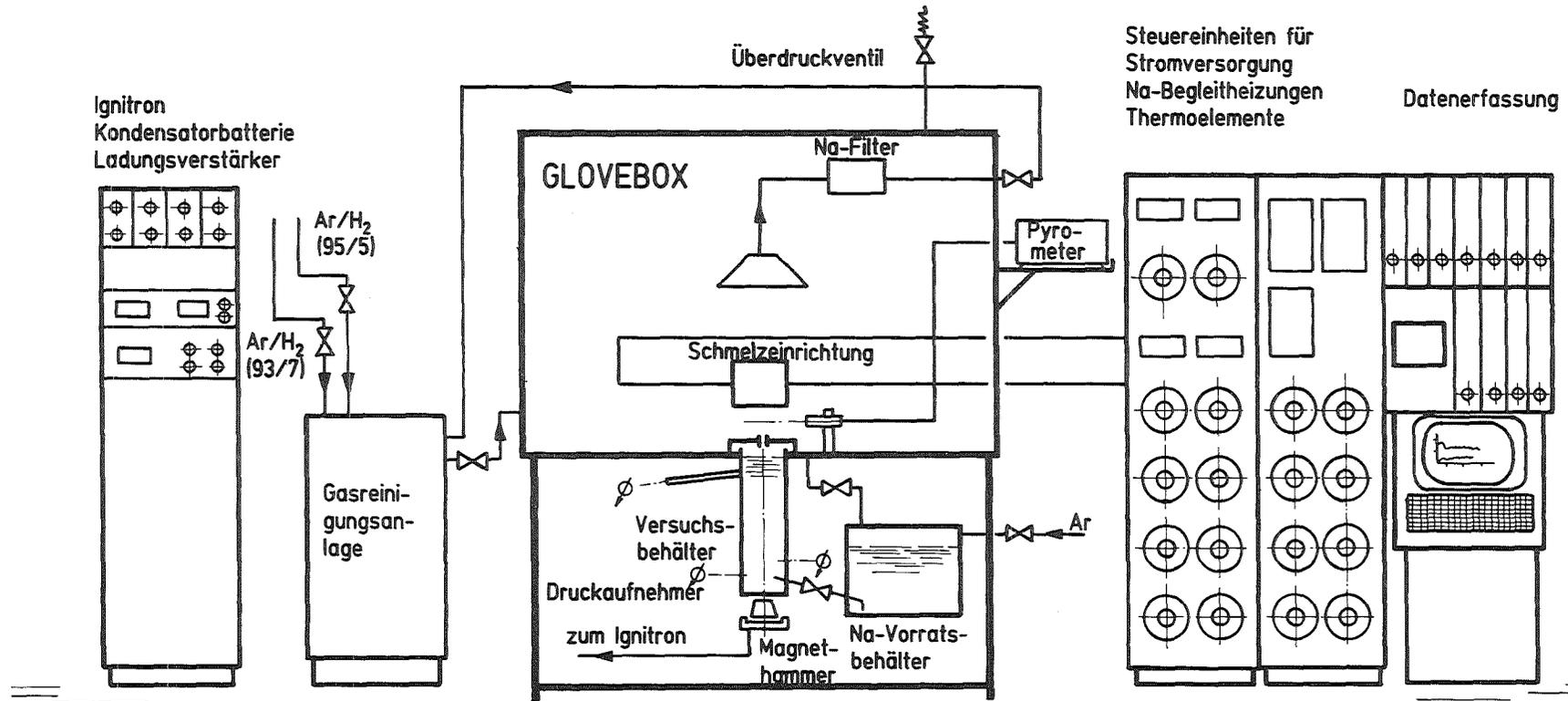


Abb. 3.1 Prinzipskizze der Gesamtanlage

(Typ: BRAUN MB 200 G) dient zur kontinuierlichen Umwälzung und Reinigung des Arbeitsgases (95% Argon, 5% Wasserstoff). Es besteht im wesentlichen aus zwei voneinander getrennten Filtereinheiten in Edelstahlausführung, beladen mit einem Molekularsieb

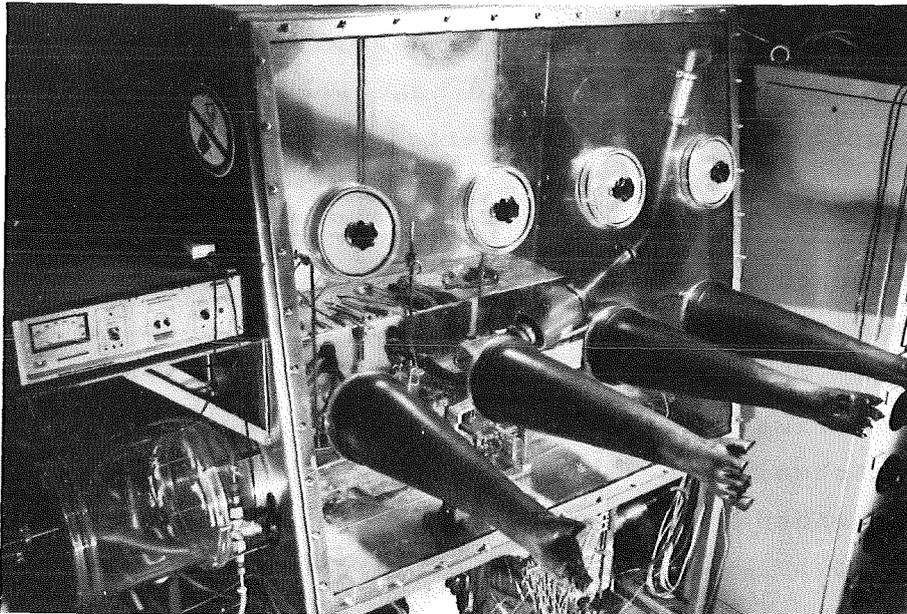


Abb. 3.2 Handschuhbox

und Kupferkatalysatormaterial. Das Gas wird kontinuierlich umgewälzt und bei Bedarf (Oxidhautbildung an der Na-Oberfläche) regeneriert. Die maximal erreichbare Reinheit des Arbeitsgases beträgt 1 ppm H<sub>2</sub>O bzw. 1 ppm O<sub>2</sub>.

#### Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - Schmelzeinrichtung

Eine der wesentlichsten Schwierigkeiten bei der Konzipierung der experimentellen Anlage waren die Entwicklung und Erprobung einer leistungsfähigen Schmelzeinrichtung für den Oxidtropfen. Um in den geforderten, physikalisch interessanten Bereich einer thermischen Wechselwirkung zu gelangen war es Voraussetzung, das Oxid um

mehrere hundert Grad über seinen Schmelzpunkt hinaus zu überhitzen. Eine induktive Erwärmung, wie sie vielfach bei der Erschmelzung von Metallen eingesetzt wird /5/, schied wegen der geringen elektrischen Leitfähigkeit des Oxids aus. In Vorversuchen zu dieser Arbeit wurde das Oxid mittels eines Plasmabrenners (Leistungsaufnahme ca. 25 kW) erschmolzen. Da aber in der Plasmaflamme Temperaturen von mehreren tausend Kelvin herrschen, konnte diese Versuchstechnik aus sicherheits- und handhabungstechnischen Gründen in der Handschuhbox nicht weiterverfolgt werden.

In einer zu Anfang erprobten Schmelzeinrichtung wurde das Oxid in sogenannten "Aufdampfschiffchen" aus Wolfram, Rhenium, Graphit, sowie anderen hochschmelzenden Metallen, wie sie z.B. in Aufdampfverfahren in der Vakuumtechnik eingesetzt werden, erschmolzen und überhitzt. Für den experimentellen Einsatz dieser niederohmigen, widerstandsbeheizten Schmelztiegel mußte eine Hochstromeinrichtung mit den entsprechenden Regel- und Steuereinheiten entwickelt werden, Blockschaltbild siehe Appendix B. Die Erschmelzung und Aufheizung des Oxids mittels dieser Methode war problemlos. Es konnte jedoch in keinem der Vorversuche gelingen, kleinere Tropfen durch Kippen aus dem Tiegel zu entfernen. Folgende Gründe spielen hierbei die entscheidende Rolle, /80/:

- Das schmelzflüssige  $\text{Al}_2\text{O}_3$  besitzt eine hohe Viskosität.
- Aufgrund der Rauigkeit der festen, benetzenden Tiegelwand sowie der chemischen Vorgänge (Oxidation des Tiegelmaterials) und Adsoption an der Tiegeloberfläche, findet eine sehr gute Benetzung statt.

Die letztendlich zum Ziel führende und in den Experimenten erfolgreich eingesetzte  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schmelzvorrichtung ist in den Abbildungen 3.3 und 3.4 dargestellt.

Der prinzipielle, experimentelle Aufbau zur vorher geschilderten Tiegelmethode blieb unverändert, es wurde lediglich der Schmelztiegel durch einen aus Rheniumblech bestehenden "Strahlungs-ofen" ersetzt. Das Rheniumblech (0,13 mm dick), das zu einem 50 mm hohen Hohlzylinder mit etwa 10 mm Inndurchmesser gebogen und

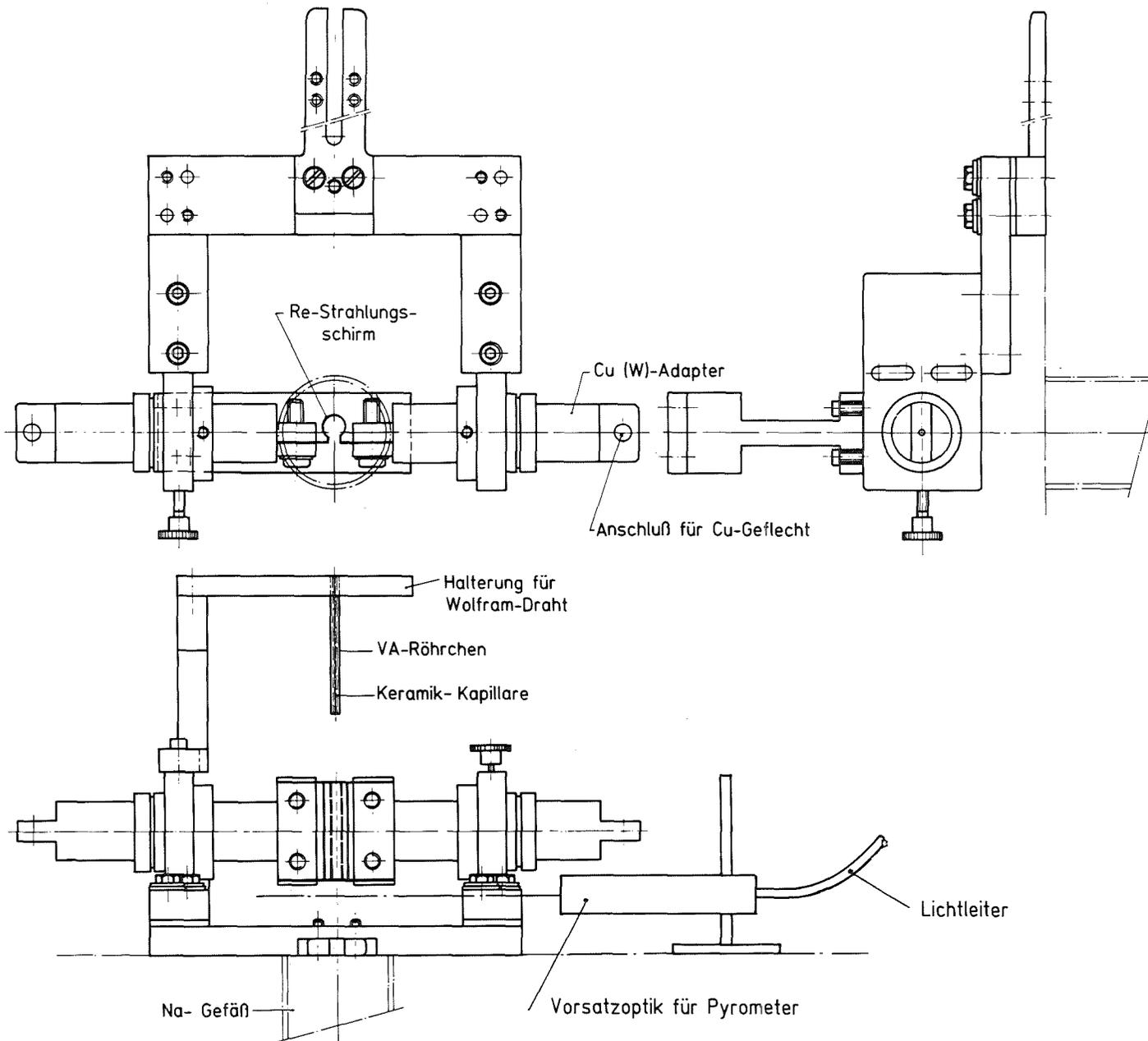


Abb. 3.3 Schmelzeinrichtung

zwischen zwei Cu-Adapter geklemmt wurde, Abb. 3.3, diente zur berührungslosen Aufheizung und Erschmelzung des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfens. Beim Aufheizen des Rheniumbleches wurden Temperaturen bis 3400 K (bei  $\sim 550$  A, 6 V) an der Oberfläche erreicht. Um einen Oxidtropfen zu erschmelzen, wurde entsprechend der Masse der gewünschten Tropfengröße (0.22 g,  $\phi 5$ mm) ein Stück eines  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Kapillarröhrchens (Typ DEGUSSIT, Al23 Fa. Friedrichsfeld) am Ende eines dünnen, umgebogenen Wolframfadens ( $\phi 0,5$  mm) fixiert und mittig in den Strahlungssofen gehängt. Der Wolframfaden wurde in einem über dem Strahlungssofen befindlichen VA-Röhrchen mit innerer Keramikkapillare ( $\phi 0.5$ mm) eingeklemmt, um den zu erschmelzenden  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen in der gewünschten Position halten zu können.

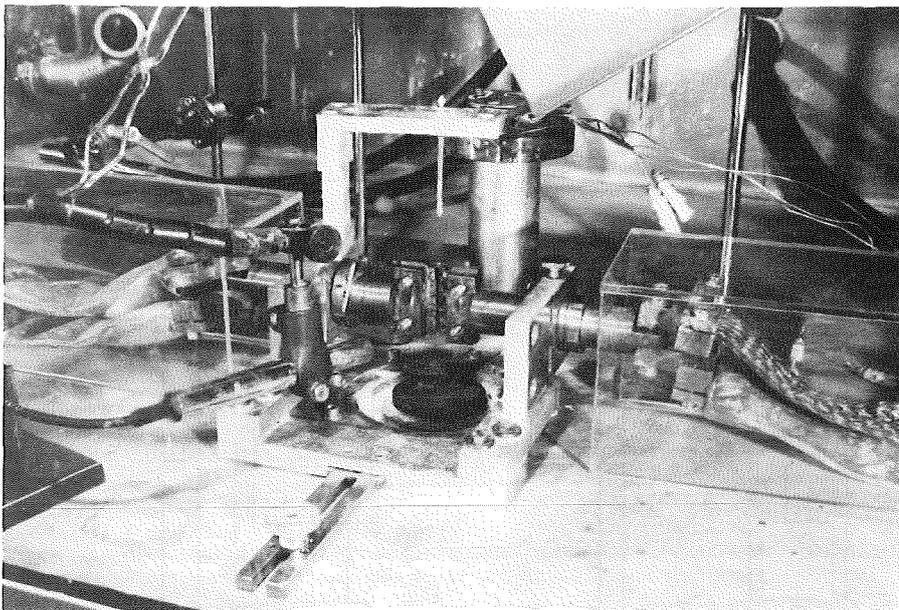


Abb. 3.4 Schmelzeinrichtung für den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen

Während des Experiments wird der Strahlungssofen kontinuierlich aufgeheizt, bis das Oxid zu erschmelzen beginnt und als Tröpfchen am unteren Ende des Wolframfadens hängt, Abb. 3.5. Durch weiteres Hochfahren der elektrischen Leistung wird der

Oxidtropfen mehrere hundert Grad über seinen Schmelzpunkt hinaus aufgeheizt. Der Zeitpunkt, bei dem sich der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen vom Fadenende löst, hängt im wesentlichen von der Masse des Tropfens und der für die Benetzung (Adhäsion) zur Verfügung stehenden Drahtoberfläche ab. Abb. 3.5 zeigt in schematischer Darstellung die Position des Tropfens vor und während seiner Erschmelzung im Strahlungssofen.

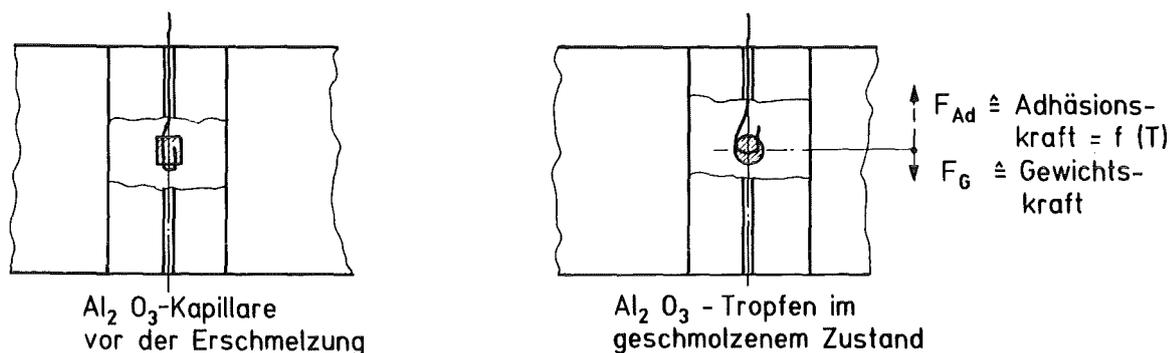


Abb. 3.5 Schematische Darstellung des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfens im Strahlungssofen

Nachdem sich der Tropfen vom Fadenende gelöst hat, durchfällt er, unter Zufuhr weiterer Strahlungsenergie, den restlichen Strahlungssofen. Mit Hilfe eines Quotientenpyrometers wird die Temperatur vor dem Eintauchen ins Natrium gemessen und aufgezeichnet.

#### Natrium-Versuchsbehälter

Der Versuchsbehälter ist aus VA-Stahl (Werkstoff Nr. 4301) gefertigt und ist etwa mittig am Boden der Handschuhbox gasdicht angeflanscht. Er besteht aus einem  $\phi 59 \times 2.9$  mm starkem Rohr mit einer Länge von etwa 390 mm. Während der Versuche befinden sich  $\sim 0,8 \text{ dm}^3$  Natrium im Vorratsbehälter und  $\sim 0.2 \text{ dm}^3$  im danebenliegenden Vorratstank, Abb. 3.6.

Da die zur Messung der transienten Reaktionsdrücke benötigten

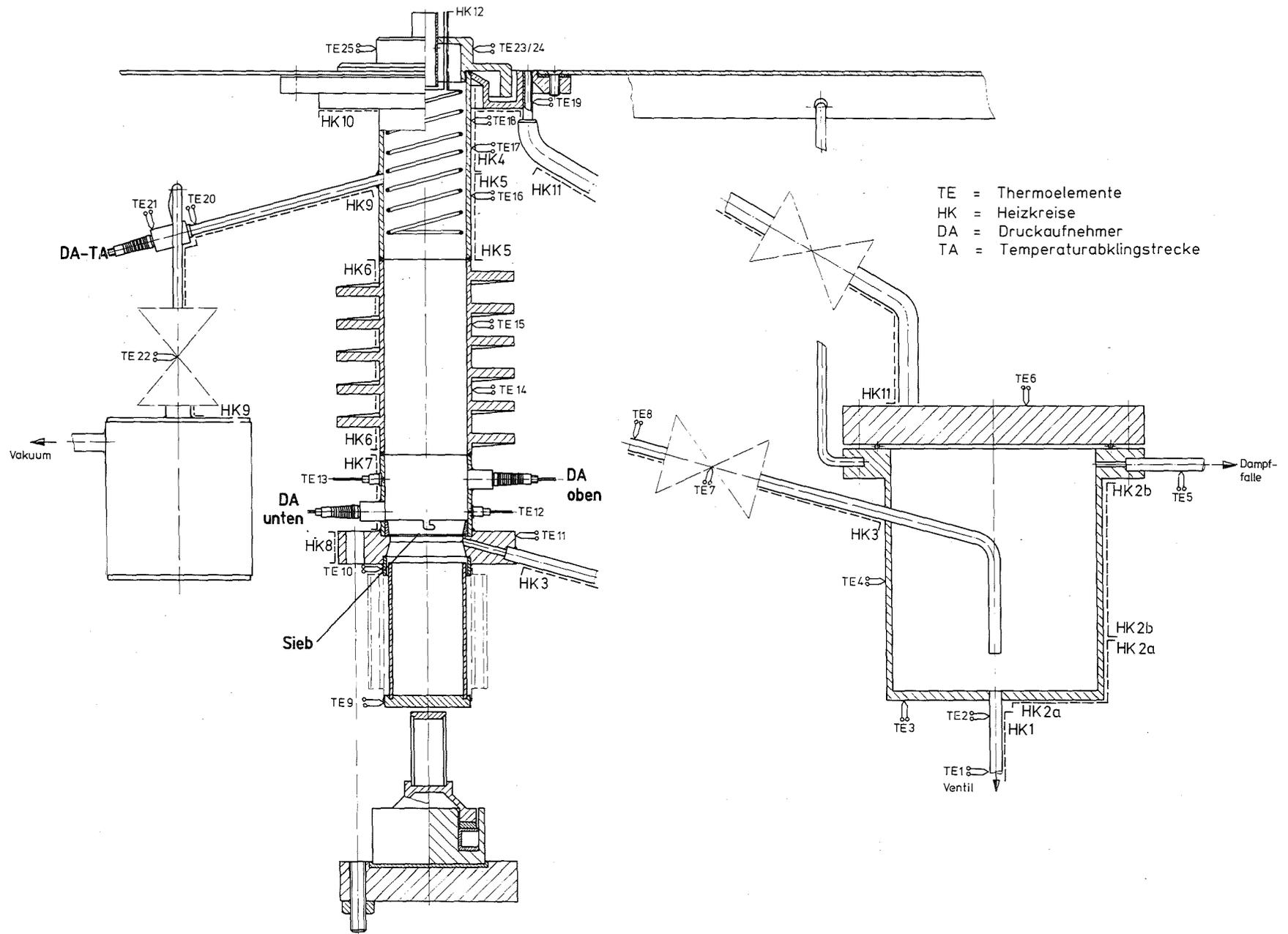


Abb. 3.6 Natrium-Versuchsbehälter

piezoresistiven Druckaufnehmer nur bis zu Temperaturen von 650 K einsetzbar sind, mußte der Versuchsbehälter derart konzipiert werden, daß über eine stabile Temperaturschichtung im Natrium der Versuchsbereich ("heißer Teil", Na-Temperatur bis 1143 K) vom Meßbereich ("kalter Teil") getrennt werden konnte. Der Versuchsbehälter wurde daher in vier Bereiche unterteilt. Im oberen Teil befindet sich die etwa 90 mm lange Versuchsstrecke, im mittleren Teil das zur Kühlung erforderliche Rippenrohr und im unteren Teil die Meßstrecke mit dem angeschweißten Faltenbalg. Alle Behälterteile und Natriumzuleitungen wurden mit Hilfe angelöteter Miniaturheizer, unterteilt in 12 regelbare Heizkreise, beheizt.

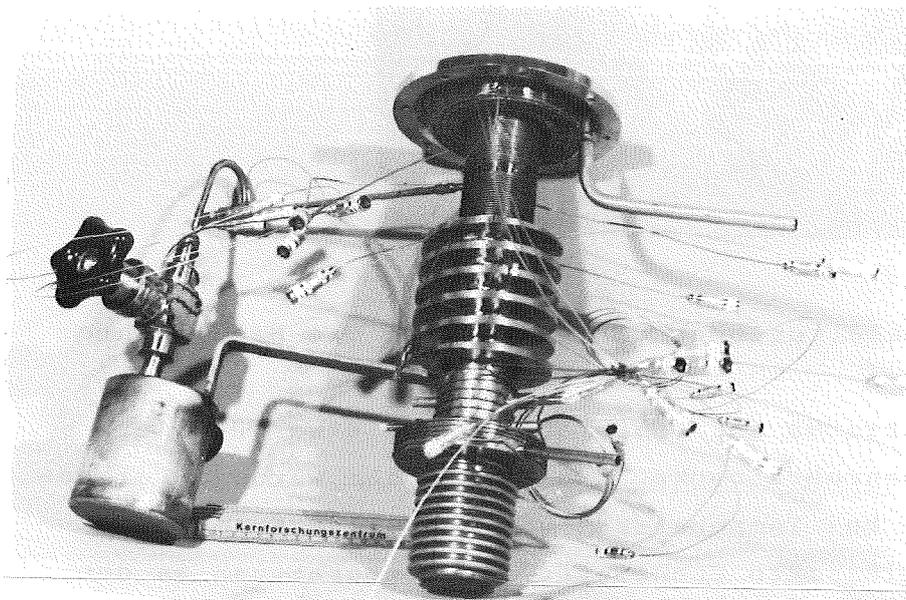


Abb. 3.7 Versuchsbehälter nach der Fertigung

Das Rohr um den Versuchsbereich wurde mit einer besonders dichten Heizleiterwicklung ausgestattet, da hier die höchsten Natriumtemperaturen benötigt werden. Um in die Nähe der Sättigungstemperatur zu gelangen, wurde zusätzlich in den Deckel des Versuchsbehälters ein zylindrisch gewickelter Miniaturheizer eingelötet. Wegen der hohen Verdampfungsrate des Natriums ab Temperaturen von

700 K, mußte der Natriumspiegel während der Experimente abdeckt werden. Ein im Deckel befindliches VA-Röhrchen ( $\phi 16*1\text{mm}$ ) diente dem Tropfen als Eintauchöffnung.

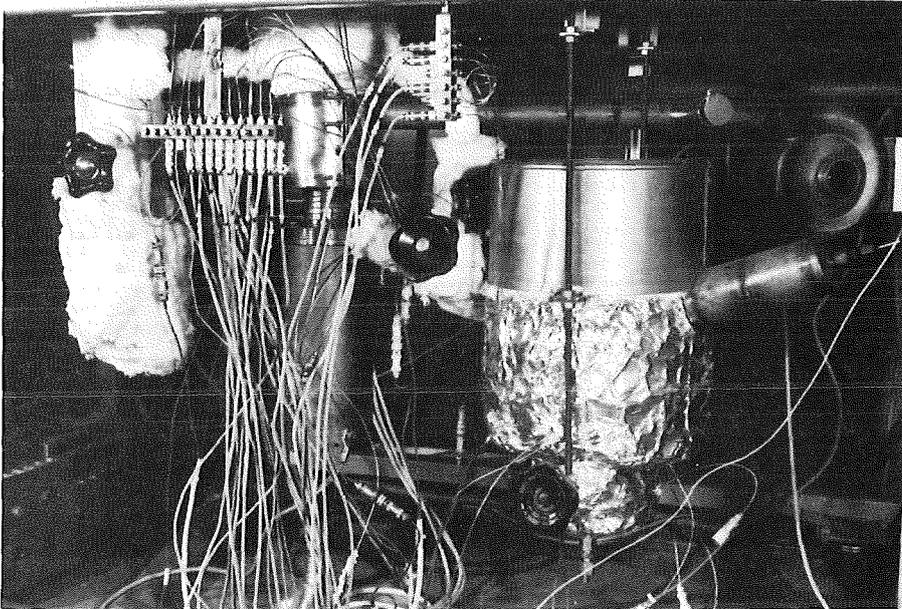


Abb. 3.8 Versuchsbehälter nach der Montage an die Handschuhbox

Die Abkühlung des Natriums auf Temperaturen von etwa 600 K erfolgte über die Rippenrohrstrecke. Das Rippenrohr wurde so dimensioniert, daß selbst bei Temperaturen von über 1100 K im Versuchsbereich, die zulässigen Grenzwerte der Temperaturen an den Druckaufnehmern nicht überschritten wurden.

Im unteren Teil des Versuchsbehälters befindet sich ein Faltenbalg (Typ: Fa. Witzenmann). Bei den getriggerten Versuchen werden durch einen Magnethammerschlag auf den Faltenbalgboden Druckwellen in den Behälter eingeleitet. Der Magnethammer, der Druckimpulse von über 2,5 MPa mit einer Impulsdauer von etwa 300  $\mu\text{s}$  im Natrium erzeugen kann, ist unterhalb des Faltenbalgs am Behälter angeflanscht und wird wie folgt eingesetzt:

Eine Kondensatorbatterie von 100  $\mu\text{F}$  wird mit einer Spannung von max. 2,5 kV aufgeladen. Durch Auslösen des Ignitrons wird die

gespeicherte Energie auf eine Spule (primärseitig), die sich unterhalb eines ferromagnetischen Stößels und Kupferringes befindet, eingebracht. Der sekundärseitig im Kupferring entstehende hohe Strom bewirkt über das aufgebaute Magnetfeld ein Abstoßen des Stößels. Der Stößel schlägt gegen den Faltenbalgboden und induziert auf diese Weise eine Druckwelle in die Natriumsäule. Eine eingehende Beschreibung der Behälterakustik hinsichtlich der Druckwellenausbreitung erfolgt im nächsten Kapitel. Die Abbildungen 3.7 und 3.8 zeigen den Versuchsbehälter nach der Fertigung bzw. im angeflanschten und instrumentierten Zustand an die Handschuhbox.

### 3.2 Temperatur- und Druckmeßtechnik, Akustik des Na-Behälters

#### - Temperaturmessung

Die Natriumtemperatur wurde mit Ni/CrNi-Thermoelementen gemessen. Die Thermoelemente haben einen Durchmesser von 1 mm und sind an der Meßstelle isoliert (TI-Meßstelle). Sie sind an verschiedenen Stellen des Versuchsbehälters angelötet, Abb. 3.6, und wurden, neben der Temperaturüberwachung, zur Regelung der Heizkreise verwendet. Wichtige Temperaturmeßstellen, z.B. die Temperatur in der Versuchsstrecke oder an den Druckaufnehmern, wurden während des Versuches aufgezeichnet.

Die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfentemperatur wird beim Austritt aus dem Strahlungssofen mit Hilfe eines Quotientenpyrometers (Typ: QPMRS 465, Fa. Dr. Maurer) gemessen. Der große Vorteil der Quotientenmeßtechnik besteht darin, daß der Emissionsgrad des Objektes und der Transmissionsgrad des umgebenden Mediums bei der Messung nahezu eliminiert werden können. Dies gilt aber nur unter der Voraussetzung, daß zwei spektrale Bereiche gefunden werden, für die  $\tau_M$ ,  $\epsilon(\lambda_1^*, T) \sim \tau_M$ ,  $\epsilon(\lambda_2^*, T)$  gilt. Der hierfür eingesetzte Pyrometer mißt bei Wellenlängen von  $\lambda_1 = 950 \text{ nm}$  und  $\lambda_2 = 1080 \text{ nm}$ . Die

vom  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen ausgesendete Strahlung gelangt, von einer Vorsatzoptik optisch gebündelt, über einen flexibelen Lichtleiter zum Strahlungsempfänger (Meßbereich  $800^\circ\text{C} - 3000^\circ\text{C}$ ). Der Vorteil dieser Temperaturmeßtechnik liegt darin, daß bei der Messung nur ein kleiner Meßfleck ( $\varnothing 2 \text{ mm}$ ) auf dem Objekt ausreicht, und das eigentliche Gerät mit der Auswerteelektronik außerhalb der Handschuhbox bedient werden kann. Eine ausführliche Beschreibung der Theorie und Einsetzbarkeit der Quotientenmeßtechnik findet man unter folgender Literaturstelle /48/.

#### - Druckmeßtechnik und Akustik des Versuchsbehälters

Die transienten Druckereignisse wurden mit Hilfe von Hochtemperatur-Quarzdruckaufnehmern (Typ 6001, Fa. Kistler) gemessen. Die piezoresistiven Quarze in den Druckaufnehmern besitzen eine Eigenfrequenz von über 150 kHz. Um Schwingungen in der Nähe dieser Frequenz zu vermeiden, wurden im Ladungsverstärker Tiefpaßfilter von 68 kHz eingesetzt. Zwei der drei eingesetzten Druckaufnehmer sitzen bündig mit der Behälterwand in zwei angeschweißten Druckaufnehmeradaptern, "DA-oben", "DA-unten", der dritte befindet sich in einer Temperaturabklingstrecke in Höhe des Versuchsortes, "DA-TA", Abb. 3.6 .

Um den Einfluß einer plötzlichen Druckerhöhung auf das Wechselwirkungsverhalten eines im Filmsiedezustand befindlichen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfens zu untersuchen, wurden in einigen Experimenten Druckwellen, mit Hilfe des Magnethammersystems, in den Behälter eingeleitet. Da die konstruktiven Eigenschaften des Behälters, z.B. Steifigkeit, Größe und Form, wesentlichen Einfluß auf die Druckwellenausbreitung besitzen, soll im folgenden etwas näher auf die Akustik des Versuchsgefäßes eingegangen werden. Abb. 3.9 zeigt in schematischer Darstellung die zur Beschreibung der Akustik benötigten Behälterabmessungen, sowie die zugrundegelegten Annahmen zur Reaktionsdruckwellen- und Triggerdruckwellenausbreitung. Die durch den Magnethammerschlag auf den Faltenbalg erzeugte Druckwelle läuft vom Faltenbalgboden aus als annähernd ebene Welle bis

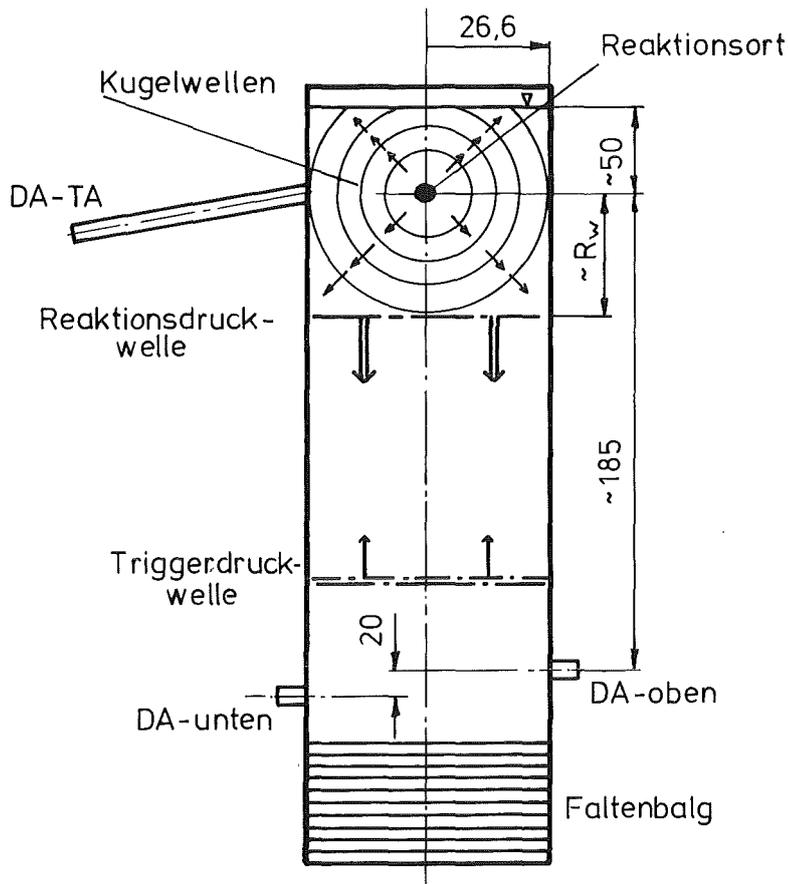


Abb. 3.9 Schematische Darstellung des Versuchsbehälters hinsichtlich der Reaktions- und Triggerdruckwellenausbreitung

zur freien Natriumoberfläche, wo sie als Unterdruckwelle reflektiert wird. Bevor die Druckwelle die Flüssigkeitsoberfläche erreicht, verursacht sie, unter der Voraussetzung einer ausreichend hohen Druckamplitude, die thermische Wechselwirkung am  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen. Die Höhe der erzeugten Druckamplitude sowie die Druckanstiegszeit sind von der jeweiligen Kondensatorspannung abhängig. Abb. 3.10 zeigt den Zusammenhang zwischen der im Behälter, DA-oben, gemessenen Druckamplitude und der Kondensatorspannung. Beim Durchlaufen der Natriumsäule wird die Welle an Impuls verlieren, sodaß bei der Ankunft der Welle am Reaktionsort mit einer abgeschwächten Druckamplitude gerechnet werden muß.

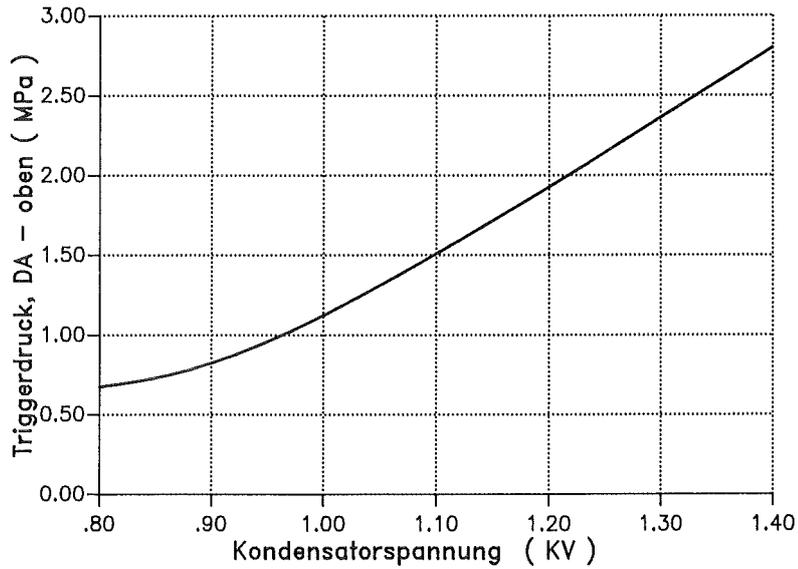


Abb. 3.10 Maximale Triggerdruckamplitude im Behälter, DA-oben als Funktion der Kondensatorspannung

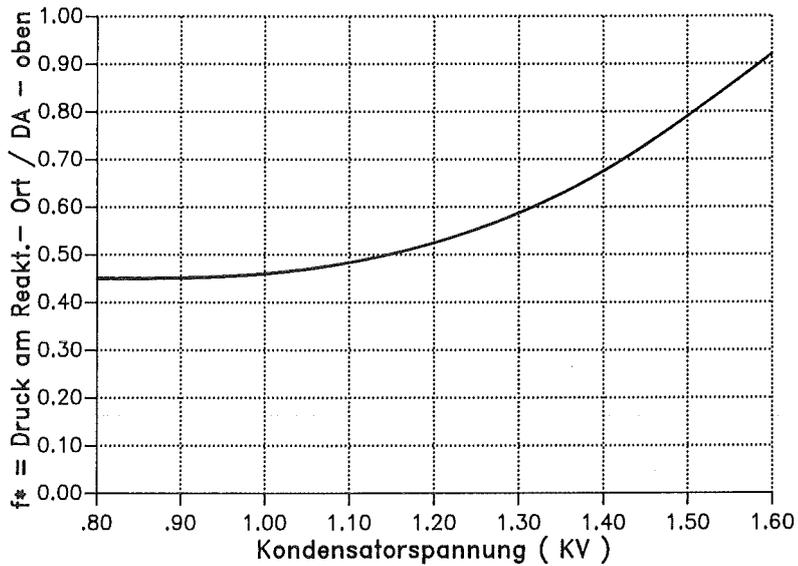


Abb. 3.11 Druckimpulsverlust  $f^* = (p_{DA-oben} / p_{Reakt.-Ort})$  als Funktion der Kondensatorspannung

In Vorversuchen wurde mit Hilfe einer Druckmeßblanze, die in etwa in Höhe des Reaktionsortes positioniert wurde, quantitativ der

Impulsverlust durch Vergleichen der gemessenen Drücke in der Behälterinnenwand, DA-oben, und der Druckmeßblanze bestimmt.

Abb. 3.11 zeigt das Verhältnis  $f^*$  der gemessenen Druckwellenamplituden (Druck in der Meßblanze zu Druck DA-oben) als Funktion der Kondensatorspannung.

Mit Hilfe des Faktors  $f^*$ , der beiden Diagramme in Abb. 3.10 und Abb. 3.11, sowie der einfachen Beziehung

$$p_{\text{Reakt. - Ort}} = f^* \cdot p_{\text{DA - oben}} \quad (3-1)$$

ist man bei bekannter Triggerdruckamplitude im Behälter (DA-oben, DA-unten) in der Lage, den abgeschwächten Druckpuls am Reaktionsort abschätzen zu können, siehe Abb. 3.12.

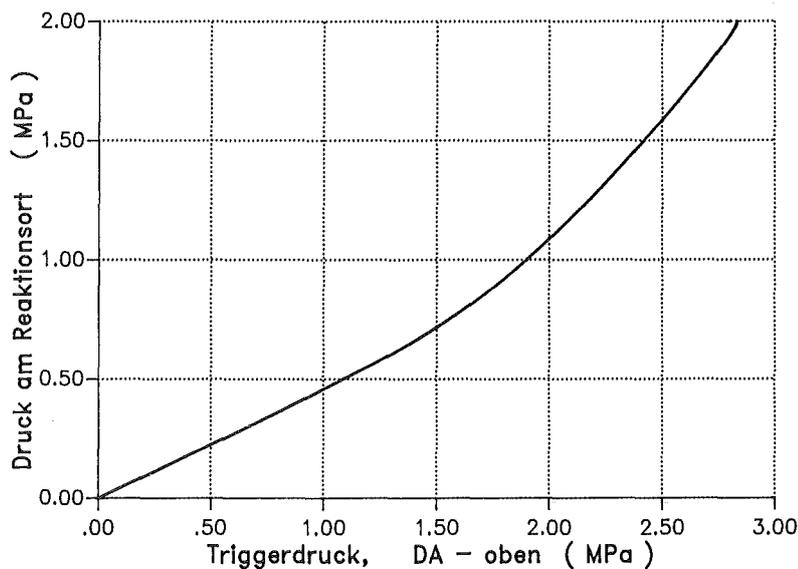


Abb. 3.12 Druck am Reaktionsort (abgeschätzter Wert) als Funktion des gemessenen Triggerdrucks im Behälter, DA-oben

Die mittlere Druckwellengeschwindigkeit zwischen DA-oben und dem Reaktionsort beträgt  $1890 \pm 280$  m/s, was einer Laufzeit von  $100 \mu\text{s} \pm 15 \mu\text{s}$  entspricht.

Im Gegensatz zur Triggerdruckwelle breitet sich die Reaktions-

druckwelle nach ihrer Entstehung zunächst wie eine Kugelwelle aus, da sie anfänglich von der Behälterwand nicht beeinflusst wird. Der Druck an der Behälterwand (Radius  $R_w$ ) berechnet sich nach Cole /79/ aus dem Druck am Reaktionsort (Radius  $R_T$ ) zu

$$p_{Rw} = \frac{R_T}{R_w} \cdot p_{R_T} \quad (3-2)$$

Nachdem die Reaktionsdruckwelle die Behälterwand erreicht hat, wird angenommen, daß sie im weiteren Verlauf als ebene Druckwelle die restliche Natriumsäule durchläuft (Impulsverlust etwa Faktor 0,5) und mit abgeschwächter Amplitude an den Druckaufnehmern DA-oben und DA-unten aufgezeichnet wird.

Mit

$$p_{DA-oben} = 0,5 \cdot p_{Rw} \quad (3-3)$$

und Gleichung (3-2) erhält man für den in grober Näherung abgeschätzten Wert des Druckes am Reaktionsort folgende Beziehung:

$$p_{\text{Reakt.-Ort}} = \frac{R_w}{0,5 \cdot R_T} \cdot p_{DA-oben} \quad (3-4)$$

mit

$$\frac{R_w}{R_T} \approx 10 \quad (3-5)$$

Diese Abschätzung zeigt, daß der an den Druckaufnehmern DA-oben bzw. DA-unten gemessene Druck etwa 1/20 des Druckes wiedergibt, der in Wirklichkeit zum Zeitpunkt der Reaktion am Tropfen vorgelegen hat. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden, in den vorgestellten Diagrammen und Druckverläufen, ausschließlich die im Laborsystem, also ohne Druckamplitudenkorrektur, gemessenen Drücke angegeben.

## - Meßdatenerfassung

Zur Meßdatenerfassung (Druckverläufe, Tropfentemperatur) wurde ein Transientenspeicher eingesetzt. Der Transientenrekorder besitzt neun Aufnahmekanäle mit einer Speichertiefe von 4095 Meßpunkten und einer maximalen Aufnahmefrequenz von 1 MHz. Die Triggerung der Meßdatenerfassung erfolgte entweder durch das Pyrometer- oder ein vorgegebenes Drucksignal. Alle Meßdaten wurden auf einer Festplatte gespeichert.

### 3.3 Durchführung der Experimente

Für die Versuche wurden  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Proben mit einer Masse von 0,21 - 0,22 g verwendet. Dies entspricht im geschmolzenen Zustand einem Tropfendurchmesser von etwa 5 mm. Die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Probe wurde am unteren, umgebogenen Ende des Wolframfadens fixiert und mittig in  $3/4$  Höhe des Re-StrahlungsOfens gehängt. Anschließend wurde die Vorsatzoptik des Quotientenpyrometers so eingerichtet, daß der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen beim Austritt aus dem StrahlungsOfen den Meßstrahl des Quotientenpyrometers kreuzt. Nach diesen Versuchsvorbereitungen in der Handschuhbox konnte das Natrium im Vorratsbehälter und der Versuchsbehälter auf Temperatur gebracht werden. Entsprechend den Versuchsbedingungen wurde nach Einfüllen des Natriums in den Versuchsbehälter, die geforderte Temperaturschichtung im Behälter eingeregelt. Nach Erreichen der gewünschten Temperaturen wurden Ladungsverstärker, Quotientenpyrometer und Transientenrekorder zur Meßdatenerfassung in Aufnahmebereitschaft versetzt. Durch Zuschalten der elektrischen Leistungsversorgung (Transformator, Schließen der Leistungsschütze) wurde der StrahlungsOfen bis auf Temperaturen von 3400 K erhitzt. Die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Probe löste sich etwa 15-20 s nach dem Schmelzen vom Wolframfaden und trigerte beim Durchkreuzen des Pyrometerstrahls die Versuchsaufzeichnung durch den Transientenrekorder. Eine schematische Darstellung der zeitlichen Abläufe während eines Experimentes zeigt

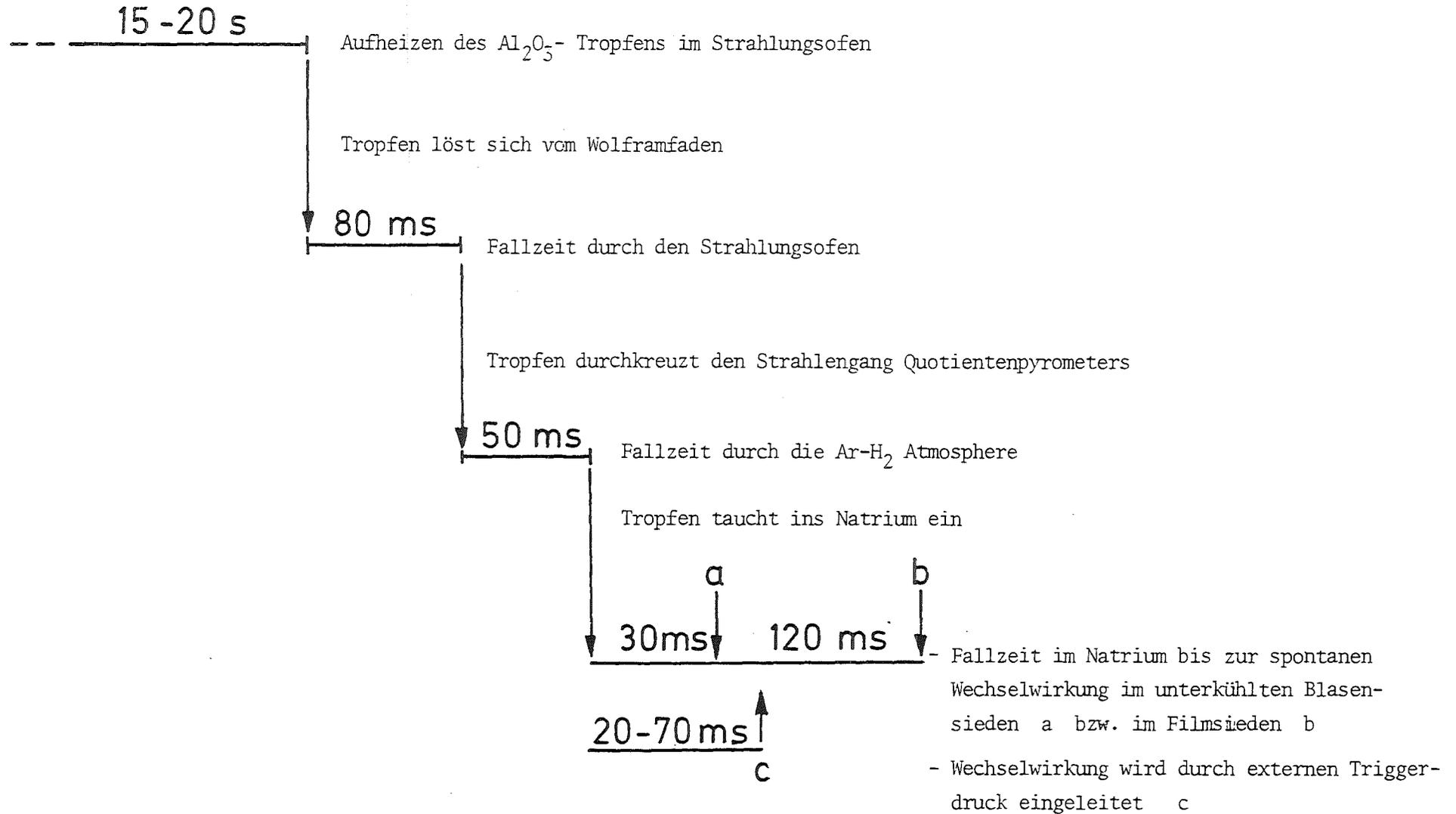


Abb. 3.13 Zeitlicher Ablauf der Experimente

Abb. 3.13. Nach Abschaltung der elektrischen Leistungsversorgung und Abkühlung des Natriums im Versuchsbehälter, wurden die bei der Wechselwirkung entstandenen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Fragmente mittels eines feinmaschigen Siebes, siehe Abb. 3.6, aus dem Natrium entnommen. Natriumreste an den Fragmenten wurden durch Spülen in Ethylalkohol entfernt. Von einigen Versuchen wurden Rasterelektronenmikroskopaufnahmen (REM) der Fragmente erstellt.

### 3.4 Fehlerabschätzung

Bei der Messung der physikalischen Größen wie Temperatur ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen, Natrium) und Druck ergeben sich, aufgrund der endlichen Meßgenauigkeit der benutzten Komponenten und Geräte, systembedingte Fehlerquellen. Eine der wesentlichsten Meßfehler bei diesen Experimenten entsteht bei der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Temperaturmessung mit Hilfe des Quotientenpyrometers. Obwohl die Temperaturanzeige am Schmelzpunkt des Aluminiumoxids kallibriert wurde, muß man davon ausgehen, daß mit steigender Objekttemperatur der Temperaturmeßfehler relativ mit der Temperatur zunimmt. Die maßgebliche Fehlerquelle ist hierbei die Unsicherheit bei der Festlegung der spektralen Emissionskoeffizienten, da diese sich von Spektralbereich zu Spektralbereich ändern können. Die gängigen Wertetabellen geben die spektralen Eigenschaften der Materialien nur bei einigen ausgewählten Temperaturen im festen Aggregatzustand an. Eine möglichst hohe Meßgenauigkeit bei der Quotientenmeßtechnik wird nur dann erreicht, wenn das Emissionsgradverhältnis

$\epsilon(\lambda_1^*, T) / \epsilon(\lambda_2^*, T)$ , das Transmissionsgradverhältnis  $\tau(\lambda_1^*, T_M) / \tau(\lambda_2^*, T_M)$  und die Reflektionsanteile des Streulichtes  $L_F(\lambda_{1,2}^*)$ , reflektiert durch das Objekt mit  $\rho^*(\lambda_{1,2}^*, T)$ , bekannt, und mit den Spektralbereichen  $\lambda_1^*$  und  $\lambda_2^*$  des Pyrometers verträglich sind, siehe Kapitel 3.2. Nach Einschätzung der Geräteentwickler kann in diesem speziellen Anwendungsfall mit einem relativen Fehler von kleiner als 2.5% gerechnet werden /48/.

Darüberhinaus besitzt das Aluminiumoxid im flüssigen Zustand die

Eigenschaft, für einen größeren Wellenlängenbereich transparent zu sein /80/, sodaß bei der Temperaturmessung mit Hilfe des Pyrometers nicht nur die Oberflächentemperatur allein, sondern eine mittlere, näherungsweise über das Volumen gemittelte Temperatur gemessen wird /81/. Tabelle 3.1 faßt, gegliedert nach den verwendeten Komponenten, die Fehler zusammen, die sich aus den vom Gerätehersteller angegebenen Meßgerätedaten ergeben.

#### Gesamtmeßfehler der Temperaturmessung

Temperaturmessung	Fehler
im Natrium	
Thermoelemente (Ni-CrNi)	absoluter Fehler < 3 K Meßbereich bis 1210 K
Trennverstärker (DANA 2860)	rel. Fehler durch Geräteunge- nauigkeit: < 0,1 % rel. Fehler durch Nicht- linearität: < 0,01 %
Transienten- rekorder	Fehler vernachlässigbar
Gesamtfehler: < 5 K	
Temperaturmessung des Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
Quotientenpyro- meter (QPMRS 465, Fa. Dr. Maurer)	rel. Fehler durch Meßungenaui- gkeiten: < 2.5 % Meßbereich: 800 - 3000 K

Gesamtfehler: < 20 K

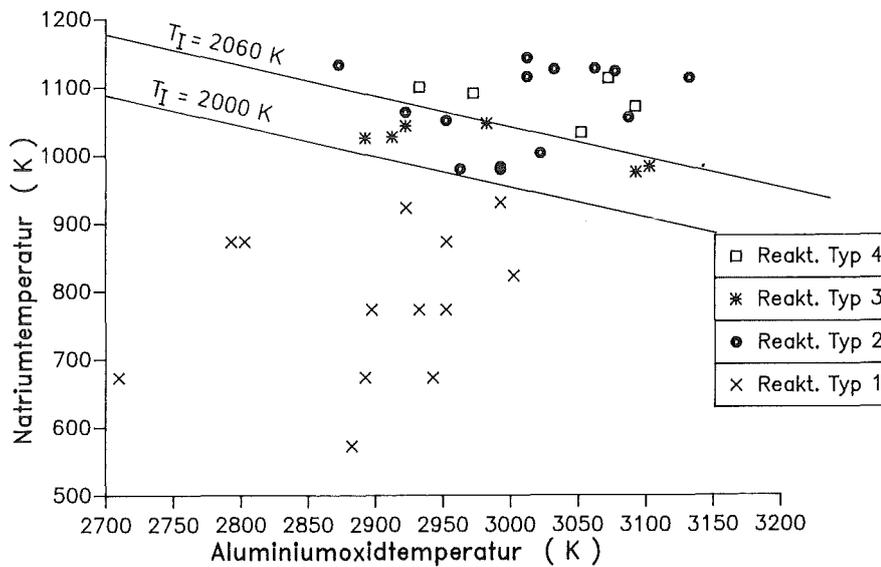
Gesamtfehler der Druckmessungen

Druckmessung im Natrium	Fehler
Druckaufnehmer (Typ: 6001, Fa.KISTLER)	rel. Fehler durch Nicht- linearität: < 0,8 % Meßbereich: 0 - 5 MPa
Ladungsverstärker (Fa. KISTLER)	rel. Fehler durch Geräteunge- nauigkeit: < 0,05 % rel. Fehler durch Nicht- linearität: < 1 %
Gesamtfehler: < 0.1 MPa	

#### 4. VERSUCHSERGEBNISSE

##### 4.1 Zusammenstellung der Wechselwirkungsarten

Im folgenden Kapitel werden, geordnet nach den beobachteten Siederegimen und dem jeweiligen Wechselwirkungsverhalten, charakteristische Reaktionsdruckverläufe vorgestellt und diskutiert.



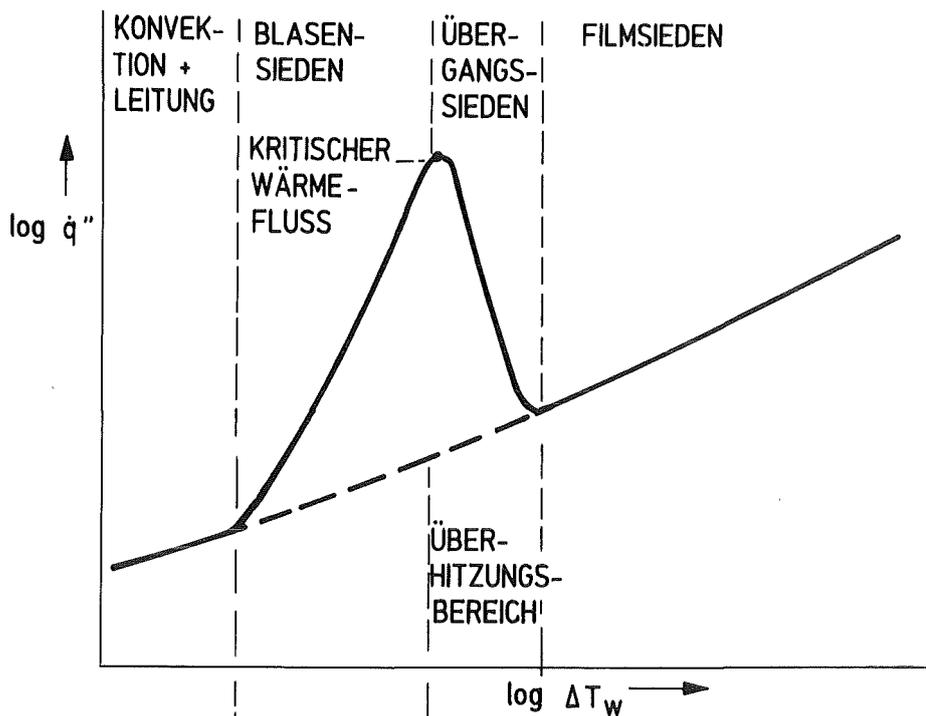
- Reaktionstyp 2: selbsttriggernde Wechselwirkung im Filmsieden  
Reaktionstyp 3: getriggerte Wechselwirkung mit verzögerter Reaktionsdruckverstärkung  
Reaktionstyp 4: getriggerte Wechselwirkung mit prompter Reaktionsdruckverstärkung

In Tabelle 1, Appendix A, sind die wichtigsten Versuchsparameter der durchgeführten und ausgewerteten Experimente zusammengestellt.

#### 4.2 Experimentelle Bestimmung der Siedeformen in Natrium

Grundlage vieler Dampfexplosionsmodelle ist eine anfängliche Vorvermischung der Komponenten im Filmsieden (coarse mixing). Daher war es auch bei der Durchführung dieser Experimente wichtig, die jeweiligen Siedeformen um den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen im Natrium zu kennen und hinreichend genau voneinander trennen zu können.

Zur Veranschaulichung der bekannten Siederegime und der dabei zugrundeliegenden Wärmeübertragungsformen, zeigt Abb. 4.2 in schematischer Darstellung den spezifischen Wärmefluß als Funktion der Wandüberhitzung (Differenz zwischen Wand- und Sättigungstemperatur), sowie die Mechanismen der Dampfblasenbildung beim "pool-boiling". Beim "pool-boiling" befindet sich die Flüssigkeit im Sättigungszustand. Da die hier vorgestellten Experimente in zum Teil um mehrere hundert Grad unterkühltem Natrium durchgeführt wurden, spricht man anstelle vom Übergangs- bzw. Blasensieden vom unterkühlten Blasensieden, "subcooled boiling"/82/. Der wesentliche Unterschied zum "pool-boiling" besteht darin, daß beim Blasensieden einer unterkühlten Flüssigkeit die Dampfblasen die heiße Oberfläche nicht verlassen, sondern unmittelbar nach ihrer Entstehung wieder an, oder in unmittelbarer Nähe der Oberfläche kollabieren, siehe Abb 4.3. Diese Siedeform ist, ähnlich wie beim "pool-boiling" im Übergangs- und Blasensieden, mit einer hohen Wärmeübertragung gekoppelt. Die Erforschung der jeweiligen Siederegime in Natrium und anderen Alkalimetallen war in den zurück-



### MECHANISMUS DER BLASENBILDUNG

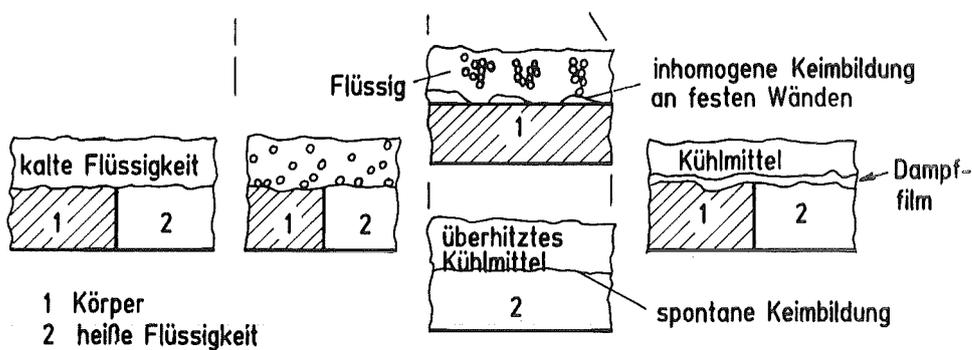


Abb. 4.2 Siedeformen beim "pool-boiling" /84/

liegenden Jahren, besonders im Hinblick auf die Sicherheit schneller natriumgekühlter Reaktoren, Schwerpunkt vieler experimenteller und theoretischer Arbeiten /21/, /49/, /50/, /51/, /53/.

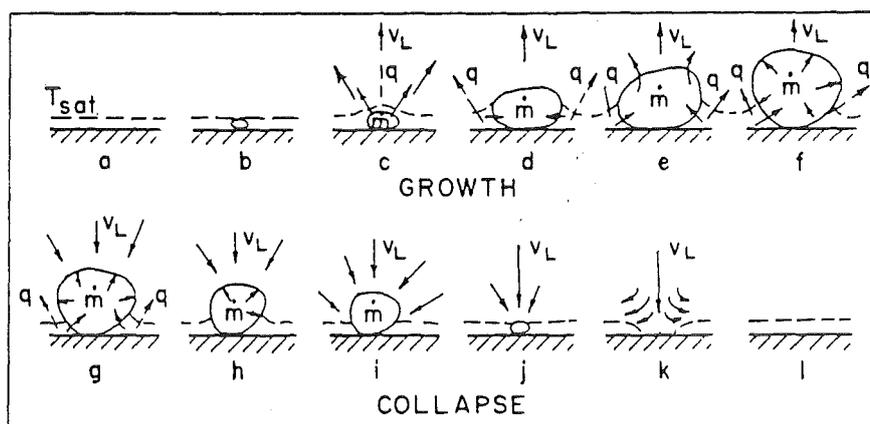


Abb. 4.3 Schematische Darstellung der Dampfblasenbildung beim unterkühlten Blasensieden /82/

Das Siedeverhalten von Natrium ist ebenso wie bei nichtmetallischen Flüssigkeiten von einer Vielzahl von Einflußfaktoren abhängig. Die dabei wichtigsten, thermophysikalischen Einflußgrößen sind neben der Flüssigkeitsunterkühlung, die Eigenschaften der heißen Oberfläche (Rauhigkeit, Materialeigenschaften, Geometrie) sowie die Strömungsform (freie oder erzwungene Strömung) um den heißen Körper. An Festkörperoberflächen spielen bei der Siedekeimbildung vor allem vorhandene Gaseinschlüsse in Kavitäten eine entscheidende Rolle, während in Flüssig-Flüssig Systemen die gegenseitigen Benetzungseigenschaften von Bedeutung sind.

Nach Farahat /49/ konnte in den hier vorgestellten Experimenten zum zweiten Mal überhaupt Filmsieden im unterkühlten Natrium nachgewiesen werden. Dabei war die Natriumunterkühlung mit 200 K wesentlich größer als bei den Tantal-Natrium Experimenten von Farahat,  $\Delta T_{\text{sub}} = 31 \text{ K}$ . Die von Henry /55/, mit Hilfe der experimentellen Ergebnisse von Farahat, abgeleitete Beziehung für die minimale Filmsiedebedingung an oxidischen Oberflächen und höheren Natriumunterkühlungen wird in Kapitel 5 mit Hilfe der eigenen, experimentellen Ergebnisse auf ihre Brauchbarkeit überprüft.

In den nachfolgend vorgestellten Experimenten mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen in Natrium traten das unterkühlte Blasen- und Filmsieden auf. Dies ergibt sich aus den signifikanten Unterschieden bei der Tropfenverweilzeit im Natrium bis zur selbsttriggernden Reaktion und der Höhe der Reaktionsdrücke. Es ist leicht einzusehen, daß bei einer schnellen Abkühlung und Erstarrung des heißen Tropfens eine energetische Wechselwirkung umso unwahrscheinlicher wird, je mehr von der heißen Schmelze schon erstarrt ist. Derartige Beobachtungen wurden auch von Armstrong /35/ und Mizuta /37/ in  $\text{UO}_2$ -Tropfenexperimenten in Natrium gemacht. Ein Indiz für den Filmsiedezustand um einen Körper ist seine nachweislich langsamere Abkühlung als im unterkühlten Blasensieden /49/, /52/. Infolgedessen wird ein im Filmsiedezustand befindlicher  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen entsprechend langsamer erstarren und abkühlen und zu größeren Wechselwirkungsdrücken neigen.

Bei den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Na Experimenten mit hoher Natriumunterkühlung ( $\Delta T_{\text{sub}} \geq 200 \text{ K}$ ) fand nach einer kurzen Verweilzeit ( $< 33 \text{ ms}$ ) des Tropfens im Kühlmedium eine selbsttriggernde Reaktion statt. Der im unterkühlten Blasensieden befindliche Tropfen wird aufgrund der hohen Wärmeströme, Corradini /45/ schlägt für dieses Siederegime einen Wärmeübergangskoeffizienten von  $\alpha = 1,6 \cdot 10^6 \text{ W/m}^2\text{K}$  vor, sehr schnell erstarren und nur wenig erschmolzenes  $\text{Al}_2\text{O}_3$  wird während der Fragmentation mit dem Natrium in eine Wechselwirkung treten. Ein hierzu entwickeltes Wechselwirkungsmodell, unterstützt durch REM-Aufnahmen der Fragmente, wird in Kapitel. 6.1.1 vorgestellt. Befindet sich der Tropfen nach dem Eintauchen im Filmsiedezustand,  $\Delta T_{\text{sub}} \leq 200 \text{ K}$ , fällt er zunächst eine Zeitlang ohne zu fragmentieren durch das heiße Natrium bis dann, aufgrund thermohydraulischer Effekte, der Dampffilm kollabiert und das noch nicht erstarrte  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mit dem Natrium in Wechselwirkung tritt. In zwei nichtgetriggerten Filmsiedeexperimenten konnte der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen, ohne in Wechselwirkung mit dem Natrium zu treten, zu einem Ellipsoid erstarren, siehe Schnittbild in Abb. 4.4. Das Ellipsoid besitzt aufgrund der erheblichen Dichteänderung während des Phasenwechsels einen Erstarrungslunker. Gleiche Erstarrungs-

formen konnte man auch bei den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser-Versuchen /39/ beobachten, da hier der Tropfen stets von einem Dampffilm umgeben war und daher ebenfalls langsam im Filmsiedezustand erstarren konnte. In Abb. 4.5 wird die Verweilzeit des Tropfens im Natrium bis zur

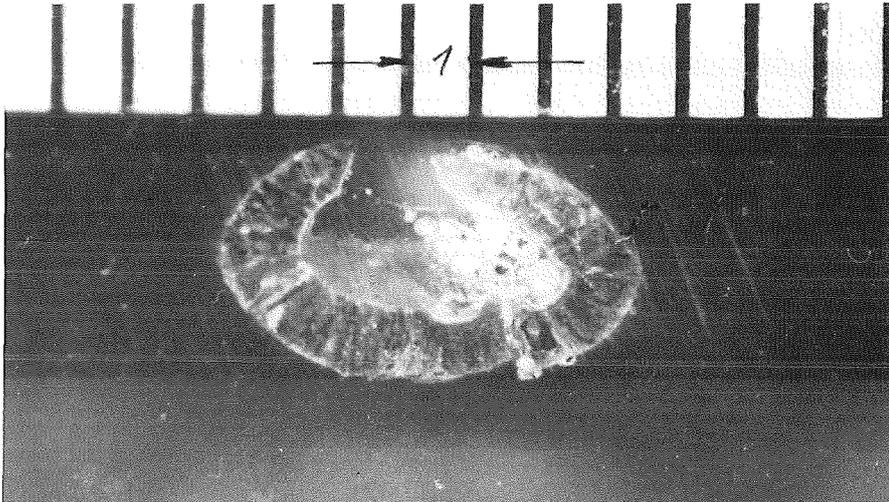


Abb. 4.4 Schnittbild durch einen erstarrten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen

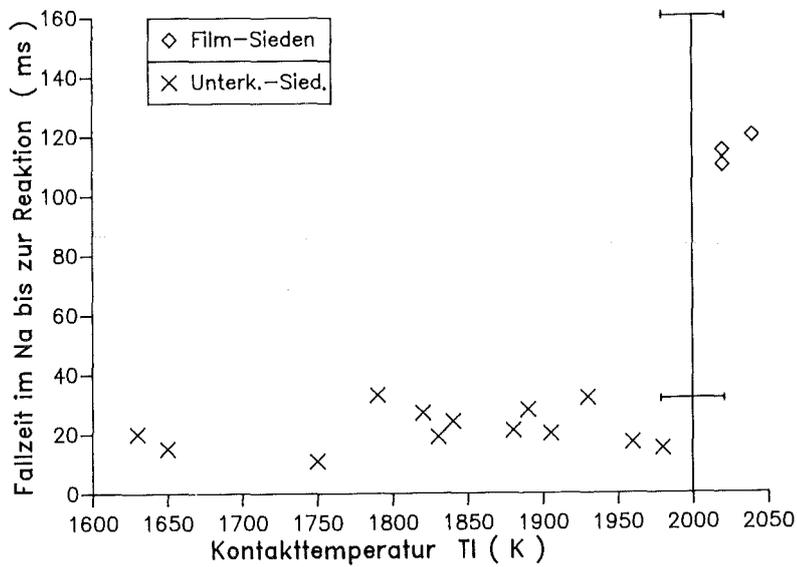


Abb. 4.5 Tropfenverweilzeit im Natrium bis zur selbsttriggern- den Wechselwirkung als Funktion der Kontakttemperatur

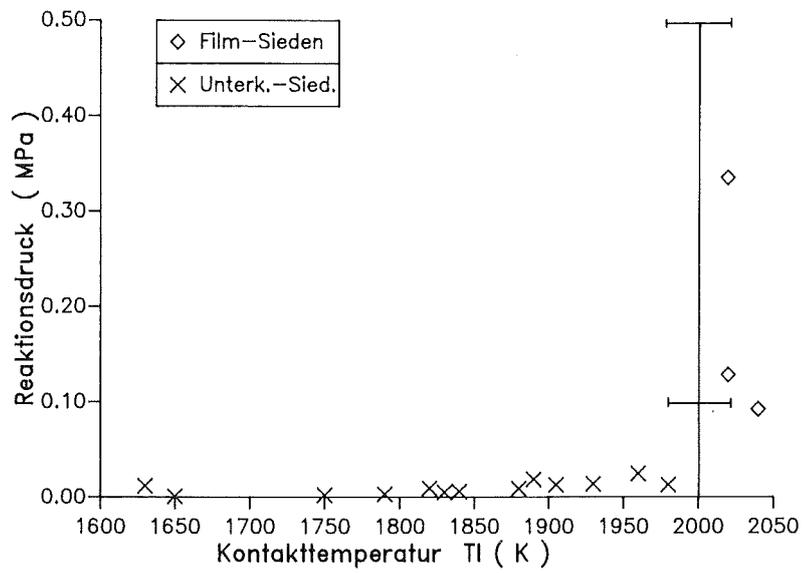


Abb. 4.6 Reaktionsdruck, DA-oben, als Funktion der Kontakttemperatur  $T_I$

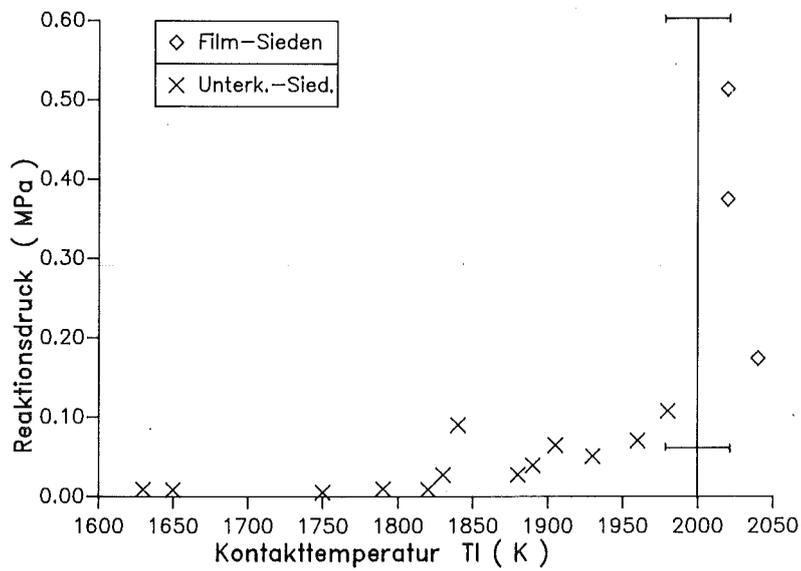


Abb. 4.7 Reaktionsdruck, DA-Temperaturabklingstrecke, als Funktion der Kontakttemperatur  $T_I$

selbsttriggernden Wechselwirkung als Funktion der anfänglichen Kontakttemperatur zwischen dem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und dem Natrium dargestellt. Die Abbildung zeigt, daß die Verweilzeit des Tropfens bis zur spontanen Reaktion im Blasensieden um ein Vielfaches geringer ist als im Filmsiedezustand. Unter Zugrundelegung einer mittleren Fallgeschwindigkeit von etwa 0,4 m/s wird der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen im unterkühlten Sieden schon nach ungefähr 15 mm Eintauchtiefe mit dem Natrium in spontane Wechselwirkung treten, wogegen im Filmsieden Eintauchtiefen von 50 mm und mehr erreicht werden.

Die Abbildungen 4.6 und 4.7 zeigen die gemessenen Reaktionsdrücke in der Behälterwand, DA-oben, und in der näher am Reaktionsort gelegenen Temperaturabklingstrecke, DA-TA. Die vorgestellten Ergebnisse in Abb. 4.5 - 4.7 lassen erkennen, daß eine anfängliche Kontakttemperatur von etwa  $T_I = 2000 \text{ K}$ ,  $\Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$ , benötigt wird, um zwischen einem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schmelzetropfen und Natrium in den Filmsiedezustand zu gelangen. Inwieweit die Tropfengröße, sowie die Fallgeschwindigkeit (Grad der erzwungenen Konvektion) im Natrium die Grenztemperatur beeinflussen, wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht.

#### 4.2.1 Selbsttriggernde Wechselwirkungen im unterkühlten Blasensieden

In den Versuchen mit einer anfänglichen Kontakttemperatur unter 2000 K fanden stets selbsttriggernde Wechselwirkungen und Fragmentation des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfens statt. Die Auswertung der aufgezeichneten Pyrometer- und Drucksignale ergab, daß die Fallzeit im Natrium bis zur spontanen Wechselwirkung 10-30 ms betragen hat, was einer Eintauchtiefe von 10-15 mm im Natrium entspricht. Die gesamte Reaktion fand in einem Zeitraum von 20-40 ms statt und war durch mehrere Druckereignisse gekennzeichnet. Der im unterkühlten Blasensieden abgekühlte  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen verursachte Reaktionsdrücke von nur einigen hundert Millibar. Der Grund hierfür liegt zum einen in der transienten Abkühlung und Erstarrung des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfens und zum anderen in der geringen Verdämmung des

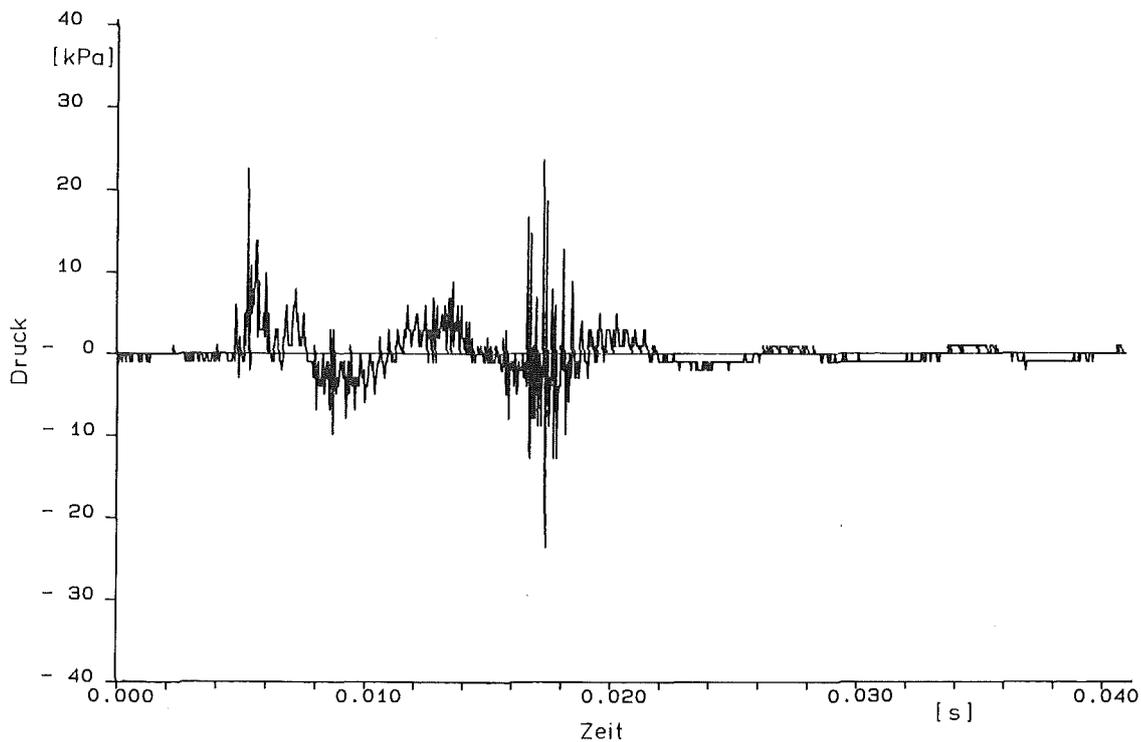


Abb. 4.8 Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggender Wechselwirkung im unterkühlten Blasensieden, DA-oben, V19

Reaktionsortes. Die Versuchsergebnisse im unterkühlten Blasensieden zeigen, daß bei einer hohen Natriumunterkühlung bzw. geringfügig überhitzten Oxidschmelze eine Vorvermischung, "coarse-mixing", größerer Massen nicht zu erwarten ist. Der Reaktionsdruckverlauf in Abb. 4.8 zeigt den typischen Verlauf einer Wechselwirkung im unterkühlten Sieden. Folgende Anfangsbedingungen lagen bei V19 vor:  $T_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 2950 \text{ K}$ ,  $T_{\text{Na}} = 873 \text{ K}$ . Nach einer Fallzeit von etwa 30 ms im Natrium erfolgte die spontane Wechselwirkung und Fragmentation. Die Reaktion dauerte etwa 20 ms. Die Druckmessungen in der Behälterinnenwand, DA-oben, Abb. 4.8, und in der Temperaturabklingstrecke ergaben maximale Druckamplituden von 13.7 kPa (137 mbar) bzw. 50.8 kPa. Im Druckverlauf in Abb. 4.8 kann man erkennen, daß die gesamte Wechselwirkung in zwei deutlich voneinander zu trennenden Reaktionsereignissen stattgefunden hat.

#### 4.2.2 Selbsttriggernde Wechselwirkungen im Filmsieden

Übersteigt die anfängliche Kontakttemperatur zwischen dem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen und dem Natrium einen Wert von  $T_I = 2000 \text{ K}$ , kann man aufgrund der gemessenen Verweilzeiten davon ausgehen, daß sich der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen nach dem Eintauchen ins Natrium im Filmsieden befindet. Darüberhinaus wird auch eine deutliche Verstärkung der

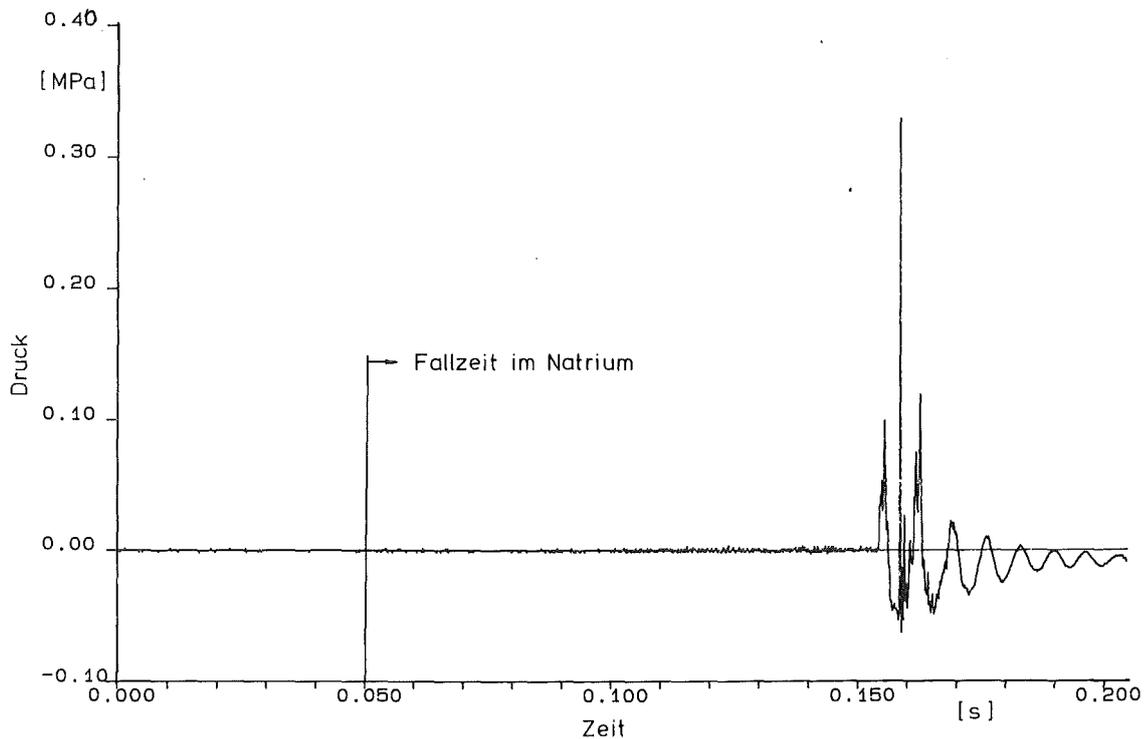


Abb. 4.9 Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung im Filmsieden, DA-oben, V24

Reaktionsdrücke gegenüber denen im unterkühlten Sieden beobachtet. Die Verweilzeiten im Natrium bis zur Reaktion betragen über 100 ms. Die zeitliche Ausdehnung der Reaktion liegt etwa in der gleichen Größenordnung wie bei Reaktionstyp 1. Die Abbildungen 4.9 bis 4.11 zeigen die typischen Reaktionsdruckverläufe von zwei selbsttriggernden Wechselwirkungen im Filmsiedezustand. Bei dem Versuch V24, Abb. 4.9, lagen folgende Anfangsbedingungen vor:

$T_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 2990 \text{ K}$ ,  $T_{\text{Na}} = 979 \text{ K}$ . Daraus ergibt sich eine anfängliche Kontakttemperatur von  $T_{\text{I}} = 2020 \text{ K}$ . Nach einer Fallzeit im Natrium von etwa 100 ms kommt es zu einer selbsttriggernden Wechselwirkung und Fragmentation des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfens. Der am Druckaufnehmer, DA-oben, gemessene maximale Druck beträgt etwa 0.32 MPa. In Experimenten mit geringer Natriumunterkühlung,  $\Delta T_{\text{sub}} \leq 100 \text{ K}$ , und Kontakttemperaturen über 2100 K konnte in einigen Fällen eine Wechselwirkung mit Hilfe eines Triggerdruckpulses nicht gezielt eingeleitet werden. Entweder reichte die vorgewählte Triggerdruckstärke nicht aus, oder aber ein früher am Tropfen stattfindendes Ereignis initiierte die Wechselwirkung, was für die Existenz einer thermischen Wechselwirkungszone, "TIZ", auch bei dieser Materialpaarung spricht /24/.

Abb. 4.10 und 4.11 zeigen den Reaktionsdruckverlauf einer spontanen Wechselwirkung bei niedriger Natriumunterkühlung, V 46.

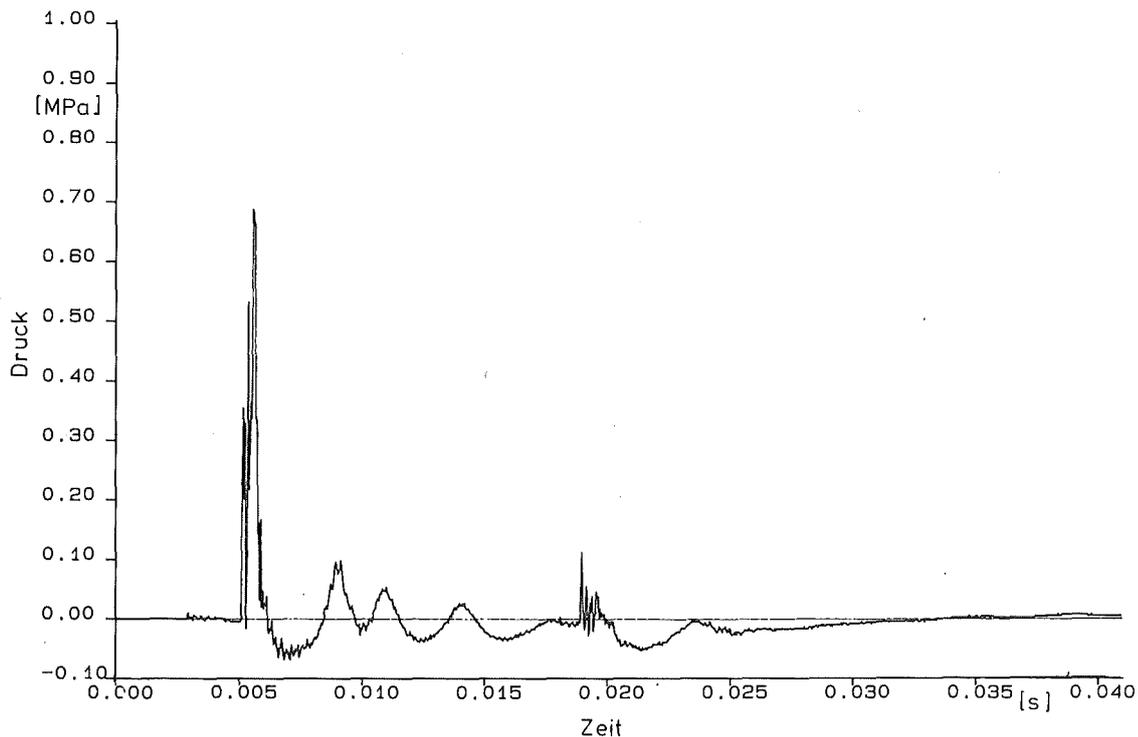


Abb. 4.10 Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung im Filmsieden, DA-oben, V46

Folgende Anfangsbedingungen lagen bei Versuch V46 vor:

$T_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 3013 \text{ K}$ ,  $T_{\text{Na}} = 1143 \text{ K}$ ,  $T_{\text{I}} = 2150 \text{ K}$ . Die spontane Reaktion erfolgte nach einer 110 ms langen Fallzeit im Natrium und hatte eine Dauer von etwa 1 ms. Die an der Behälterwand gemessene maximale Druckamplitude beträgt etwa 0.83 MPa. Mit Hilfe einer größeren zeitlichen Auflösung der gemessenen Drucksignale, DA-oben und DA-unten in Abb. 4.11, läßt sich eine Reaktionsdruckwellengeschwindigkeit von  $\sim 207 \text{ m/s}$  angeben.

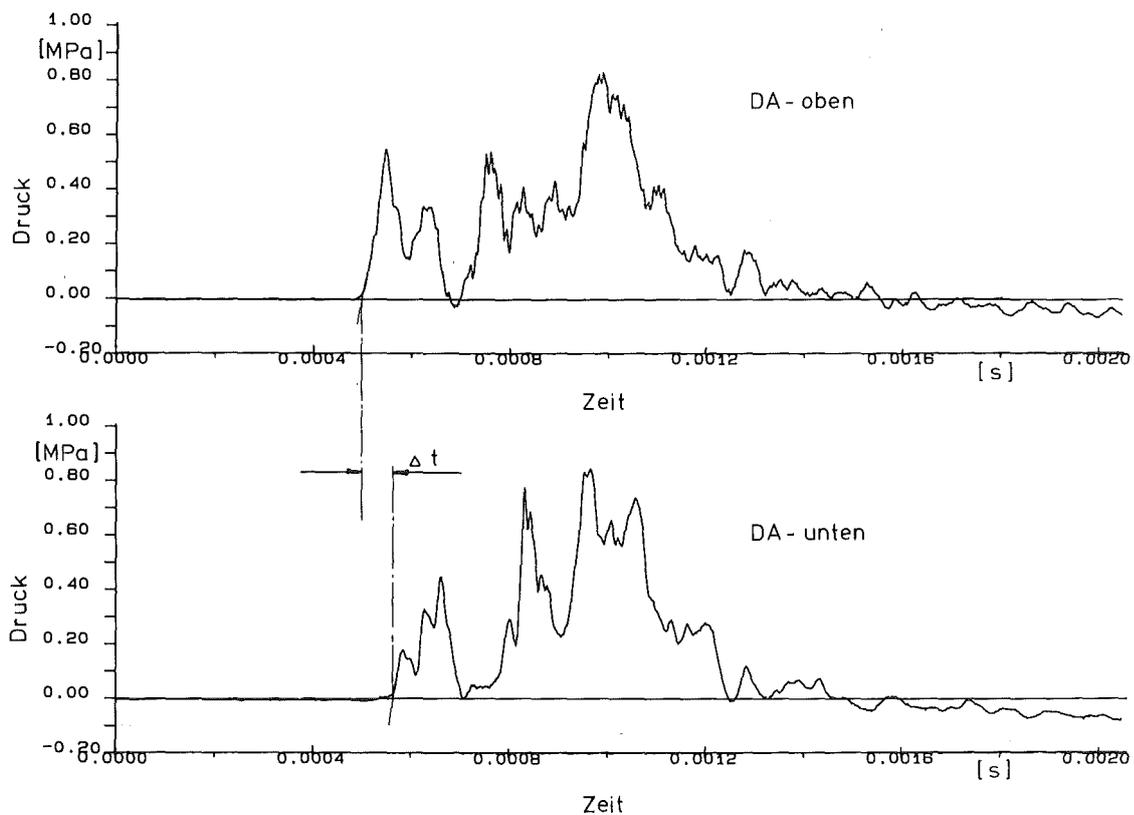


Abb. 4.11 Reaktionsdruckverlauf einer selbsttriggernden Wechselwirkung, größere Zeitauflösung, DA-oben, DA-unten, V46

Ergänzt man die in den Abbildungen 4.4 bzw. 4.5 vorgestellten Versuchsergebnisse bei größerer Natriumunterkühlung mit denen bei niedriger Unterkühlung, erhält man eine Gesamtdarstellung aller

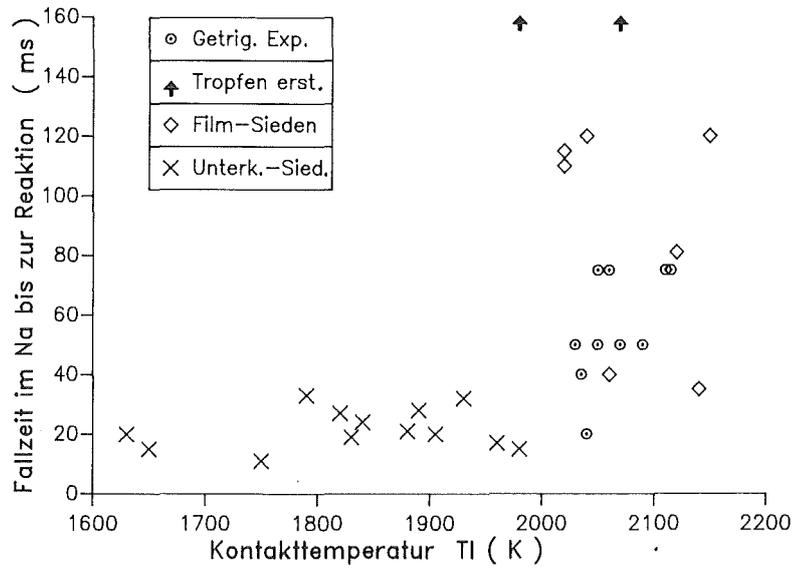


Abb. 4.12 Tropfenverweilzeit im Natrium bis zur selbsttriggern- den Wechselwirkung als Funktion der Kontakttemperatur, (die getriggerten Experimente sind im Hinblick auf eine Gesamtdarstellung miteingetragen)

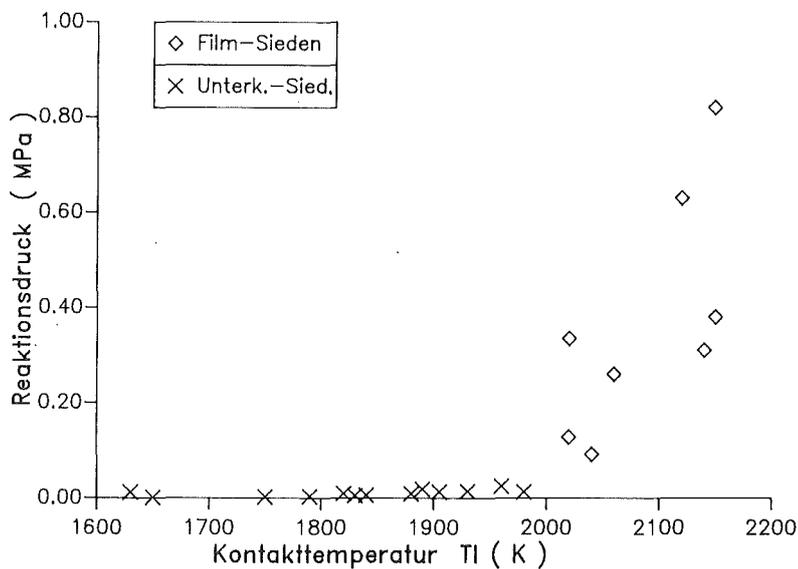


Abb. 4.13 Reaktionsdruck der selbsttriggernenden Reaktionen als Funktion der Kontakttemperatur, DA-oben

selbsttriggernden Wechselwirkungen mit den besonderen Merkmalen des jeweiligen Siedezustandes, Abb. 4.12 - 4.13 .

Die Ergebnisse in Abb. 4.12 und 4.13 zeigen, daß mit zunehmender Kontakttemperatur ein deutlicher Anstieg der Reaktionsdrücke und der Tropfenverweilzeiten im Natrium bis zur selbsttriggernden Wechselwirkung zu erkennen ist.

#### 4.2.3 Getriggerte Wechselwirkung mit verzögerter Druckverstärkung

Im Kontakttemperaturbereich von  $2000 \leq T_I \leq 2060$  K wurden in sechs getriggerten Experimenten "verzögerte" Wechselwirkungen beobachtet. Dies bedeutet, daß zwischen dem maximalen Triggerdruck und dem ersten meßbaren Reaktionsdruck eine Zeitspanne von etwa 1-3 ms liegt. Die Abbildungen 4.14 und Abb. 4.15 zeigen in

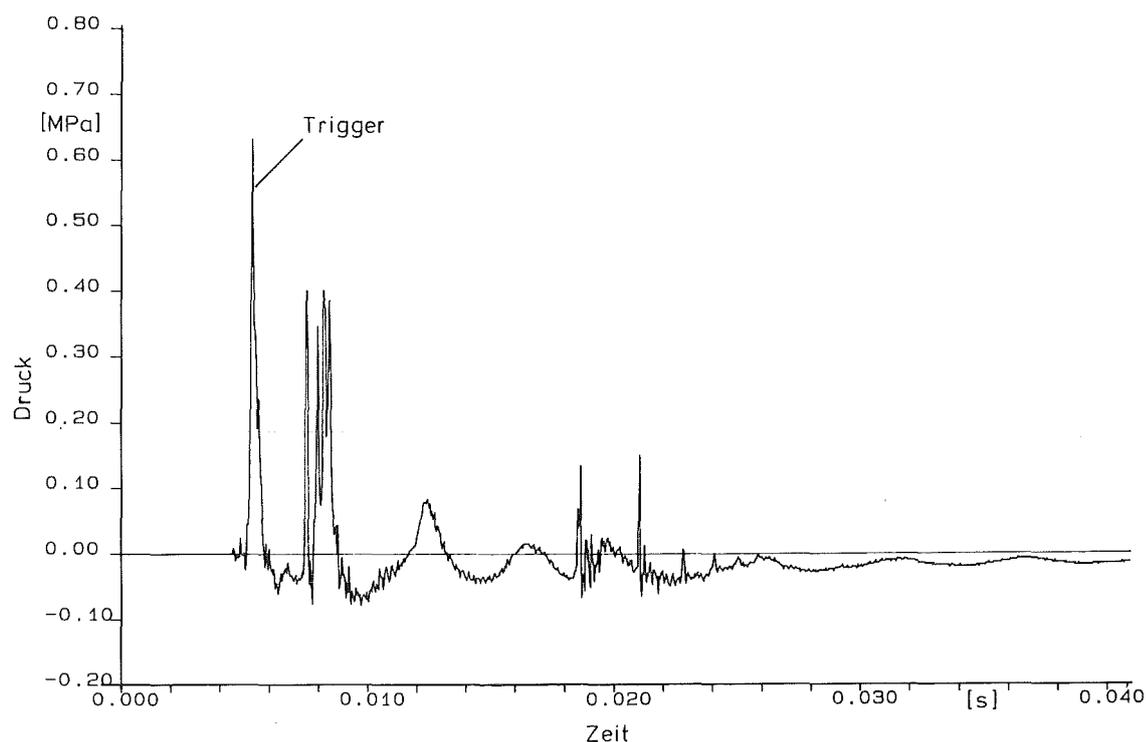


Abb. 4.14 Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, verzögerten Wechselwirkung, DA-oben, V31

verschiedenen Zeitaufösungen den charakteristischen Reaktionsdruckverlauf einer verzögerten Wechselwirkung, Versuch V31. Die anfängliche Natrium- bzw. Oxidtemperatur beträgt in diesem Experiment  $T_{\text{Na}} = 1026 \text{ K}$  bzw.  $T_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 2890 \text{ K}$ , die Kontakttemperatur  $T_{\text{I}} = 2030 \text{ K}$ . Einem Triggerdruckpuls von  $0.62 \text{ MPa}$  (Druckanstiegszeit:  $400 \mu\text{s}$ , Pulsdauer:  $800 \mu\text{s}$ ) folgt nach etwa  $2 \text{ ms}$  die deutlich erkennbare verzögerte Wechselwirkung. Das erste Reaktionsereignis besitzt eine maximale Druckamplitude von  $0.41 \text{ MPa}$  und hat eine Dauer von weniger als  $2 \text{ ms}$ . Nach zwei aufeinanderfolgenden Rekompansionsdruckwellen erfolgen weitere, kleinere Wechselwirkungen mit Druckamplituden von  $0.15 \text{ MPa}$ . Etwa  $16 \text{ ms}$  nach der ersten Reaktion ist die mit meßbarer Energiefreisetzung verbundene Wechselwirkung abgeschlossen.

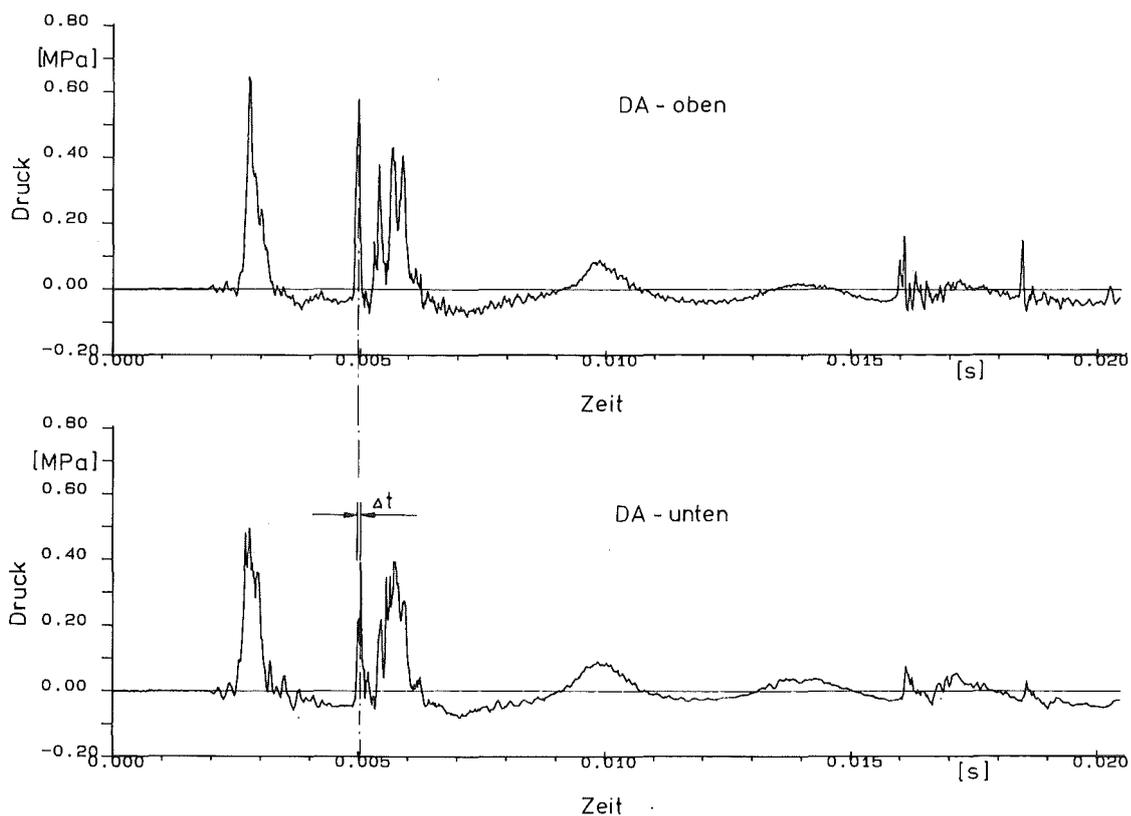


Abb. 4.15 Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, verzögerten Wechselwirkung, DA-oben, DA-unten, V31

Die Auswertung der Reaktionsdruckwellenlaufzeit zwischen DA-oben und DA-unten ergibt eine Druckwellengeschwindigkeit von 216 m/s. Die übrigen fünf Experimente mit verzögerter Wechselwirkung verliefen in ähnlicher Weise. Eine physikalische Modellvorstellung dieser Wechselwirkungsart findet man in Kapitel 6.1.4 .

#### 4.2.4 Getriggerte Wechselwirkungen mit prompter Druckverstärkung

Liegt zwischen dem Triggerdruckpuls und der ersten meßbaren Druckerhöhung infolge einer Wechselwirkung die Zeit unter einer Millisekunde, spricht man, entsprechend der Definition von Jacobs und Peppler /32/, von einer prompten Wechselwirkung. Die prompte Wechselwirkung, eine Beobachtung, die bereits von Morita in Silikonöl-, Na-Pentan Experimenten gemacht wurde /2/, kann unter

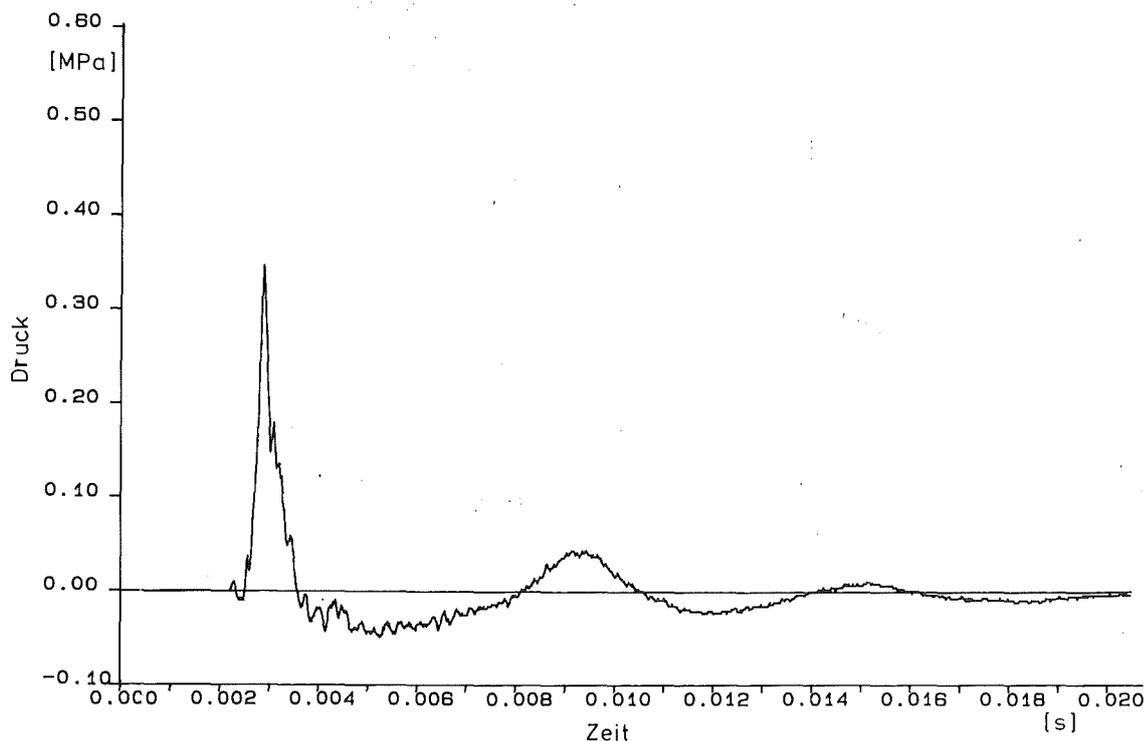


Abb. 4.16 Triggerdruckverlauf ohne Wechselwirkungsereignis, Vorversuch zu V36, DA-oben

noch näher zu untersuchenden Umständen, entscheidenden Einfluß auf das Propagationsverhalten einer Dampfexplosion in einem vorgemischtem "large-scale" System erlangen. Morita stellte bei seinen Experimenten fest, daß nach Erreichen einer Kontakttemperatur  $T_I$  gleich der homogenen Keimbildungstemperatur  $T_{HN}$  des Pentans, eine prompte Wechselwirkung und Fragmentation des Tropfens erfolgt. Gleiches Verhalten beobachtete man bei den  $Al_2O_3$ -Na Experimenten nach Erreichen einer Kontakttemperatur von  $T_I = 2060$  K.

Die Abbildungen 4.17 und 4.18 zeigen den Reaktionsdruckverlauf einer prompten Wechselwirkung in verschiedenen Zeitauflösungen. Folgende Randbedingungen lagen bei dem Versuch, V36, vor:

$T_{Al_2O_3} = 3090$  K,  $T_{Na} = 1070$  K,  $T_I = 2110$  K.

Zur Hervorhebung der prompten Wechselwirkung wird in Abb. 4.16 der reine Triggerdruckverlauf aus einem Vorversuch angegeben.

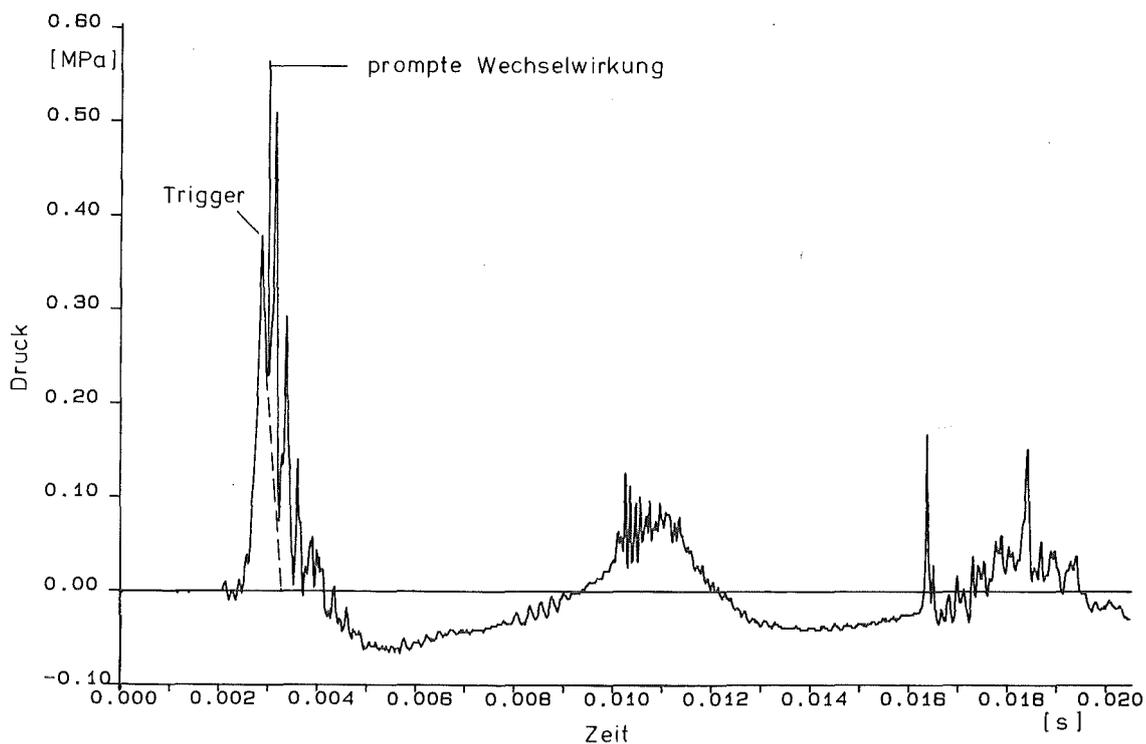


Abb. 4.17 Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, prompten Wechselwirkung, DA-oben, V 36

Aus den Druckaufzeichnungen in Abb. 4.17 und 4.18 ist deutlich zu erkennen, daß der erste, meßbare Reaktionsdruckanstieg etwa  $460 \mu\text{s}$  nach dem Triggerdruckanstieg erfolgt. Dieser ersten Reaktion folgen im Abstand von  $230 \mu\text{s}$  zwei weitere Reaktionspeaks. Die Druckamplitude des ersten Reaktionsereignisses liegt über  $0.5 \text{ MPa}$ . Etwa  $7$  und  $13 \text{ ms}$  nach der ersten Wechselwirkung folgen zwei weitere, meßbare Reaktionen mit maximalen Druckamplituden von  $0.17 \text{ MPa}$ . Diese späteren Reaktionsereignisse resultieren aus einer erneuten Systemdruckerhöhung infolge von Rekompansionsdruckwellen in der Natriumsäule. Für die Geschwindigkeit der Reaktionsdruckwelle ergibt sich ein Wert von ca.  $600 \text{ m/s}$ . Dies entspricht etwa einem 3-fach höheren Wert als bei einer verzögerten Wechselwirkung.

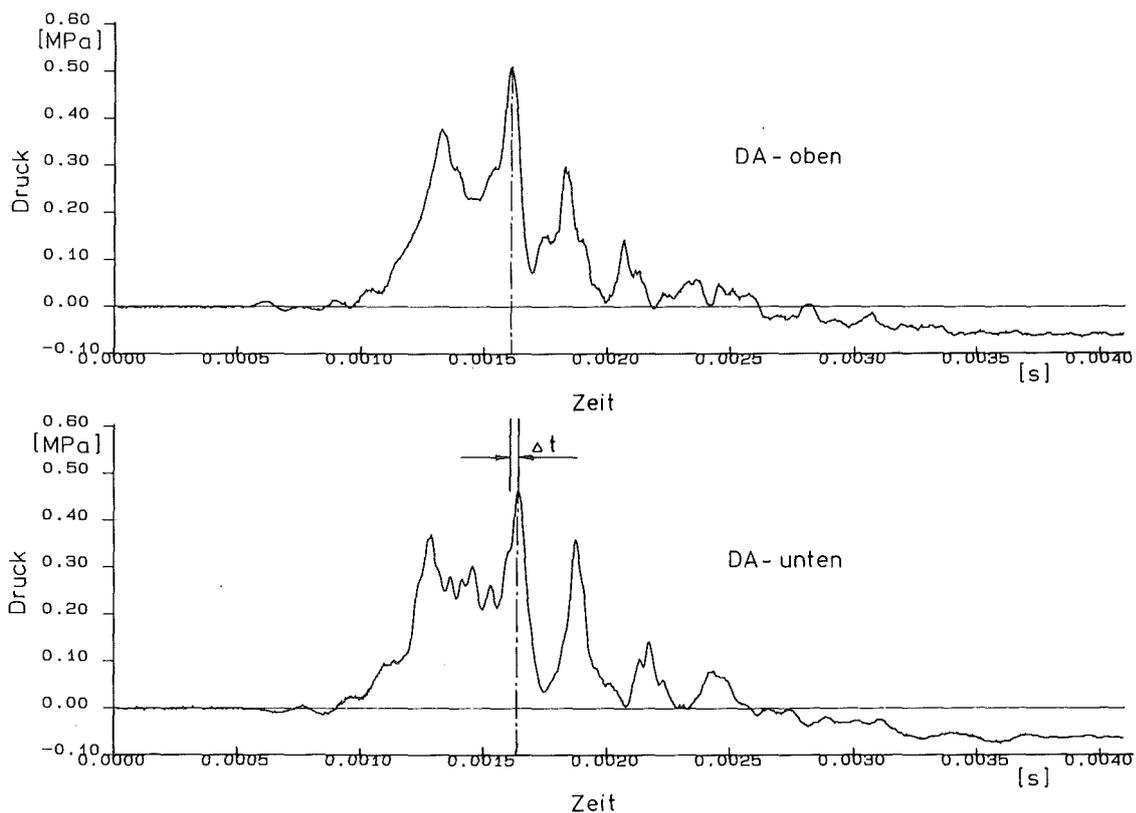


Abb. 4.18 Reaktionsdruckverlauf einer getriggerten, prompten Wechselwirkung, DA-oben, DA-oben, V 36

Prompte Wechselwirkungen wurden in fünf getriggerten Experimenten beobachtet, wobei die Kontakttemperaturgrenze zwischen der verzögerten und prompten Reaktion bei  $T_I = 2060$  K liegt.

Abb. 4.19 zeigt den maximalen Reaktionsdruck der getriggerten Fragmentationsereignisse als Funktion der Kontakttemperatur. Da die gemessenen Reaktionsdrücke etwa um das 20-fache geringer sind als die am Reaktionsort selber, siehe Kapitel 3.2, wird in

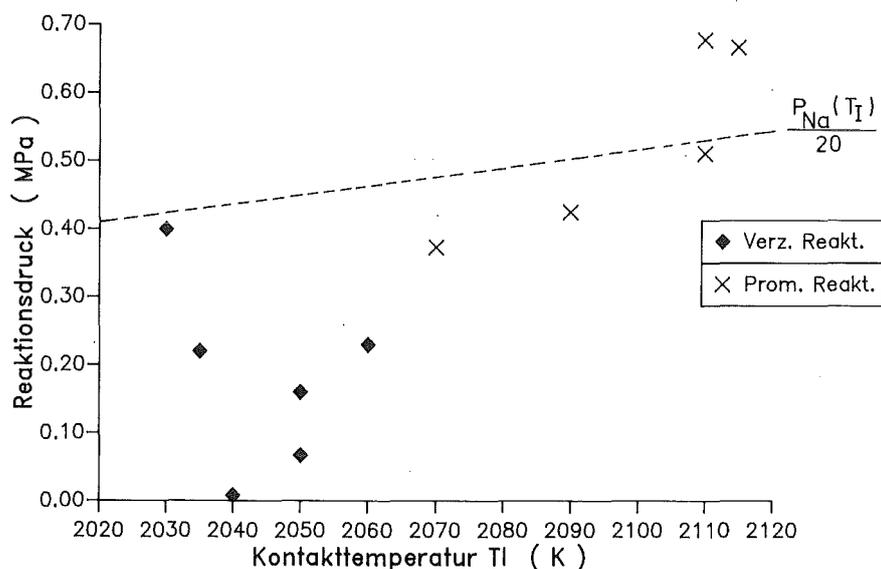


Abb. 4.19 Reaktionsdruck der getriggerten Wechselwirkungen als Funktion der Kontakttemperatur, DA-oben

diesem Diagramm ein entsprechend korrigierter Natriumdampfdruck, als Funktion der Kontakttemperatur, zum Vergleich eingetragen. Wie man aus der Darstellung deutlich erkennen kann, entspricht der Reaktionsdruck etwa dem Natriumdampfdruck.

In Abb. 4.20 wird der Zusammenhang zwischen Reaktionsverzögerung und Kontakttemperatur gezeigt. Auch in dieser Darstellung ist deutlich die Kontakttemperaturgrenze zwischen den verzögerten und prompten, getriggerten Wechselwirkungsereignissen zu erkennen. Der Nachweis einer prompten Reaktion bedeutet, daß in einem Kontakttemperaturbereich von größer  $T_I = 2060$  K ein relativ kleiner

Triggerdruck ausreicht, um eine prompte Reaktionsdruckverstärkung über den die Reaktion einleitenden Triggerdruckpuls hinaus zu bewirken. Sollte sich dieses am Einzeltropfen gefundene Phänomen in ein im "coarse mixing" befindliches Mehrtropfensystem übertragen lassen, könnte dies zur Klärung der Kohärenz und des Propagationsverhaltens einer Dampfexplosion einen wesentlichen Beitrag leisten. Eine phänomenologische Modellvorstellung hinsichtlich

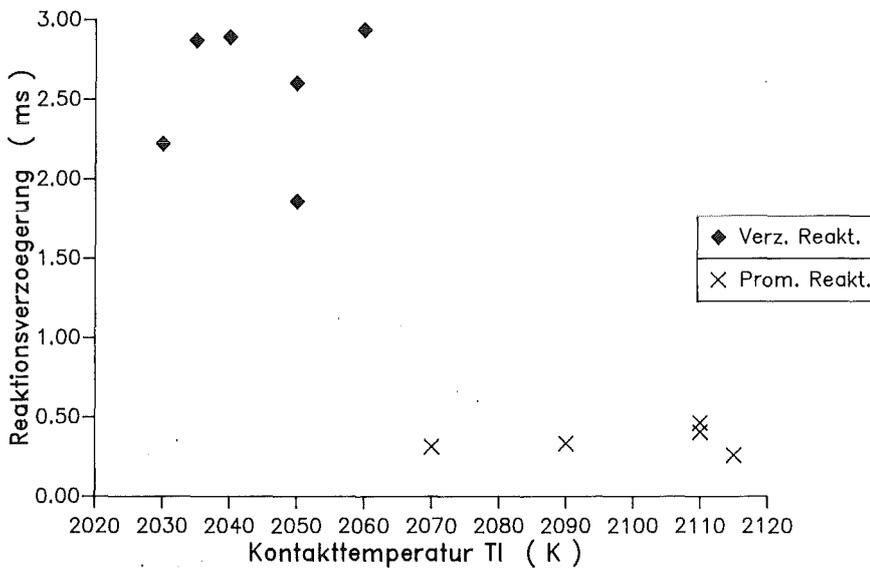


Abb. 4.20 Reaktionsverzögerung als Funktion der Kontakttemperatur des Verdampfungsvorganges in der Kontaktgrenzfläche und dem Wechselwirkungsablauf wird in Kapitel 6.1.4 vorgestellt.

Berücksichtigt man bei der Angabe der Kontakttemperatur die denkbar möglichen, physikalischen Unsicherheiten bezüglich der zugrundegelegten Wärmeübergangskoeffizienten, der Temperaturmessung etc., erhält man, in Analogie zu den Silikonöl-, Na-Pentan Experimenten von Morita /2/, eine erstmals experimentell bestimmte homogene Keimbildungstemperatur (unterer Grenzwert) für Natrium von  $T_{HN} = 2060 \pm 160$  K.

Theoretisch ermittelte Werte für  $T_{HN}$  liegen in Abhängigkeit der

jeweiligen Bestimmungsmethode, molekularkinetische oder thermodynamische Ansätze, im Bereich von 2060 K /85/ bis 2310 K /23/.

#### 4.3 Nachuntersuchungen der Fragmente

Die makro- sowie mikroskopische Nachuntersuchung der Fragmente spielte bei der Interpretation der Versuche eine wesentliche Rolle. Entsprechend dem Siedezustand, unterkühltes Blasensieden oder Filmsieden, haben die Fragmente folgendes Aussehen.

- Fragmente aus der Reaktion im unterkühlten Blasensieden ( $T_I \leq 2000 \text{ K}, \Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$ ):

Die Fragmente bestehen zumeist aus kleinen, zerbrochenen, krustenförmigen Partikeln mit scharfen Kanten. Je nach Kontakttemperatur ist ein geringer Anteil der Fragmente kugel- bzw. tropfenförmig erstarrt. Die Struktur der Fragmente deutet darauf hin, daß die Fragmentation aufgrund thermischer Spannungen in der Kruste stattgefunden hat. Die kleinen, runden, z.T. mit Erstarrungslunker vorhandenen Fragmente, repräsentieren den noch während der Wechselwirkung schmelzflüssigen Anteil des Aluminiumoxids.

- Fragmente aus der Reaktion im Filmsieden ( $T_I \geq 2000 \text{ K}, \Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$ )

Da der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen im Filmsieden einer deutlich geringeren Abkühlgeschwindigkeit als im unterkühlten Blasensieden unterlag, konnte er in zwei nichtgetriggerten Experimenten zu einem Ellipsoid mit ausgeprägtem Luncker erstarren, siehe Abb 4.3 .

Thermohydraulische Effekte am Tropfen bewirkten jedoch in den übrigen Fällen den Dampffilmzusammenbruch, bevor der Tropfen gänzlich erstarrt war. In solchen Versuchen findet man bei Kontakttemperaturen unterhalb 2060 K zwei Fragmenttypen: Reste von

zusammenhängenden Krusten und feinpulvrige, runde Fragmente. Oberhalb einer Kontakttemperatur von 2060 K wurden nur noch feinstfragmentierte Partikel ohne Schalen zurückgewonnen. Die Fragmente bestanden in diesem Temperaturbereich ausschließlich aus sehr kleinen, runden und zum Teil schaumig erstarrten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Partikeln.

Makroaufnahmen und REM-Aufnahmen ausgewählter Versuche zeigen die Fragmente im Detail, siehe hierzu Appendix F.

#### 4.4 Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse

In den vorhergehenden Abschnitten wurden die typischen Wechselwirkungsabläufe der Aluminiumoxid-Natrium-Tröpfchenexperimente vorgestellt. Es wurden Experimente sowohl im unterkühlten Blasensieden als auch im Filmsieden durchgeführt. Die beobachteten Wechselwirkungen im unterkühlten Sieden waren ausschließlich selbstgetriggert, wogegen im Filmsiedezustand getriggerte und auch selbsttriggernde Wechselwirkung vorgekommen sind. Es folgt eine Zusammenfassung der wichtigsten Beobachtungen aus den Experimenten:

- Die Grenze zwischen unterkühltem Blasensieden und Filmsieden liegt im System Aluminiumoxid-Natrium bei einer Kontakttemperatur von  $T_I \cong 2000 \text{ K}$ ,  $\Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$ .
- Die Wechselwirkungen im unterkühlten Blasensieden sind stets selbsttriggernd und erfolgen nach einer kurzen Tropfenverweilzeit im Natrium,  $t \leq 30 \text{ ms}$ .
- Nach Erreichen einer Kontakttemperatur von  $T_I \geq 2000 \text{ K}$ ,  $\Delta T_{\text{sub}} \leq 200 \text{ K}$ , wurde in einigen Experimenten die Wechselwirkung gezielt durch einen Triggerdruckpuls eingeleitet. In diesen

Experimenten treten sowohl verzögerte als auch prompte Wechselwirkungen auf. Eine prompte, druckverstärkende Reaktion erfolgt nach Erreichen einer Kontakttemperatur von  $T_I = 2060 \text{ K}$ .

- In Analogie zu den Ergebnissen von Morita /2/ liegt die erstmals experimentell ermittelte, homogene Keimbildungstemperatur  $T_{HN}$  des Natriums bei  $2060 \text{ K} \pm 160 \text{ K}$ . Oberhalb einer Kontakttemperatur von  $T_I = 2100 \text{ K}$ ,  $\Delta T_{\text{sub}} = 150 \text{ K}$  erfolgen z.T. wieder energetische, selbsttriggernde Wechselwirkungen. Diese Tatsache weist auf die Existenz einer thermischen Wechselwirkungszone, "TIZ", hin, in deren Temperaturbereich sich spontane Reaktionen ereignen können.
- Nachuntersuchungen der wiedergewonnenen Fragmente aus den Versuchen ergaben folgende Ergebnisse:

Unterkühltes Sieden: Scharfkantige Bruchstücke von Krusten, nur wenig runde  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Partikel

Filmsieden: Schalenförmig zusammenhängende Krusten, viele kleine, runde Partikel, z.T. auch schaumig erstarrtes  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

In Tabelle 1 Appendix A, sind die wichtigsten Versuchsparameter der durchgeführten Experimente sowie die thermophysikalischen Eigenschaften der verwendeten Materialien zusammengestellt.

## 5. THEORETISCHE ARBEITEN

### 5.1 Berechnung der minimalen Filmsiedetemperatur und Anwendung auf die experimentellen Ergebnisse

Eine Vorvermischung größerer Massen Oxidschmelze mit Kühlmittel setzt eine anfängliche Isolierung der Komponenten im Filmsiedezustand voraus. Neben einem einzigen Filmsiedeexperiment in Natrium mit einer Tantalkugel /49/, ist man bis heute auf theoretische Voraussagen der minimalen Filmsiedebedingungen an oxidischen Oberflächen angewiesen. Für das System  $\text{UO}_2$  - Natrium verwendet man im allgemeinen die von Henry /55/ angegebene Korrelation, die als einzige Theorie den qualitativen Verlauf von  $T_{\min}$  als Funktion der Kühlmitteltemperatur wiedergibt. Ladisch /52/ untersuchte die minimalen Filmsiedebedingungen auf keramischen und metallischen Heizern in Wasser. Er stellte fest, daß die Filmsiedetemperatur  $T_{\min}$  linear mit der Fluidunterkühlung zunimmt, und daß  $T_{\min}$ , unter Voraussetzung gleicher Fluidtemperaturen, bei einem keramischen Heizer deutlich (100-200 K) höher liegt als bei einem metallischen.

Da im Bereich der Reaktorsicherheit, besonders in Verbindung mit Dampfexplosionen, vielfach die Henry-Korrelation zur Voraussage der minimalen Vorvermischungstemperatur diskutiert wird, soll im folgenden die Gültigkeit und Anwendbarkeit auf die hier vorgestellten experimentellen Ergebnisse überprüft werden.

Die Henry-Korrelation für  $T_{\min}$  lautet:

$$T_{\min, H} = T_{\min, B} + b (T_{\min, B} - T_K) \quad (5-1)$$

mit

$$b = \left\{ \frac{(\rho c_p \lambda)_K^{1/2}}{(\rho c_p \lambda)_H^{1/2}} \cdot \frac{h_{fg}}{(T_{\min, B} - T_{\text{sat}}) c_{pH}} \right\}^{0,6} \quad (5-2)$$

$T_{\min,B}$  ist die "DFB" (departure of film boiling) Temperatur nach Berenson:

$$T_{\min,B} = 0,127 \cdot \frac{\rho_{\text{vap}} h_{\text{fg}}}{\lambda_{\text{vap}}} \left\{ \frac{g(\rho_{\text{liq}} - \rho_{\text{vap}})}{(\rho_{\text{liq}} - \rho_{\text{vap}})} \right\}^{2/3} \cdot \left\{ \frac{\sigma}{g(\rho_{\text{liq}} - \rho_{\text{vap}})} \right\}^{1/2} \cdot \left\{ \frac{\mu_{\text{vap}}}{g(\rho_{\text{liq}} - \rho_{\text{vap}})} \right\}^{1/3} + T_{\text{sat}} \quad (5-3)$$

$T_{\min,B}$  nimmt linear mit abnehmender Kühlmitteltemperatur zu und hängt nur von den Stoffeigenschaften des Kühlmittels ab. Für Natrium bei Sättigungstemperatur und unter Atmosphärendruck beträgt  $T_{\min,B} = 1198$  K. Die Stoffdaten, die in den Faktor  $b$  eingehen, sind temperaturabhängig. Henry gibt nicht an, bei welcher Temperatur die Stoffdaten berechnet werden sollen. Hier wird der Wert von  $b$ , wie Ladisch /52/ vorgeschlagen hat, bei der Kontakttemperatur  $T_I$  zwischen dem Oxid und dem Flüssigmetall (im Sättigungszustand) berechnet. Dies ist eine konservative Abschätzung, da  $b$  bei der so berechneten Kontakttemperatur kleiner ist als bei einer mittleren Temperatur und  $T_{\min,H}$  nach Gleichung (5-1) dadurch ebenfalls kleiner wird.

$$T_I = \frac{(T_{\min,H}) T_{\text{Na}} = T_{\text{sat}} + \beta \cdot T_{\text{sat}}}{1 + \beta} \quad (5-4)$$

mit

$$\beta = \frac{(\rho_{\text{cp}} \lambda)_K^{1/2}}{(\rho_{\text{cp}} \lambda)_H^{1/2}}$$

Nach numerischer Auswertung von  $\beta$  und  $b$  bei verschiedenen Temperaturen wird ersichtlich, daß die Kontakttemperatur  $T_I$  nahezu unabhängig davon ist, bei welcher Temperatur die Werte von  $\beta$  und  $b$  berechnet werden. Für das System  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Na ergibt sich ein Wert für  $b$  von 5,8 und für  $\text{UO}_2$ -Na von  $b = 16,2$ .

In der Abb. 5.1 wird in Abhängigkeit der Natriumtemperatur die

minimale Wandtemperatur  $T_{\min,H}$  nach Henry für die Materialkombinationen  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und  $\text{UO}_2$  in Natrium dargestellt.

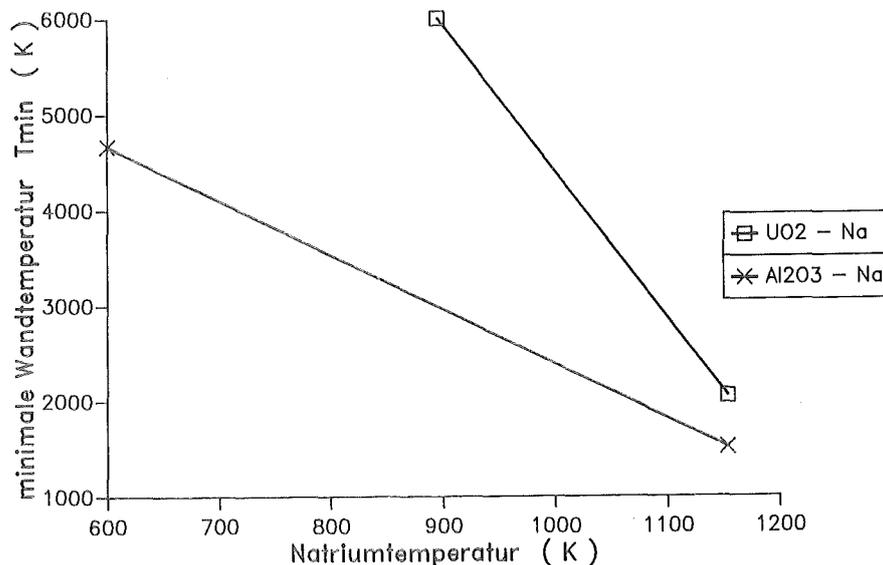


Abb. 5.1 Minimale Wandtemperatur nach Henry/55/ für  $\text{UO}_2$  und  $\text{Al}_2\text{O}_3$  als Funktion der Natriumtemperatur,  $p_u=0.1\text{MPa}$

Experimentelle Ergebnisse von Ladisch /52/ mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -, Mo-Zylindern in Wasser zeigten, daß bei kleinen Wasserunterkühlungen Kontakte zwischen der heißen Wand und des Kühlmittels schon lange vor dem Filmzusammenbruch häufig stattgefunden haben. Ladisch schließt daraus, daß bei kleinen Unterkühlungen der relativ dicke Dampffilm aufgrund von hydrodynamischen Instabilitäten sehr leicht instabil wird, siehe auch Hsieh /56/, /57/, und, daß der Filmzusammenbruch erst dann stattfinden kann, wenn der Wärmefluß, der unmittelbar nach dem Kontakt entsteht, kleiner als ein Grenzwert ist, über dem Filmsieden wieder hergestellt werden kann. Bei großer Fluidunterkühlung wird der Dampffilm dünner und hydrodynamischen Instabilitäten gegenüber stabiler, siehe Toda et al./63/. In diesem Fall sinkt die Wandtemperatur unter den Wert, bei dem der Wärmefluß bei direktem Kontakt gleich dem Grenzwert  $T_{\min}$  ist. Sobald der Dampffilm destabilisiert wird (z.B. Tig-

gerung), führt der erste Kontakt zum Filmzusammenbruch. Kurzzeitige Phasengrenzfläche-Wand-Kontakte werden in der Henry-Korrelation bei kleinen Unterkühlungen berücksichtigt, da diese Korrelation im Grunde genommen nur eine Erweiterung der Berenson-Gleichung (Filmsiedeexperimente fanden stets im Sättigungszustand statt) darstellt /58/. Dies bedeutet, daß bei kleiner Unterkühlung die Henry-Korrelation den Zusammenhang zwischen minimaler Wandtemperatur und Fluidunterkühlung relativ gut wiedergibt. Eine vorbehaltlose Extrapolation dieser Korrelation zu höheren Unterkühlungen erscheint jedoch fragwürdig, da der Strahlungsaustausch zwischen der heißen Wand und der Phasengrenzfläche, besonders im Bereich hoher Unterkühlungen und dadurch bedingten hohen Wandtemperaturen, unberücksichtigt bleibt. Korrigiert man nun die Henry-Korrelation hinsichtlich des Strahlungsanteiles beim Wärmeübergang, siehe Appendix C, so erkennt man, daß mit zunehmender Unterkühlung die minimale Wandtemperatur deutlich unter der, mit Hilfe

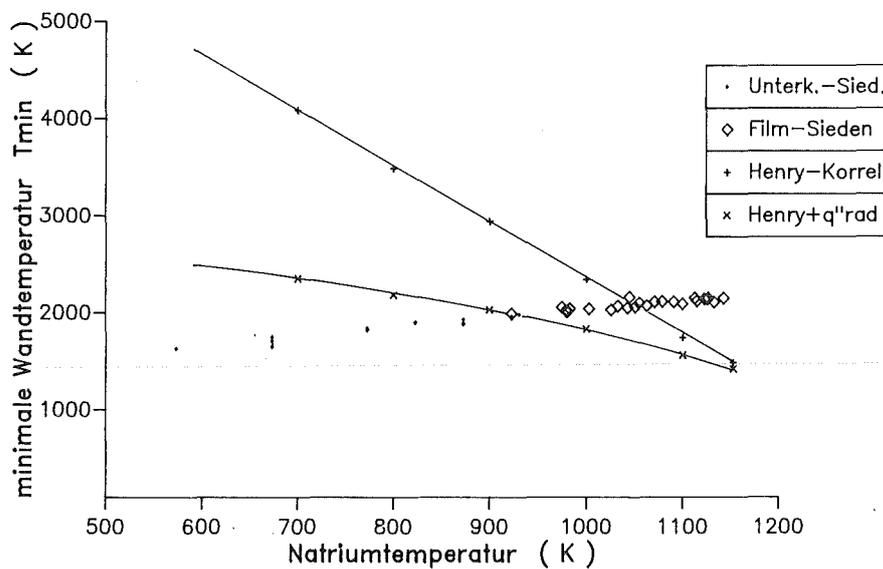


Abb. 5.2 Minimale Filmsiedetemperatur (Henry-Korrelation) als Funktion der Natriumtemperatur mit und ohne Berücksichtigung der Strahlung; experimentelle Ergebnisse der  $Al_2O_3$ -Versuche,  $p_u=0.1$  MPa

der einfachen Henry-Korrelation ermittelten liegt.

Abb. 5.2 zeigt sowohl die unkorrigierte als auch strahlungskorrigierte Henry-Gleichung für die Materialpaarung  $\text{Al}_2\text{O}_3$  - Natrium. Ergänzt man Abb. 5.2 mit den experimentellen Ergebnissen, so wird deutlich, daß der experimentell ermittelte Filmsiedebeginn bei relativ hohen Natriumunterkühlungen ( $\Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$ ) sehr gut mit dem theoretisch gefundenen Wert der korrigierten Henry-Korrelation übereinstimmt.

Die in der Abb. 5.2 eingetragenen experimentellen Ergebnisse und der Verlauf der korrigierten Henry-Korrelation zeigen übereinstimmend, daß bei einer Fluidunterkühlung von  $\Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$  und einer Kontakttemperatur von  $T_{\text{I}} = 2000 \text{ K}$  Filmsieden im Natrium erreicht wird. Demgegenüber sagt die unkorrigierte Henry-Korrelation bei dieser Unterkühlung eine etwa 30 % höhere Wandtemperatur voraus. Die erstmals mit einem Metalloxid in Natrium gewonnenen

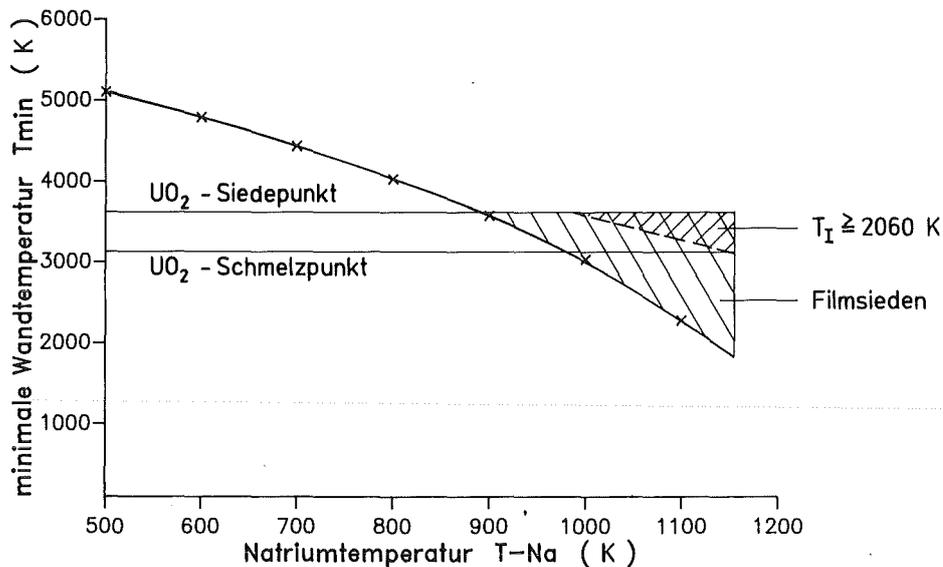


Abb. 5.3 Minimale Filmsiedetemperatur (korrigierte Henry-Korrelation) als Funktion der Natriumtemperatur im System  $\text{UO}_2$ -Natrium, einfach schraffiert: Filmsieden, doppelt schraffiert:  $T_{\text{I}} = 2060 \text{ K} \approx T_{\text{HN}}$ , Natrium,  $p_{\text{U}} = 0.1 \text{ MPa}$

Filmsiedeergebnisse lassen nunmehr vermuten, daß bei der reaktorrelevanten Materialpaarung,  $UO_2$  in Natrium, ähnliche Filmsiedebedingungen zwischen den Komponenten zu erwarten sind.

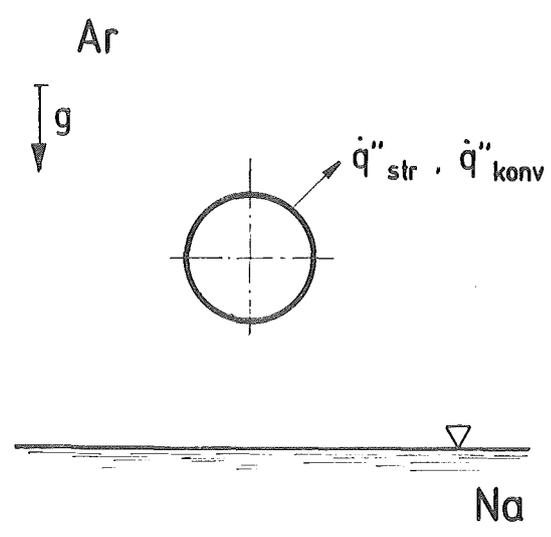
Abb. 5.3 zeigt den mit Hilfe der strahlungskorrigierten Henry-Gleichung ermittelten Zusammenhang zwischen der minimalen Filmsiedetemperatur und der Natriumtemperatur im System  $UO_2$ -Natrium. Das einfach schraffierte Gebiet gibt den Temperaturbereich an, in dem Filmsieden zu erwarten ist, das doppelt schraffierte Gebiet den Kontakttemperaturbereich, in dem  $T_I > T_{HN}$  ist. Diese konservative Abschätzung der dampfexplosionsrelevanten Gebiete für die Stoffpaarung  $UO_2$ -Natrium zeigt, daß nur unter sehr extremen, thermischen Randbedingungen das Fauske Kriterium erfüllt ist.

## 5.2 Nachrechnungen zum Krustenwachstum und Bestimmung des Wärmeübergangskoeffizienten für das Natrium-Filmsieden als Funktion der Unterkühlung

Wie in Kapitel 4.3, Nachuntersuchung der Fragmente, gezeigt wurde, bilden sich bei der Abkühlung des  $Al_2O_3$ -Tropfens im Filmsiedezustand zusammenhängende Krusten im Bereich der unteren Tropfenhälfte. Nach mikroskopischer (REM) Auswertung der Fragmente konnte die jeweilige Krustendicke und Größe bestimmt werden. Von drei Experimenten verschiedener Na-Unterkühlung wurde mit Hilfe eines mehrdimensionalen, instationär rechnenden Wärmeleitungscode (HEATING 6) /77/, eine Nachrechnung des Krustenwachstums vorgenommen. Die zweidimensionale Modellierung des Rotationsellipsoiden erfolgte in Zylinderkoordinaten durch Übereinanderschichtung von sehr dünnen Zylinderscheiben unterschiedlicher Radien, siehe Abb. 5.5.

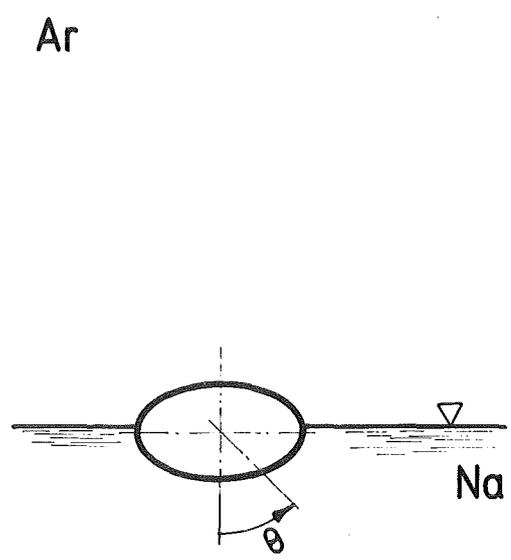
Bei der Berechnung des Wärmeüberganges im Filmsieden wurde folgende Modellvorstellung zugrundegelegt:

- Der  $Al_2O_3$ -Tropfen fällt nach der Erschmelzung im Strah-



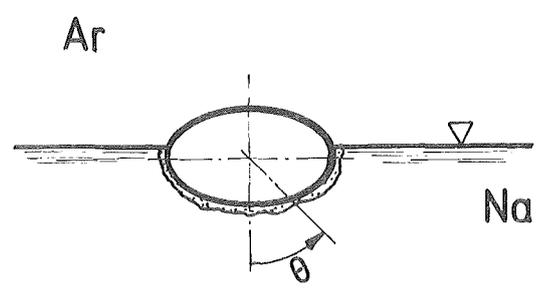
Tropfen fällt durch  
Ar/H<sub>2</sub> - Atmosphäre

a)



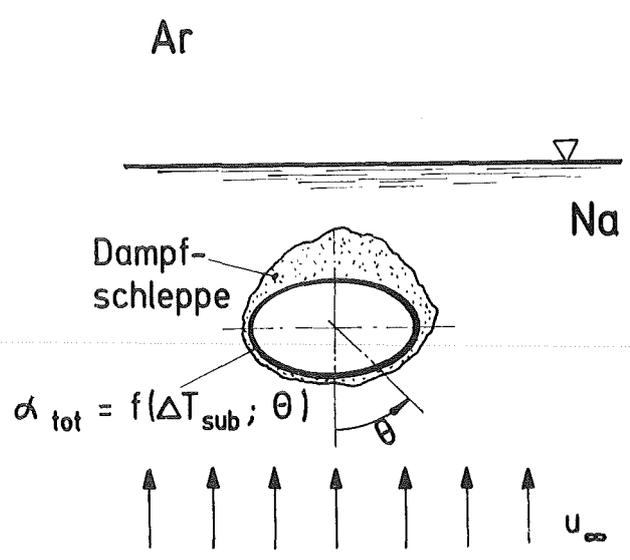
Tropfen taucht ins  
Natrium ein

b)



wenn  $T_1 \gtrsim 2000$  K,  
Bildung eines zusammen-  
hängenden Dampffilms

c)



d)

Abb. 5.4 Modellvorstellung zur Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten für das Natrium-Filmsieden

lungsofen, unter der Annahme einer anfänglich isothermen Temperaturverteilung, durch die Argon/H<sub>2</sub>-Atmosphäre. Wärmeverluste infolge Strahlung und Konvektion werden berücksichtigt, Abb. 5.4a.

- Beim Auftreffen des Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Tropfens auf den Natriumspiegel wird der Tropfen aufgrund des Weber-Effekts zu einem Rotationsellipsoiden verformt. Der Verformungsgrad wurde anhand von Nachuntersuchungen an einem erstarrten, nicht fragmentierten Tropfen bestimmt, siehe Abb. 5.4 b.
- Bei der Festlegung der thermischen Anfangsbedingungen im Natrium wird angenommen, daß die Oberflächentemperatur der unteren Hälfte des Ellipsoids gleich der berechneten Kontakttemperatur (Gleichung 2.2) entspricht. Überschreitet die Kontakttemperatur den Wert  $T_I \approx 2000 \text{ K}$ ,  $\Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$ , so bildet sich unmittelbar nach dem Kontakt ein zusammenhängender Dampffilm im Bereich der unteren Tropfenhälfte. Während des Eintauchvorganges pflanzt sich der Dampffilm bis zum hinteren Staupunkt fort, Abb. 5.4 c-d.
- Nach dem Eintauchen ist der Tropfen rundum von einem Dampffilm umgeben, wobei die Dampffilmdicke am vorderen Staupunkt ihr Minimum besitzt und mit größer werdendem Winkel  $\theta$  zunimmt. Im Bereich des hinteren Staupunktes bildet sich eine Dampfschleife, in der sich sowohl Natriumdampf, als auch beim Eintauchvorgang mitgeschlepptes Inertgas befindet. Aufgrund dieser angenommenen und in den Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Wasser Experimenten /39/ bestätigten, zweidimensionalen Dampffilmdickenverteilung, wird im Rechencode in iterativer Vorgehensweise der Wärmeübergangskoeffizient in Abhängigkeit des Winkels  $\theta$  bestimmt, Abb. 5.4 d.

Von drei Experimenten mit unterschiedlichen thermischen Rand- und Anfangsbedingungen, wurde eine Nachrechnung des Krustenwachstums unter Filmsiedebedingungen vorgenommen, siehe Tabelle 5.1.

Versuch Nr.	T-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> [K]	T-Na [K]	T <sub>I</sub> [K]	t-Na [ms]	δ <sub>K</sub> [mm]
V 24	2993	979	2020	100	0,39
V 28	3100	973	2050	75	0,25
V 31	2900	1026	2030	50	0

Tabelle 5.1 Anfangs- und Randbedingungen der nachgerechneten Experimente

Bei den Nachrechnungen der Krustendicke wurde wie folgt verfahren:

- Größe und Dicke der Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kruste wurde durch Nachmessungen bestimmt.
- Vor jedem Rechenlauf wurden die Versuchsparameter, z.B. Na-Unterkühlung, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Tropfentemperatur, Verweilzeit im Natrium bis zur Reaktion, in das Rechenprogramm eingegeben.
- Im ersten Rechenlauf wurde ein abgeschätzter Wert für den totalen Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha_{total} = f(\Theta)$  zugrundegelegt.
- In Abhängigkeit vom ersten Ergebnis wird nachfolgend der Wärmeübergangskoeffizient iterativ derart geändert, bis eine Übereinstimmung zwischen gemessener und berechneter Krustendicke besteht. Abb. 5.5 zeigt als Beispiel die Nachrechnung von Versuch V24. Die bei der Abkühlung des Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Tropfens im Natrium entstehenden Isothermenverläufe im Tropfeninnern sind zum Zeitpunkt der

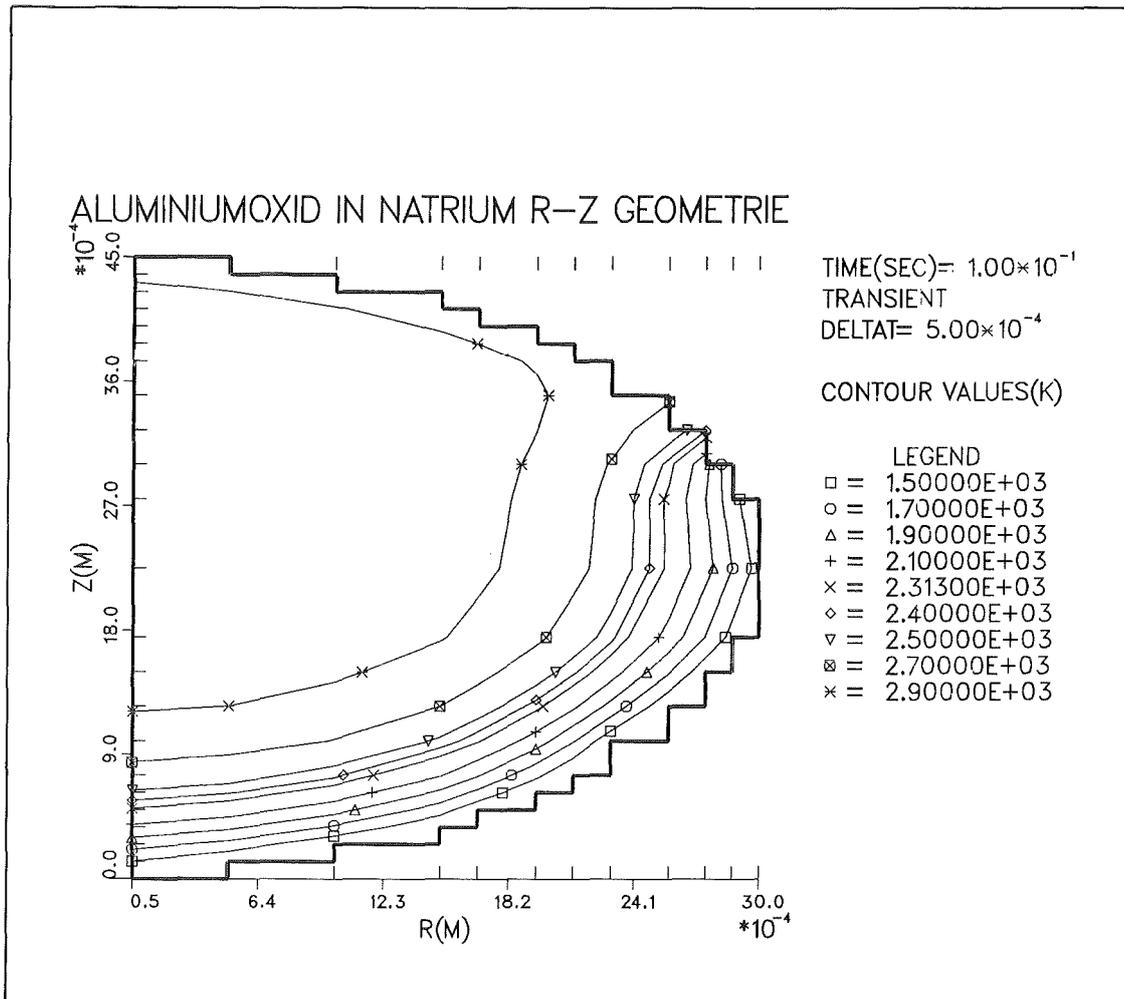


Abb. 5.5 Temperaturverteilung im  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen zum Zeitpunkt der Wechselwirkung, Versuch V24

Wechselwirkung in der Abbildung dargestellt. (Schmelztemperatur von  $\text{Al}_2\text{O}_3$ :  $T_{\text{melt}} = 2313 \text{ K}$ ).

In Tabelle 5.2 werden die iterativ bestimmten, totalen Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit des Winkels  $\theta$  angegeben. Eine gemeinsame Darstellung der bislang ermittelten Wärmeübergangskoeffizienten für das Natrium-Filmsieden als Funktion der Natriumtemperatur zeigt Abb. 5.6.

Versuch Nr.	$\alpha \text{ W/m}^2\text{K}$				
	$0^\circ \leq \theta \leq 35^\circ$	$35^\circ \leq \theta \leq 75^\circ$	$75^\circ \leq \theta \leq 106^\circ$	$106^\circ \leq \theta \leq 125^\circ$	$125^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$
V 24	$5 \cdot 10^4$	$4,5 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^3$	$1 \cdot 10^3$
V 28	$2,7 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^2$	$4 \cdot 10^2$
V 31	$6 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^3$	$4 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^3$	$1 \cdot 10^2$

Tabelle 5.2 Lokale Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit des Winkels  $\theta$

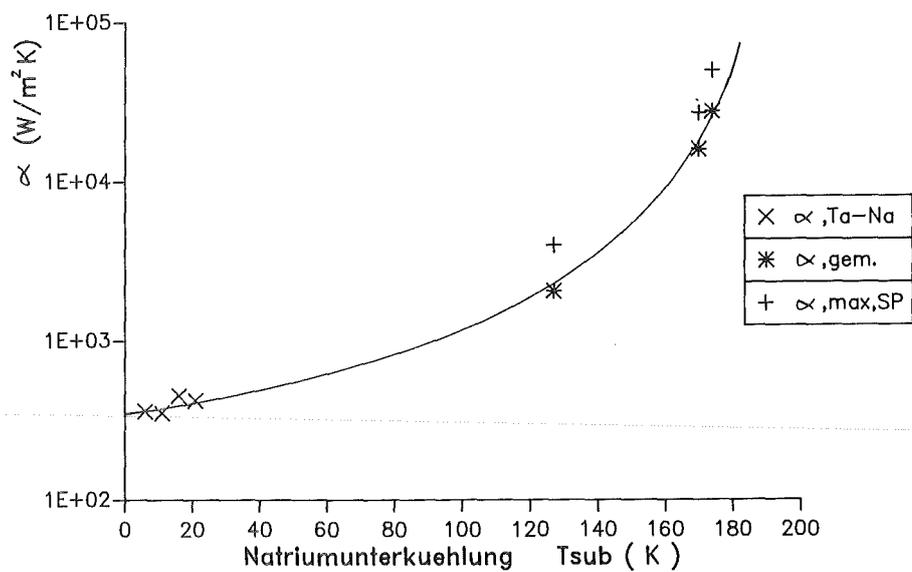


Abb. 5.6 Wärmeübergangskoeffizient für das Na-Filmsieden als Funktion der Natriumtemperatur

In diesem Diagramm sind sowohl die Werte aus den Tantal-Natrium Experimenten von Farahat/49/, als auch die iterativ bestimmten

Wärmeübergangskoeffizienten (WÜK am vorderen Staupunkt, WÜK über die Tropfenoberfläche gemittelt) aus den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Natrium Versuchen gemeinsam dargestellt. Obwohl Farahat bei der Berechnung des Gesamtwärmestroms als treibendes Temperaturgefälle die Wandüberhitzung  $\Delta T_w = T_w - T_{\text{sat}}$  gewählt hat, hier  $\Delta T_{\infty} = T_w - T_{\infty}$ , kann durch Vergleichen der resultierenden Wärmeströme gezeigt werden, daß in dem hier betrachteten Temperaturbereich eine gemeinsame Darstellung der Tantal-Natrium- und  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Natrium Experimente zulässig ist.

$$\alpha_{\Delta T_w} = \alpha_{\Delta T_{\infty}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\Delta T_{\text{sub}}}{T_w - T_{\text{sat}}}} \quad (5-5)$$

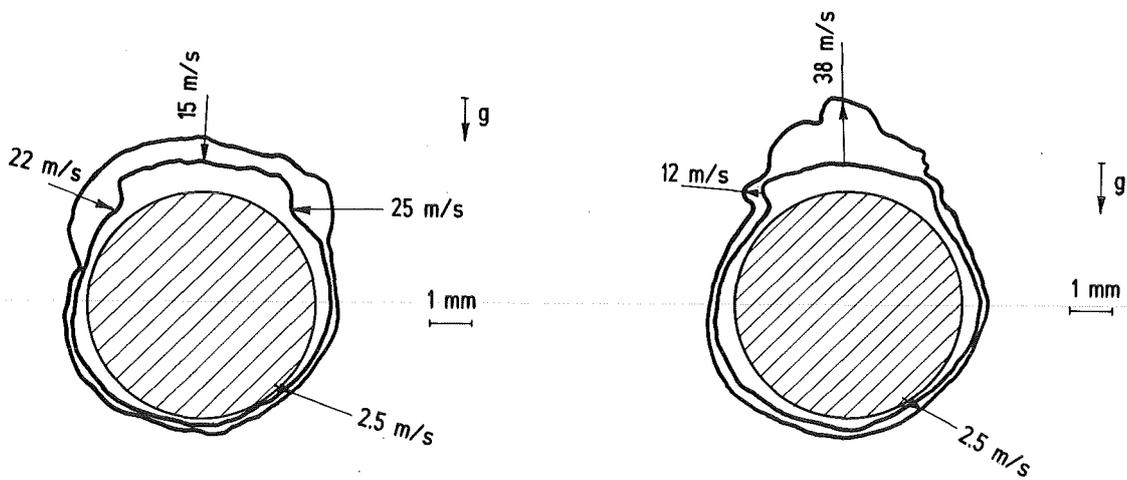
Die numerische Auswertung von Gleichung (5-5) ergibt, daß bei geringer Natriumunterkühlung eine Abweichung der berechneten Wärmeströme von nur wenigen Prozent entsteht.

### 5.3 Nachrechnungen zum getriggerten Dampffilmkollaps um eine Kugel mit Hilfe der Kollokationsmethode

#### - Allgemeine Bemerkungen zu hydrodynamischen Instabilitäten

Hydrodynamische Instabilitäten wie Rayleigh-Taylor (RT-Inst.), Kelvin-Helmholtz-Instabilitäten (KH-Inst.), sowie asymmetrischer Dampfblasenkollaps werden in einigen Dampfexplosionsmodellen als reaktionseinleitende Mechanismen diskutiert /2/, /5/, /4/. Ando /5/ als auch Morita /2/ machten bei der Interpretation ihrer getriggerten Tröpfchenexperimente RT-Instabilitäten an der Dampf-Flüssigkeits-Grenzfläche für die Fragmentation verantwortlich. Nach der Modellvorstellung von Morita bzw. Ando ist die Fragmentation des heißen Tropfens und die reaktionseinleitende Vorvermischung mit der umgebenden Flüssigkeit auf die entstehenden RT-Inst. und den dabei erzeugten hohen Dampfdruckaufbau an den "Direktkontaktstellen" zurückzuführen. Einige ergänzende Bemerkungen

zu diesen Modellvorstellungen, besonders im Hinblick auf eventuell entstehende Oberflächenturbulenzen an der Tropfenoberfläche (Marangoni-Effekt), werden vom Verfasser im Appendix E gemacht. Hydrodynamische Instabilitäten und deren Anwendung in Dampffilmkollapsmodellen um Tropfengeometrien, wurden bisher wegen ihrer komplexen mathematischen Beschreibung nur in eindimensionalen Modellvorstellungen angenähert /2/, /5/. Diese vereinfachten Annahmen stehen jedoch im Widerspruch zu den beobachteten, experimentellen Ergebnissen. Die detaillierte Auswertung des Dampffilmkollapses in Experimenten mit Silikonöl, Na in Pentan /2/ und  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in Wasser /39/ mit Hilfe von Hochgeschwindigkeitsaufnahmen zeigen deutlich, daß die Bewegung der Phasengrenzfläche in Richtung der Tropfenoberfläche beim Dampffilmkollaps keineswegs kugelsymmetrisch erfolgt, sondern zumindest zweidimensionalen Charakter besitzt. Die Abb. 5.7 a)-b) zeigen zum Beispiel die Grenzflächenkonturen eines getriggerten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser Versuchs während der Kompressionsphase (Triggerphase) und der anschließenden Expansionsphase.



a) Kompressionsphase

b) Expansionsphase

Abb. 5.7 Kontur und Geschwindigkeiten der Phasengrenzfläche bei einem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser Experiment /39/

sionsphase /39/. Für einige Phasengrenzflächenpunkte sind die ermittelten Geschwindigkeitsvektoren angegeben.

Mit Hilfe dieser Auswertemethode konnte deutlich gezeigt werden, daß die Grenzflächengeschwindigkeiten sowohl in der Kompressionsphase (Triggerphase) als auch in der Expansionsphase im Bereich der hinteren Dampfschlepe am größten sind. Dies deutet darauf hin, daß es während der Kompression im Bereich des hinteren Staupunktes zu einem hohen Wärmeübergang mit raschem Druckaufbau in der Dampfschicht infolge einer Wechselwirkung gekommen ist. Nur in der Weise läßt sich die hohe Grenzflächengeschwindigkeit von 38 m/s während der Expansionsphase erklären. Weiterhin kann man bei zeitlicher Zuordnung der Hochgeschwindigkeitsaufnahmen mit den Druckaufzeichnungen erkennen, daß der prompte, schon während des Triggerdruckanstiegs entstandene Reaktionsdruck sein Maximum besitzt, wenn das Dampfvolumen in der hinteren Dampfschlepe am kleinsten ist /39/.

Um die zeitabhängige, mehrdimensionale Form und Bewegung einer kollabierenden Dampfblase um einen Schmelzetropfen erstmals numerisch untersuchen zu können, wurde die von Zijl /64/ entwickelte und in Zusammenarbeit mit Chesters und Sluijter /65/ erweiterte Methode der "Globalen Kollokation" angewendet. An den sogenannten Kollokationspunkten der Phasengrenzfläche wird mit Hilfe dieses numerischen Verfahrens /66/, /67/, eine Lösung der nichtlinearen Erhaltungsgleichungen, unter Berücksichtigung der entsprechenden Rand- und Anfangsbedingungen, herbeigeführt. Folgende Annahmen wurden bei der mathematischen Formulierung der Problemstellung getroffen:

- Der kugelsymmetrische Tropfen im Innern der Dampfblase wird wie ein Festkörper behandelt; d.h. eventuelle Rückwirkungen des Dampffilmkollapses auf den Innenkörper bleiben bei diesen Nachrechnungen unberücksichtigt.
- Die Phasengrenzfläche sowie die umgebende Flüssigkeit befinden sich vor der Systemdruckerhöhung in Ruhe.

- Es werden die Gesetzmäßigkeiten der Potentialströmung angewendet, Wirbelfreiheit in der gesamten Flüssigkeit,  $\vec{\omega} = 0$ .
- Bei der Annäherung der Phasengrenzfläche an die Tropfenoberfläche entsteht aufgrund der Kompression ein hoher Dampfdruck im Dampffilm. Dieser Druck wird bei der Berechnung berücksichtigt, und bewirkt einen rückstoßenden Effekt auf die Grenzfläche.

Eine nähere Beschreibung des numerischen Verfahrens, sowie der zugrundegelegten Rand- und Anfangsbedingungen, wird in Appendix D angegeben.

Die Abbildungen 5.8 - 5.13 zeigen die Ergebnisse von Nachrechnungen zum Dampffilmkollapsverhalten um eine Kugel in Wasser. Es werden für bestimmte Zeitpunkte der Kompressionsphase (Triggerphase) die Dampffilmkontur, die Grenzflächengeschwindigkeit sowie der Druck im Dampffilm an den jeweiligen Kollokationswinkeln angegeben, siehe Appendix D. Wenn im Verlauf der Kompressionsphase die Phasengrenze die Kugeloberfläche berührt, wird die Berechnung abgebrochen. Aus programmtechnischen Gründen kann nur die letzte Phasengrenzflächenkontur vor der Kugelkontaktierung im Plot und im Geschwindigkeits- bzw. Druckdiagramm angegeben werden.

In den nachfolgenden Berechnungsbeispielen wurden folgende Randbedingungen zugrunde gelegt:

1 Beispiel: Kugel in Wasser

- Durchmesser der Kugel:  $\phi$  5,0 mm
- Durchmesser der Dampfkavität:  $\phi$  7,5 mm
- Dampffilmdicke am vorderen Staupunkt: 0,5 mm
- Kompressionsdruck: zum Zeitpunkt  $t = 5 \cdot 10^{-6}$  s erfolgt ein Drucksprung von 0,1 auf 0,5 MPa absolut.

Dieses Berechnungsbeispiel diente der Interpretation des in Abb. 5.7 gezeigten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser Versuches. Die Randbedingungen wurden den vorgelegenen Versuchsbedingungen angepaßt.

2 Beispiel: Kugel in Wasser

- Durchmesser der Kugel:  $\phi$  5,0 mm
- Durchmesser der Dampfkavität:  $\phi$  7,5 mm
- Dampffilmdicke am vorderen Staupunkt: 0,5 mm
- Kompressionsdruck: 1.0 MPa ab  $t = 5 \cdot 10^{-6}$  s

Weitere, wichtige Eingabeparameter sind die Dichte der Flüssigkeit  $\rho$ , die Dampfviskosität  $\eta$  und die Oberflächenspannung  $\sigma$  der Flüssigkeit im Sättigungszustand.

Nachrechnungen mit Natrium zeigen ein physikalisch ähnliches Kollapsverhalten wie die Nachrechnungen mit Wasser. Signifikanter

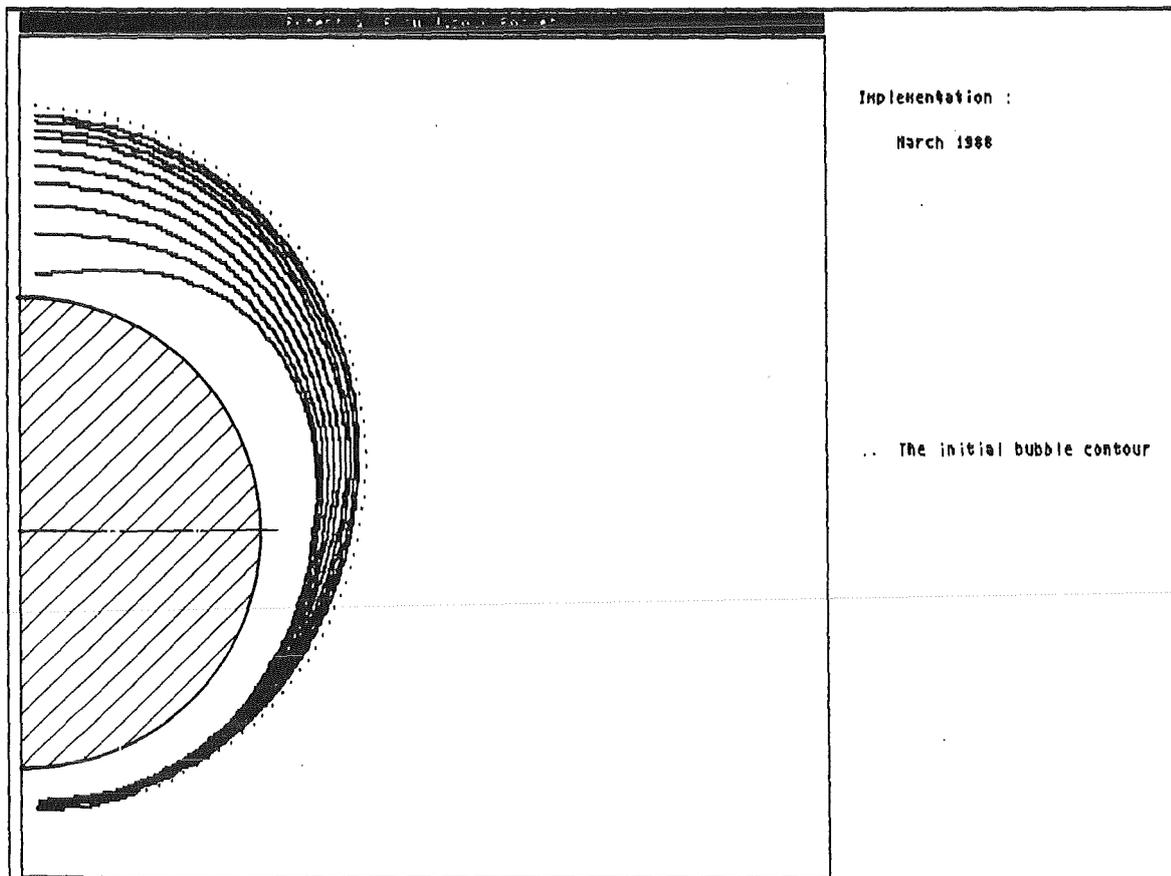


Abb. 5.8 Zeitabhängige Phasengrenzflächenkontur während der Kompressionsphase, Beispiel 1

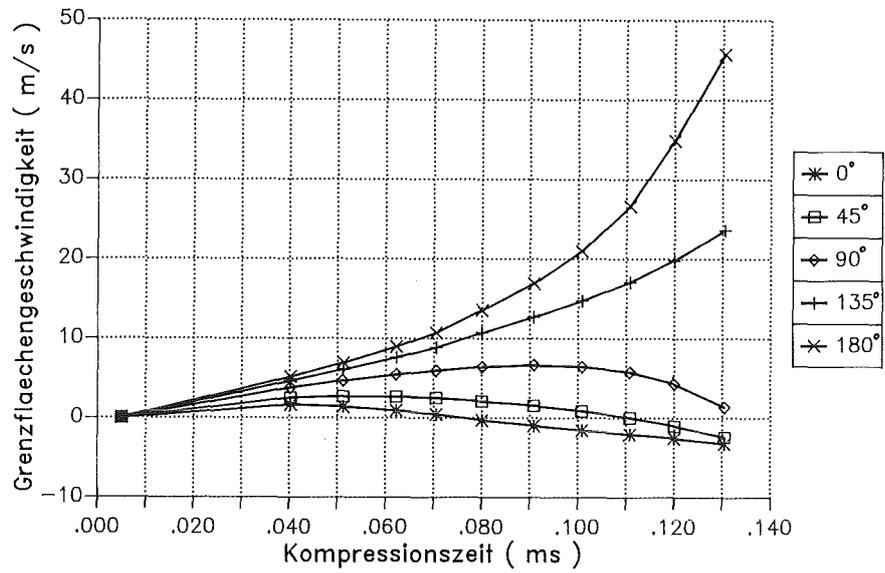


Abb. 5.9 Phasengrenzflächengeschwindigkeit an den Kollokationspunkten in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 1

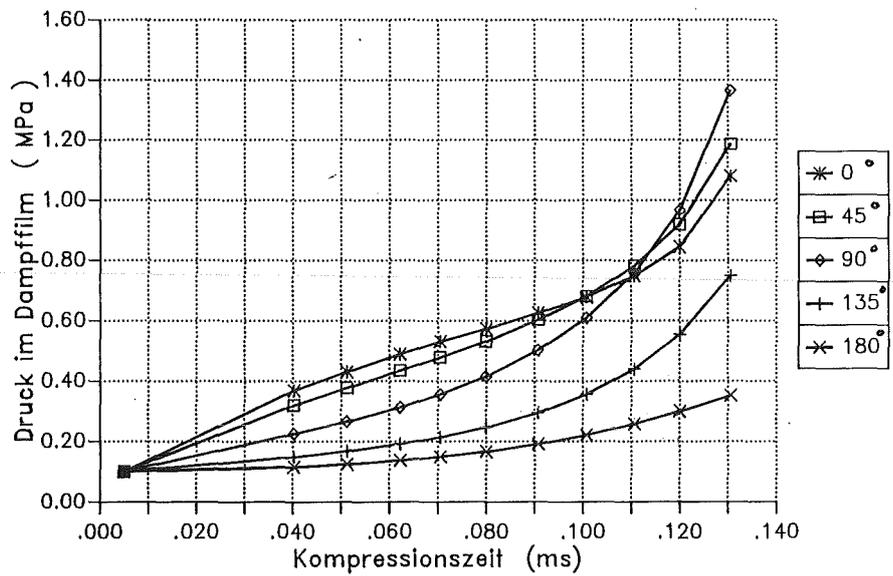


Abb. 5.10 Druckverlauf im Dampfteil in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 1

Unterschied zu den Wasser Versuchen ist der bei gleichem Drucksprung schneller erfolgende Dampffilmkollaps und die damit verbundenen höheren Phasengrenzflächengeschwindigkeiten.

Folgende, neue Erkenntnisse konnten bei der Anwendung dieser Rechenmethode, bezüglich des Dampffilmkollapsverhaltens um eine Tropfengeometrie, gewonnen werden:

- Vergleicht man die experimentellen Ergebnisse des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser-Versuches, siehe Abb.5.7, mit dem Rechenergebnis in Beispiel 1, kann man sowohl eine quantitative als auch eine gute qualitative Übereinstimmung der Phasengrenzflächenbewegung und Geschwindigkeit

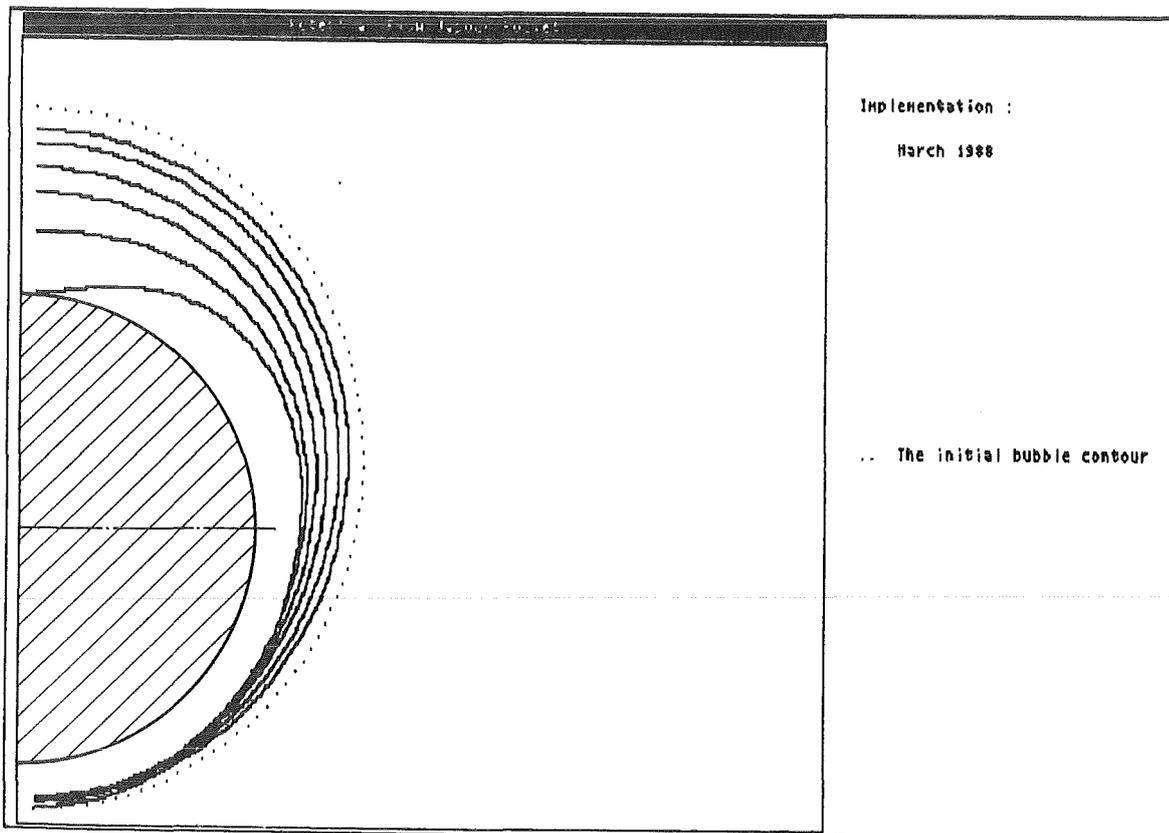


Abb. 5.11 Zeitabhängige Phasengrenzflächenkontur während der Kompressionsphase, Beispiel 2

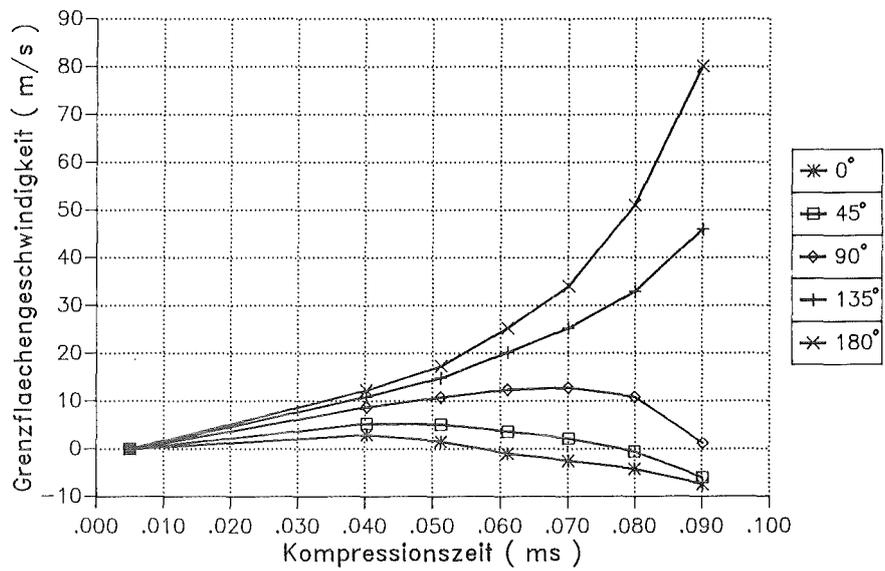


Abb. 5.12 Phasengrenzflächengeschwindigkeit an den Kollokationspunkten in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 2

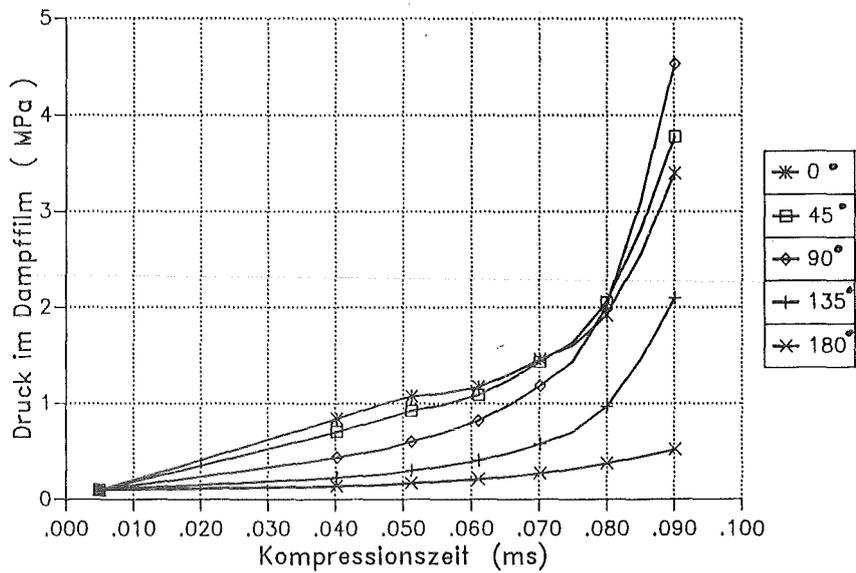


Abb. 5.13 Druckverlauf im Dampfteil in Abhängigkeit der Kompressionszeit, Beispiel 2

keiten für die Kompressionsphase feststellen.

- In den vorgestellten Nachrechnungen ist zu erkennen, daß die Grenzflächengeschwindigkeit im Bereich der hinteren Dampfschleppe am größten ist. Dies bedeutet, daß ein asymmetrisches Dampffilmkollapsverhalten vorliegt.
- Die Kontakte zwischen der Phasengrenzfläche und der Tropfenoberfläche finden bevorzugt im Bereich des hinteren Staupunktes statt.
- Die Grenzfläche wird im Bereich der unteren Kugelhälfte nach etwa der halben Kompressionszeit aufgrund rückstellender Effekte (hoher Dampfdruckaufbau im Film) im Dampffilm von der Kugel wegbeschleunigt.
- Rayleigh-Taylor bzw. Kelvin-Helmholtz Instabilitäten spielen im Vergleich mit der hier nachgewiesenen, hydrodynamischen Instabilität in der Dampfschleppe eine eher untergeordnete Rolle. In beiden Nachrechnungen kämen Rayleigh-Taylor Instabilitäten, aufgrund der hierzu benötigten negativen Grenzflächenbeschleunigung, nur im Bereich der unteren Tropfenhälfte zur Geltung. In den Hochgeschwindigkeitsaufnahmen /39/ ist dagegen deutlich zu erkennen, daß die Fragmentation immer im Bereich der hinteren Tropfenhälfte initiiert wird und somit obige Instabilitäten bezüglich einer Fragmentationseinleitung nahezu irrelevant sind.
- Eine Verdoppelung des Kompressionsdruckes bewirkt, daß für die Kompressionsphase nur  $3/4$  der Zeit benötigt wird, und sich die Phasengrenzflächengeschwindigkeit im hinteren Staupunkt fast um Faktor Zwei erhöht.
- Die Nachrechnungen für Natrium haben ergeben, daß der Dampffilmkollaps schneller erfolgt und im Vergleich mit den Wasser-

versuchen höhere Grenzflächengeschwindigkeiten erreicht werden.

- Berechnungen mit gezielter Variation der Eingabeparameter ergaben, daß die Oberflächenspannung der Phasengrenzfläche und die Größe der Dampfkavitat die wesentlichsten Einflufaktoren hinsichtlich der hier beschriebenen, hydrodynamischen Instabilitat sind.

Mit Hilfe dieses Rechencodes ist man nun erstmals in der Lage, die experimentellen Ergebnisse der Tropfchenexperimente, z.B.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Natrium, theoretische besser interpretieren zu konnen und darberhinaus richtungsweisende Impulse zum Verstandnis des Dampffilmkollapses um eine Tropfengeometrie und der Fragmentationseinleitung zu erlangen. Weiterhin wird in den Nachrechnungen gezeigt, da die kugelsymmetrische Modellierung des Dampffilmkollapses um einen Tropfen oder eine Kugel der physikalischen Realitat nicht entspricht.

## 6. INTERPRETATION DER ERGEBNISSE

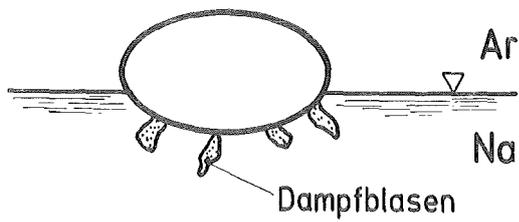
### 6.1 Physikalische Interpretation der Wechselwirkungsmechanismen und Modellvorstellungen zur Fragmentation

In diesem Kapitel werden die experimentellen Befunde mit den theoretischen Überlegungen und Rechenergebnissen in Zusammenhang gebracht, um darauf aufbauend physikalisch fundierte Modelle zu den einzelnen Wechselwirkungsmechanismen erstellen zu können. Da man bei den Experimenten im Natrium auf visuelle Beobachtungstechniken verzichten mußte, war man vor allem bei der Erstellung der Fragmentationsmodelle auf eine genaue Fragmentanalyse und die Auswertung von Hochgeschwindigkeitsaufnahmen aus den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser Experimenten /39/ angewiesen.

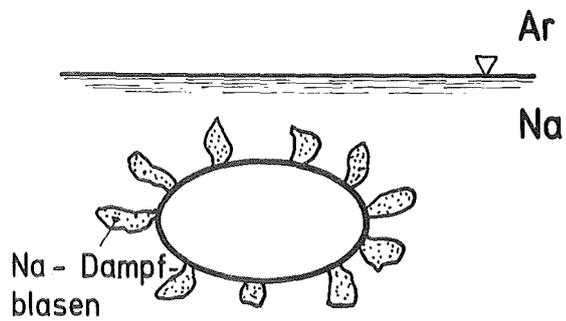
#### 6.1.1 Modell der selbsttriggernden Wechselwirkung im unterkühlten Blasensieden

Bei Natriumunterkühlungen von mehr als 200 K und daraus resultierenden Kontakttemperaturen zwischen dem Tropfen und dem Kühlmittel von kleiner  $T_I = 2000$  K, stellte sich bei den Experimenten unterkühltes Blasensieden ein. Indizien für dieses hochturbulente Siederegime sind die kurzen Verweilzeiten im Natrium bis zur Fragmentation und die relativ geringe Druckausbeute während der Wechselwirkung. Diese Tatsache weist möglicherweise darauf hin, daß während der Wechselwirkung nur wenig schmelzflüssiges  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mit dem Natrium in Kontakt getreten, und es aufgrund der vorgelegenen Temperaturen zu keiner explosiven Verdampfung (homogene Keimbildungstemperatur wurde während des Kontaktes nicht erreicht) gekommen ist. In den Abb. 6.1.1 a) - f) wird auf der Grundlage der experimentellen Ergebnisse eine Folge von Skizzen gezeigt, die den Wechselwirkungsablauf im Blasensieden beschreiben.

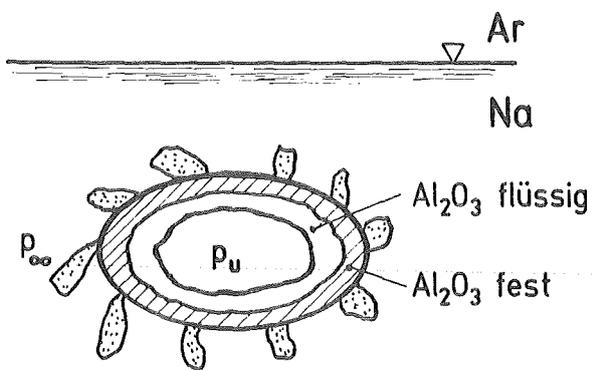
Abb. 6.1.1.a) - b): Nach dem Eintauchvorgang findet um den gesamten Tropfen der Wärmeübergang im unterkühlten Blasensieden statt.



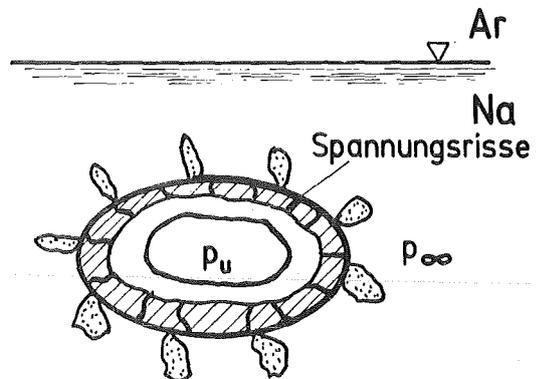
a) Eintauchen ins Natrium



b) heftiges Übergangssieden, subcooled boiling

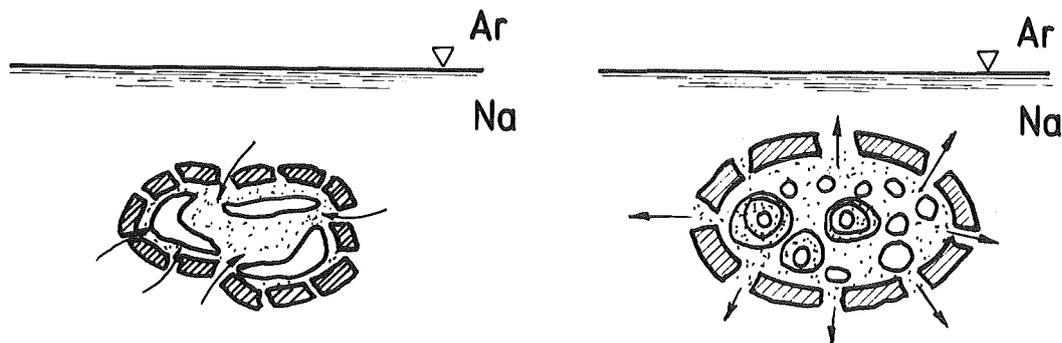


c) Krustenbildung; Unterdruck im Tropfen, da  $p_u < p_\infty$



d) mechanische und thermische Beanspruchung der Kruste

Abb. 6.1.1 a) - d) Modellvorstellung der Wechselwirkung im unterkühlten Blasensieden



e) Krustenaufplatzen und Einströmen von Natrium

f) Natrium reagiert mit dem noch schmelzflüssigem  $\text{Al}_2\text{O}_3$

Abb. 6.1.1 e) - f) Modellvorstellung der Wechselwirkung im unterkühlten Blasensieden, (Fortsetzung)

Abb. 6.1.1 c): Der damit verbundene hohe Wärmeübergang verursacht eine rasche Erstarrung der äußeren Tropfenoberfläche und ein kontinuierliches Anwachsen der Kruste. Da beim  $\text{Al}_2\text{O}_3$  während des Phasenwechsels flüssig/fest eine Dichteänderung von mehr als 20 % auftritt, wird sich aufgrund des Volumenschwundes ein Unterdruck im Tropfeninnern aufbauen.

Abb. 6.1.1 d): Thermische Beanspruchungen in der Aluminiumoxidkruste werden nach einer sehr kurzen Erstarrungsphase die Fragmentation einleiten. Eine analytische Vorausberechnung der maximal erreichbaren Krustendicke ist, aufgrund der unzureichend erfaßbaren, komplexen Ribbildungsvorgänge, nur schwer durchzuführen. Vorhandene, theoretische Modelle bezüglich dieser Thematik sind wegen der physikalisch ungenauen Nachbildung der vorliegenden Rand- und Anfangsbedingungen (z.B. keine Berücksichtigung der Dichteänderung während der Erstarrung, kugelsymmetrische Modellierung der bruchmechanischen Gleichungen) zu vereinfacht formuliert /44/, /45/, /46/.

Abb. 6.1.1 e) - f): Nach dem Aufbrechen der Kruste wird aufgrund

des vorhandenen Druckunterschiedes Natrium in das Tropfeninnere eindringen und mit dem noch schmelzflüssigen  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in thermische Wechselwirkung treten. Je mehr  $\text{Al}_2\text{O}_3$  noch schmelzflüssig ist, umso energetischer wird die Wechselwirkung ablaufen. In den Abb. 4.6 und 4.7 ist deutlich erkennbar, daß mit größer werdender Kontakttemperatur und geringerer Na-Unterkühlung ein leichtes Ansteigen des Reaktionsdruckes zu beobachten ist. Bei der Fragmentanalyse fällt auf, daß mit steigender Kontakttemperatur zunehmend kleinere, runde Partikel zurückgewonnen werden. Dies bedeutet, daß zum Zeitpunkt der Wechselwirkung mehr schmelzflüssiges  $\text{Al}_2\text{O}_3$  zur Verfügung gestanden hat.

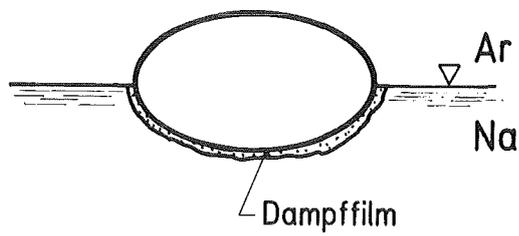
#### 6.1.2 Modell der selbsttriggernden Wechselwirkung im Filmsiedezustand

Modell A: Wechselwirkung bei hoher Natriumunterkühlung,  $\Delta T_{\text{sub}} \geq 150 \text{ K}$

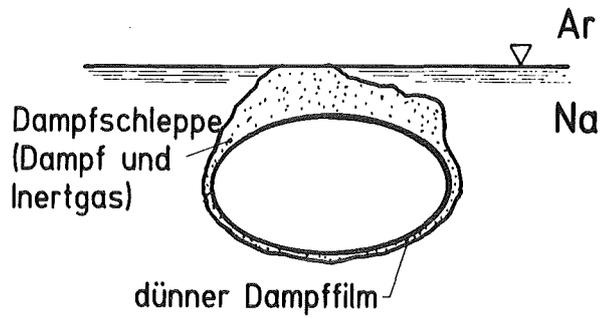
Nach Erreichen einer Kontakttemperatur von  $T_I = 2000 \text{ K}$  und Natriumunterkühlungen von kleiner  $200 \text{ K}$ , befindet sich der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen im Filmsieden. Kennzeichnend für diese Wechselwirkungen sind die längeren Verweilzeiten im Natrium und die höheren Reaktionsdrücke, siehe Kapitel 4.2.2.

Abb. 6.1.2 a) - b): Nach dem Eintauchen ins Kühlmittel bildet sich ein zusammenhängender Dampffilm um den Schmelzetropfen. Weiterhin ist zu erwarten, daß im Bereich der hinteren Dampfschleppe nichtkondensierbares Gas während des Eintauchvorganges ins Natrium mitgeschleppt wird /83/.

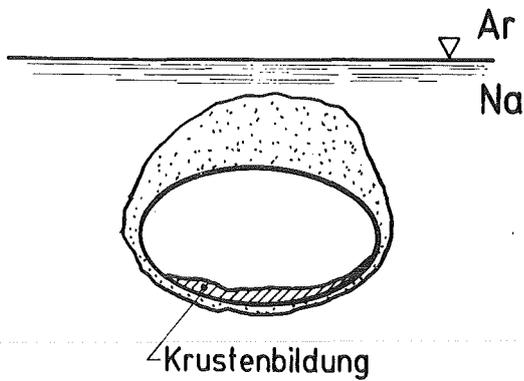
Abb. 6.1.2. c) - d): Die Dampffilmdicke wird entsprechend den vorliegenden Strömungsverhältnissen ( $u_\infty \approx 0,4 \text{ m/s}$ ) im vorderen Staupunkt ihren Minimalwert annehmen und in Richtung der Dampfschleppe anwachsen /39/, siehe auch Modellvorstellung für HEATING 6 Berechnungen in Abb. 5.4. Dies hat zur Folge, daß der Schmelze-



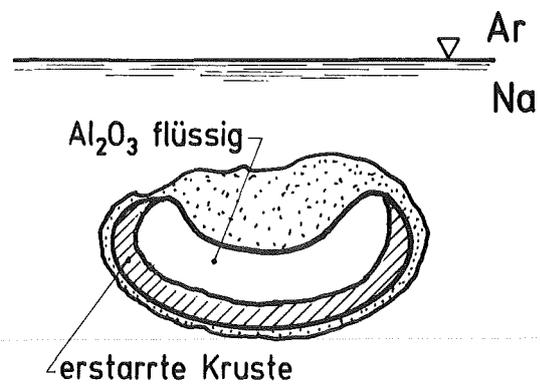
a) Eintauchen ins Natrium, Dampffilmbildung



b) Zusammenhängender Dampffilm und Dampfschleppe



c) Krustenwachstum am vorderen Staupunkt



d) orientierte, "moderate" Erstarrung der Kruste

Abb. 6.1.2 a) - d) Modellvorstellung der Wechselwirkung im Filmsieden,  $\Delta T_{\text{sub}} \geq 150 \text{ K}$

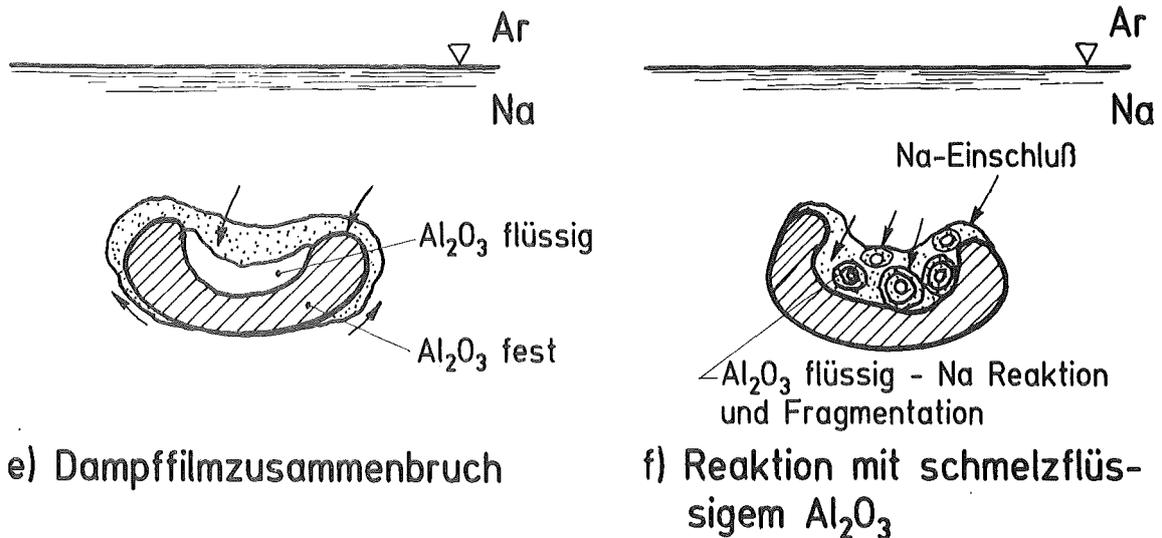


Abb. 6.1.2 e) - f) Modellvorstellung der Wechselwirkung im Filmsieden,  $\Delta T_{\text{sub}} \cong 150 \text{ K}$ , Fortsetzung

tropfen im Bereich der unteren, angeströmten Hälfte früher erstarren wird und im Bereich der Dampfschlepe, wo der Wärmeübergang am geringsten ist, der Tropfen noch schmelzflüssig bleibt. Bei einer derartigen Erstarrungsform wird die Fragmentation infolge thermischer Beanspruchungen in der Kruste vermieden. Die Spannungen aufgrund des beim Phasenwechsel entstehenden Dichteunterschiedes können infolge einer Lunkerbildung im hinteren Teil des Tropfens erst gar nicht entstehen, siehe Abb.4.4. In allen nichtgetriggerten Filmsiedexperimenten mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen in Wasser wurde eine ähnliche Erstarrungsform mit ausgeprägter Lunkerbildung beobachtet /39/.

Abb. 6.1.2 e) - f): Da die Natriumsäule nicht über die gesamte Länge die hohen Temperaturen besitzt (Temperaturschichtung im Versuchsbehälter, siehe Abb. 3.6), wird der Filmsiedezustand um den Tropfen nach einer bestimmten Fallzeit aufgrund von thermohydraulischen Effekten /52/ zusammenbrechen. Ist der Tropfen zu diesem Zeitpunkt schon gänzlich erstarrt, wird er ohne zu fragmentieren die Natriumsäule bis zum Fragmentsieb durchfallen. Der Modellvorstellung nach beginnt der Dampffilmkollaps an der käl-

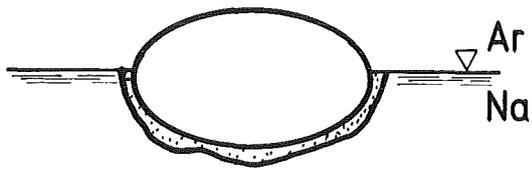
testen Stelle, hier wäre das der vordere Staupunkt, und pflanzt sich dann um den gesamten Tropfen fort. Dies wird in vielen Filmsiedeexperimenten bestätigt /68/, /69/, /70/, /71/. Befindet sich während des Dampffilmzzusammenbruches im Bereich des hinteren Staupunktes noch schmelzflüssiges Oxid, wird die auftreffende Phasengrenzfläche die thermische Wechselwirkung einleiten. In Abhängigkeit von der noch erschmolzenen Oxidmenge wird die Reaktion mehr oder weniger energetisch sein. Die an die Experimente anschließende Fragmentanalyse hat gezeigt, daß die Größe und Dicke der zusammenhängenden Kruste von der anfänglichen Kontakttemperatur und der Fallzeit im Natrium abhängig ist und, daß die an der Reaktion beteiligte Oxidschmelze zu sehr kleinen, runden Partikeln fragmentiert wurde. Nachrechnungen zum beobachteten Krustenwachstum und die daraus resultierenden Wärmeübergänge für das Natrium-Filmsieden erfolgten mit Hilfe eines mehrdimensionalen, instationären Rechencodes (HEATING 6), siehe Abb. 5.5 .

Modell B: Wechselwirkung bei niedriger Natriumunterkühlung,

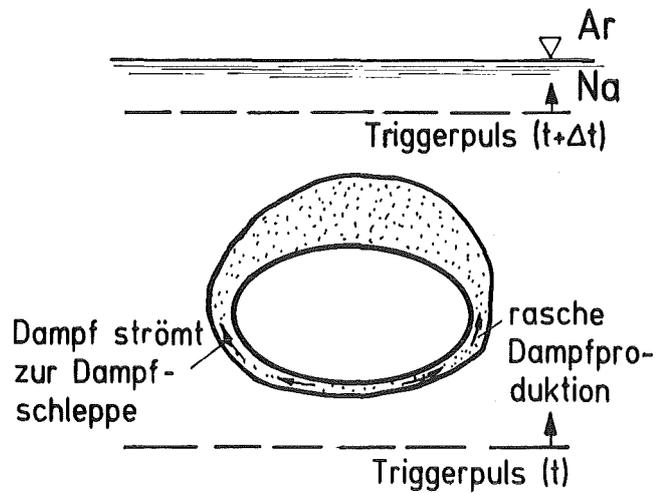
$$\Delta T_{\text{sub}} \leq 150 \text{ K}$$

In einigen Filmsiedeexperimenten bei niedriger Natriumunterkühlung,  $\Delta T_{\text{sub}} \leq 150 \text{ K}$ , reichte die Triggerdruckstärke zur Initiierung der Reaktion nicht aus, oder die Wechselwirkung setzte schon ein, bevor die Triggerdruckwelle den Tropfen erreichte. Da in keinem der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser Experimente diese Art von Wechselwirkung beobachtet werden konnte ( $T_I \gg T_{\text{crit}}$ ) und somit bei der phenomenologischen Interpretation auf die Hilfestellung von Hochgeschwindigkeitsaufnahmen verzichtet werden muß, hat die folgende Beschreibung des Reaktionsablaufs eher spekulativen Charakter.

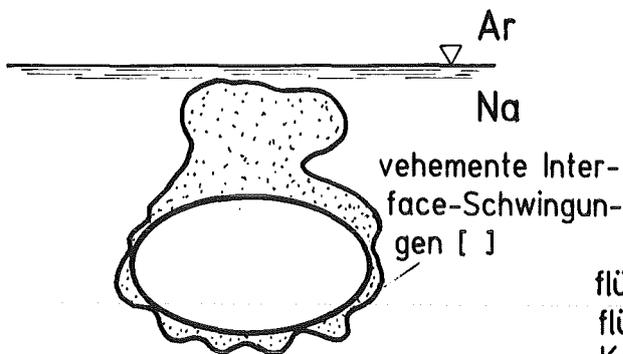
Abb. 6.1.2 g) - h): Der vom Dampffilm umgebene Tropfen wird nicht durch die Triggerung zu einer reaktionseinleitenden Wechselwirkung veranlaßt. Eine durch den Trigger verursachte hydrodynamische Instabilität in der Dampfschleppe ist unwahrscheinlich, da sich die Dampfschleppe durch ständig neu hinzuströmenden Natrium-



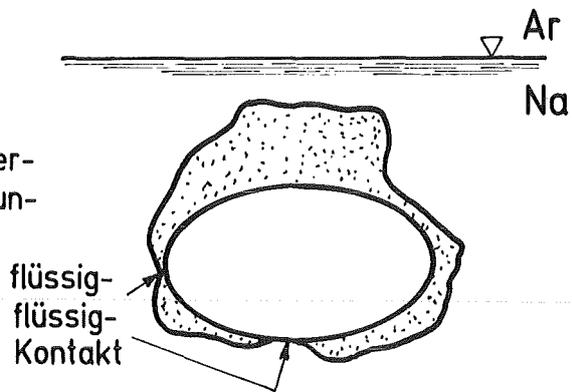
a) Eintauchen ins Natrium, Dampffilmbildung



b) große Dampfproduktion um Tropfen, kein Dampffilmkollaps durch Druckwelle möglich



c) mehrfaches Ablösen der Dampfschleppe → hohe Grenzflächenbewegung



d) Destabilisierende Effekte aufgrund Dampffilmoszillation (event. flüssig-flüssig Kontakt)

Abb. 6.1.2 g) - j) Modellvorstellung der Wechselwirkung im Filmsieden,  $\Delta T_{\text{sub}} \leq 150 \text{ K}$

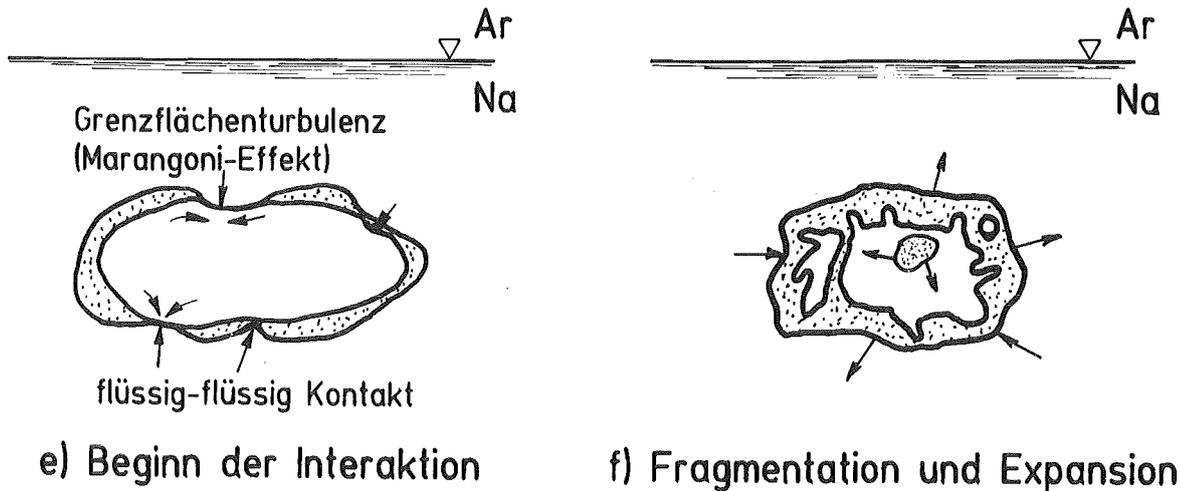


Abb. 6.1.2 k) - l) Modellvorstellung der Wechselwirkung im Filmsieden,  $\Delta T_{\text{sub}} \leq 150 \text{ K}$

dampf mehrmals vom Tropfen ablösen wird. Ähnliche Beobachtungen bezüglich des Dampfschleppenverhaltens bei niedrigen Fluidunterkühlungen in Wasser machten Toda et al. /63/.

Abb. 6.1.2 i) - j): Aufgrund der geringen Na-Unterkühlung existiert eine hohe Phasengrenzflächenbewegung /63/. Dadurch kommt es vielfach zu kurzzeitigen Kontakten zwischen dem Oxid und der Phasengrenzfläche. Solange die Oberflächentemperatur über der minimalen Filmsiedetemperatur liegt, wird der Dampffilm sich immer wieder neu aufbauen können. An den "Flüssig-Flüssig" Kontaktstellen wird lokal sehr viel Wärme übertragen (siehe Ando /5/). Infolgedessen ist es physikalisch denkbar, daß durch den Marangoni-Effekt hervorgerufene, kleine "Mikrojets" die Tropfenoberfläche verlassen und die Durchmischung und Vorfragmentation des Tropfens fördern.

Im Appendix E wird auf die Möglichkeit und Entstehung solcher Oberflächenturbulenzen hingewiesen, um unter anderem auch Anknüpfungspunkte zu früheren Fragmentationsmodellen /2/, /5/ und Beobachtungen zu erlangen.

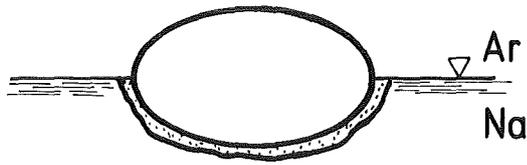
Abb. 6.1.2 k) - l): In diesem Stadium der Wechselwirkung treten aus noch näher zu überprüfenden Umständen spontane Interaktionen an der Tropfenoberfläche auf, die sowohl von Phasengrenzflächeninstabilitäten als auch von Oberflächenturbulenzen initiiert werden können. Der Tropfen wird aufgrund dieser Wechselwirkungen in mehreren Reaktionszyklen vollständig und sehr fein fragmentiert.

### 6.1.3 Modell der getriggert verzögerten bzw. prompten Wechselwirkung im Filmsiedezustand

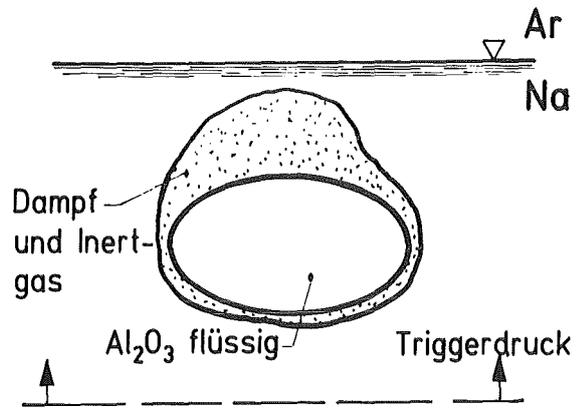
Im Kontakttemperaturbereich von  $2000 \text{ K} \leq T_I \leq 2060 \text{ K}$  treten bei den getriggerten Filmsiedeexperimenten "verzögerte" Wechselwirkungen auf. Unter der Reaktionsverzögerung versteht man die Zeitdifferenz zwischen der Ankunft des Triggers und der Flankenbasis des Wechselwirkungsdruckes, wie sie aus der Druckaufzeichnung ermittelt werden kann. Die Verzögerungszeiten liegen bei diesen Experimenten zwischen 1 und 3 ms. Bei der Fragmentanalyse wurde bei allen Versuchen eine mehr oder weniger dünne (von der Fallzeit im Natrium und der anfänglichen Kontakttemperatur abhängig), zusammenhängende Kruste und sehr viele feinfragmentierte, runde Partikel beobachtet.

Oberhalb einer anfänglichen Kontakttemperatur von  $T_I = 2060 \text{ K}$  bzw. Natriumunterkühlungen kleiner als 120 K treten prompte, getriggerte Wechselwirkungen auf. Die Verzögerungszeiten zwischen Triggerdruckanstieg und Reaktion liegen unter 0.5 ms. Unter einer abschätzenden Berücksichtigung der Druckwellenlaufzeiten des Triggers und der Reaktionsdruckwelle, siehe hierzu Kapitel 3.2, kann man erkennen, daß die prompte Wechselwirkung schon stattfindet, wenn sich der Triggerdruckpuls noch in der ansteigenden Flanke befindet, d.h. noch während der Kompressionsphase.

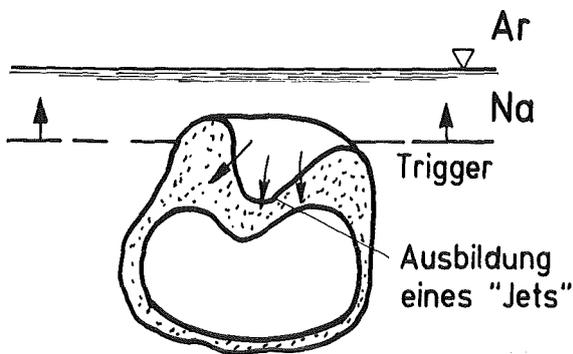
Ausgehend von den experimentellen Befunden wird folgendes phänomenologische Modell für diese Wechselwirkungsformen vorgeschlagen:



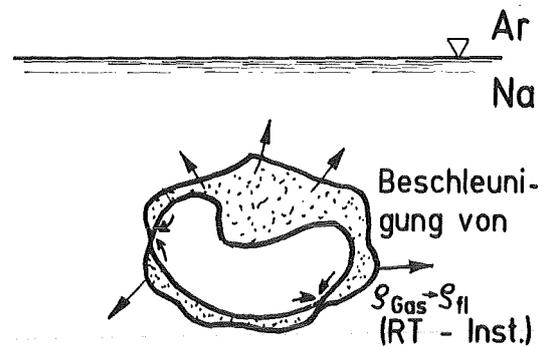
a) Eintauchen ins Natrium, Dampffilmbildung



b) ausgeprägte Dampffilmdicke, kein Krustenwachstum

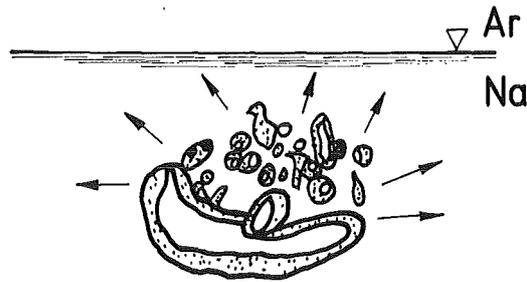


c) asymmetrischer Dampfblasenkollaps "Jetbildung"



d) thermische Interaktion und Beginn der Fragmentation (Na-Einschluß, RT-Instabilitäten)

Abb. 6.1.3 a) - d) Modellvorstellung der getriggert verzögerten, bzw. prompten Wechselwirkung



### e) mehrzyklische Fragmentation und Expansion

Abb. 6.1.3 e) Modellvorstellung der getriggert verzögerten, bzw. prompten Wechselwirkung, Fortsetzung

Abb. 6.1.3 a) - b): Nachdem der Tropfen ins Natrium eingetaucht ist, bildet sich um ihn herum ein zusammenhängender Dampffilm mit einer ausgeprägten Dampfschleppe. Die Wärmeverluste im Tropfen sind aufgrund der isolierenden Eigenschaften des Dampfes gering, besonders im Bereich der hinteren Tropfenhälfte. Nachrechnungen zum Abkühlverhalten des Tropfens haben gezeigt, daß sich der Tropfen im Bereich des hinteren Staupunktes nur weniger als 150 K abkühlen wird, Kapitel 5.2.

Abb. 6.1.3 c) - d): Mit dem Ansteigen des Triggerdruckes wird der Dampffilm um den Tropfen komprimiert. Noch ehe die Kompression vollständig abgeschlossen ist, kommt es partiell zu Kontakten zwischen der Phasengrenzfläche und der Tropfenoberfläche und zu einer plötzlichen Aufheizung des Kühlmittels auf die entsprechende Kontakttemperatur. Derartige "Flüssig-Flüssig" Kontakte werden vornehmlich im Bereich der hinteren Tropfenoberfläche stattfinden. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen von den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wasser Experimenten /39/ und Nachrechnungen zum 2-dimensionalen Dampffilmkollapsverhalten um eine Tropfengeometrie haben deutlich gezeigt, daß die Phasengrenzflächengeschwindigkeit im Bereich der

Dampfschleppe am größten ist und vornehmlich in der hinteren Tropfenhälfte die Fragmentation eingeleitet wird. Wird die Kühlmittelgrenzschicht beim Kontakt mit der Tropfenoberfläche schlagartig bis zur spontanen Keimbildungstemperatur (entspricht dem unteren Grenzwert der homogenen Keimbildungstemperatur  $T_{HN}$ ) aufgeheizt, kommt es zu einer prompten, explosionsartigen Verdampfung des Kühlmittels und zu einem plötzlichen, hohen Druckaufbau im Dampffilm. Der Dampfdruck von Natrium beträgt im vorliegenden Kontakttemperaturbereich etwa 10 MPa. Je mehr "Flüssig-Flüssig" Kontaktstellen am Tropfen vorhanden sind und die Temperaturbedingung  $T_I = T_{SN} \approx T_{HN}$  erfüllen, umso ausgeprägter wird die explosionsartige Verdampfung und Fragmentation des Schmelzetropfens sein. Neben den "Flüssig-Flüssig" Kontakten kann es während der Kompression unter Umständen auch zum Einschluß (Entrapment) kleinerer Mengen von Kühlmittel kommen /32/. Das Kühlmittel würde in solch einem Fall ebenfalls explosionsartig verdampfen und die Fragmentation des Schmelzetropfens einleiten.

Liegt man im Kontakttemperaturbereich unterhalb der explosiven Verdampfungstemperatur  $T_I < T_{SN} \approx T_{HN}$  des Kühlmittels, wird auch in diesem Fall die Verdampfung die Wechselwirkung und Fragmentation einleiten, jedoch nicht in der explosionsartigen, energetischen Art und Weise wie dies bei der prompten Wechselwirkung geschieht. Im Anschluß an die Kompressionsphase (Triggerphase) schließt sich die Expansionsphase an, in der der Natriumdampffilm aufgrund des hohen Innendruckes und wieder absinkenden Umgebungsdruckes stark expandieren wird.

Abb. 6.1.3 e): Nach mehrfachen Expansions- und Rekompansionsphasen ist der Schmelzetropfen vollständig fragmentiert, wobei die thermische Energie an das Kühlmittel abgegeben worden ist.

## 6.2 Die Rolle der spontanen Keimbildungstemperatur

Mit ein Schwerpunkt dieser Arbeit war es, in Anlehnung an das Fauske Kriterium /20-23/ und die Arbeit von Morita /2/, die Rolle der spontanen Keimbildungstemperatur erstmals mit einer annähernd reaktortypischen Materialkombination zu überprüfen. Die experimentellen Ergebnisse haben ergeben, daß die Reaktionen zwischen dem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schmelzetropfen und Natrium energetischer werden, wenn die Kontakttemperatur über der spontanen Keimbildungstemperatur (unterer Grenzwert der homogenen Keimbildungstemperatur) des Natriums liegt. Es wurde gezeigt, daß nach Überschreiten von  $T_I = 2060 \text{ K}$  eine prompte, d.h. unmittelbar nach der Triggerung erfolgende Reaktionsdruckverstärkung festzustellen ist. Diese Tatsache weist darauf hin, daß ein im Filmsiedezustand befindliches, vorgemischtes Mehrtropfensystem dann zu einer kohärenten, schnellpropagierenden Dampfexplosion neigt, wenn die Kontakttemperatur oberhalb der spontanen Keimbildungstemperatur des Kühlmittels liegt.

Da bis zum Zeitpunkt dieser Arbeit nur theoretische Abschätzungen zur Bestimmung der homogenen Keimbildungstemperatur für Natrium vorlagen, kann man nun, in Anlehnung an die experimentellen Befunde von Morita /2/, erstmals einen experimentell ermittelten, unteren Grenzwert für  $T_{\text{HN}}$  angeben:

$$T_{\text{SN}} \approx T_{\text{HN}} = 2060 \text{ K} \pm 160 \text{ K}$$

Im Kontakttemperaturbereich unterhalb der homogenen Keimbildungstemperatur finden ebenfalls thermische Wechselwirkungen mit Fragmentation statt. Der wesentliche Unterschied zu den Experimenten oberhalb von  $T_{\text{HN}}$  liegt darin, daß die Wechselwirkung nach der Triggerung mit einer größeren Verzögerung erfolgt und die Reaktionsdrücke kleiner sind, da eine prompte, explosionsartige Verdampfung des Kühlmittels ausbleibt. Aufgrund dieser Erkenntnisse kann der homogenen Keimbildungstemperatur folgende Schlüsselrolle bei der Interpretation einer Dampfexplosion zuerkannt werden:

Liegt die Kontakttemperatur zwischen einer heißen und kalten Komponente oberhalb der homogenen Keimbildungstemperatur des Kühlmittels, findet zum Zeitpunkt des Kontaktes eine explosionsartige Verdampfung statt. Das in diesem Temperaturbereich ohnehin vorliegende Filmsieden zwischen den Komponenten verhindert, aufgrund der isolierenden Eigenschaften des Dampfes, eine schnelle Energieabgabe der Schmelze an das Kühlmittel. Dies bedeutet, daß die heiße Komponente größtenteils schmelzflüssig bleibt und während der Wechselwirkung feinst fragmentieren kann, was ein hoher Energieumsatz zur Folge hat.

Neben den schon bekannten Ergebnissen mit Simulationsmaterialien /2/, /20/, /24/ zeigt auch dieses Experiment, daß das Fauske-Kriterium eine wichtige thermische Randbedingung für eine heftige Dampfexplosion darstellt.

## 7. ZUSAMMENFASSUNG

Das Fragmentations- und Dampfexplosionsverhalten eines geschmolzenen Metalloxids ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) in einem Flüssigmetall (Natrium) wurde experimentell untersucht. Die Experimente sollten den Temperaturbereich abdecken der, aufgrund von theoretischen Modellen und experimentellen Ergebnissen mit Simulationsmaterialien, für die Entstehung einer energetischen Dampfexplosion relevant ist. In diesen Experimenten wurden einzelne, weit über ihren Schmelzpunkt erhitzte  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tropfen mit Natrium bei verschiedener Temperatur in Kontakt und zum Teil durch einen extern erzeugten Trigger zur Reaktion gebracht.

Aus den experimentellen Ergebnissen ergeben sich folgende neue Erkenntnisse:

- Die zum Erreichen des Filmsiedezustandes im Natrium benötigte minimale Kontakttemperatur an der Oxidoberfläche beträgt:

$$T_{\min} \cong 2000 \text{ K} \cong T_I, \quad \Delta T_{\text{sub}} = 200 \text{ K}$$

- Wird bei der theoretischen Abschätzung von  $T_{\min}$  mit Hilfe der HENRY-Korrelation /55/ beim Wärmeübergang der Einfluß des Strahlungsaustausches mitberücksichtigt, erhält man eine gute Übereinstimmung zwischen der Theorie und dem experimentellen Befund. Dies bedeutet, daß die mit der herkömmlichen HENRY-Korrelation ermittelten Werte für  $T_{\min}$  im Bereich großer Natriumunterkühlungen zu hohe Temperaturen für das Oxid liefern.
- Bei den Experimenten konnte man vier unterschiedliche Wechselwirkungsmechanismen beobachten: spontane, selbsttriggernde Wechselwirkungen im unterkühlten Blasensieden und Filmsieden, die getriggert-verzögerte Wechselwirkung im Filmsieden, sowie die getriggert-prompte Wechselwirkung oberhalb der spontanen bzw. homogenen Keimbildungstemperatur.

Die Reaktionen im unterkühlten Blasensieden finden nach einer kurzen Verweilzeit im Natrium statt und unterscheiden sich von denen im Filmsiedezustand durch den geringeren Reaktionsdruck. Wird bei einer getriggerten Wechselwirkung im Kühlmittel die spontane Keimbildungstemperatur erreicht, erfolgt eine explosionsartige Verdampfung und prompte Wechselwirkung. Die prompte Wechselwirkung unterscheidet sich von der verzögerten dadurch, daß die Zeitspanne zwischen dem einleitenden Triggerdruck und dem beginnenden Wechselwirkungsdruck deutlich kleiner ist. Bei der prompten Wechselwirkung war der Reaktionsdruck infolge der thermischen Wechselwirkung größer als der reaktionseinleitende Triggerdruck. Der prompten Wechselwirkung wird daher, im Hinblick auf eine kohärente, schnellablaufende Dampfexplosion, eine entscheidende Rolle zugeschrieben.

- Im theoretischen Teil dieser Arbeit haben Nachrechnungen zum Krustenwachstum an einigen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schmelzetropfen, unter Zuhilfenahme eines mehrdimensionalen, instationären Rechencodes (HEATING 6), Wärmeübergangskoeffizienten für das Natrium-Filmsieden in Natrium in Abhängigkeit der Unterkühlung geliefert. Weiterhin wurden in dieser Arbeit erstmals Berechnungen zum zweidimensionalen Dampffilmkollapsverhalten um einen Tropfen vorgestellt, um das in mehreren Experimenten vorher schon beobachtete, mehrdimensionale Kollapsverhalten einer Dampfblase um eine Tropfengeometrie besser verstehen zu können. Die Ergebnisse dieser Nachrechnungen geben deutliche Hinweise auf das Zustandekommen einer mehrdimensionalen, hydrodynamischen Instabilität während eines getriggerten Dampffilmkollapses um eine Tröpfchengeometrie.

## 8. LITERATUR

- /1/ D. Smidt:  
Reaktor-Sicherheitstechnik  
Springer-Verlag, Berlin, 1979
- /2/ T. Morita:  
Getriggertes Fragmentationsexperiment mit Natrium, Silikon-  
öl und Pentan,  
KfK-Bericht 3701, 1984
- /3/ A.W. Cronenberg:  
Recent Developments in the Understanding of Energetic Molten  
Fuel-Coolant Interactions,  
Nuclear Safety 21; pp. 319-337, 1980
- /4/ L. Caldarola:  
unveröffentlicht, 1983
- /5/ M. Ando:  
Experiment zur getriggerten Fragmentation an einem schmelz-  
flüssigen Kupfertropfen in Wasser,  
KfK-Bericht 3667, 1983
- /6/ E.P Hicks, D.C. Menzies:  
Theoretical Studies on the Fast Reactor Maximum Accident,  
ANL-7120, Proc. Conf. on Safety, Fuel and Core Design in  
Large Fast Power Reactors, pp.654-670, 1965
- /7/ R.P. Anderson, D.R. Armstrong:  
Comparison between Vapour Explosion Models and Recent Ex-  
perimental Results,  
14th Nat. Heat Transfer Conf., AIChE-ASME, Atlanta, Georgia  
August 5-8, 1973

- /8/ M.L. Corradini:  
Heat Transfer and Fluid Flow Aspects of Fuel-Coolant Interactions,  
Thesis, Dep. of Nucl. Engineering, MIT; COO-2781-12TR, 1978
- /9/ R. Benz, G. Fröhlich, H. Unger:  
Literaturstudie zur Dampfexplosion,  
1. Techn. Fachbericht zum Forschungsvorhaben BMFT-RS 76;  
IKE, Universität Stuttgart, 1976
- /10/ L.C. Witte, J.E. Cox:  
Thermal Explosion Hazards; Adv. Nucl. Science Techn. 7  
(E.J. Hently & J. Lewins, Eds), Academic Press N.Y.,  
pp. 329-364, 1973
- /11/ U. Schumann:  
Dampfexplosion - physikalische Grundlagen und Bezug zur  
Reaktorsicherheit;  
KFK-Bericht 3388; 1982
- /12/ S.J. Board, R.W. Hall:  
Propagation of Thermal Explosions, Part 1:  
Tin/Water-Experiments, CEGB Report RD/B/N2850, 1974
- /13/ S.J. Board, R.W. Hall:  
Propagation of Thermal Explosions, Part 2:  
A Theoretical Model; CEGB-Report RD/B/N3249; 1974
- /14/ S.J. Board, R.W. Hall, R.S. Hall:  
Detonation of Fuel Coolant Explosions,  
Nature 254; pp. 319-321; 1975

- /15/ H. Jacobs:  
Computational Analysis of Fuel-Sodium Interactions with an Improved Method,  
CONF-761001 Vol. 3, pp. 926-935; Proc. Int. Meeting Fast Reactor Safety and Related Physics, Chicago, Oct. 5-8, 1976
- /16/ T.P. Fishlock:  
Calculations on Propagating Vapour Explosions for the Aluminium/Water and  $UO_2$ /Sodium Systems,  
Fourth CSNI Specialist Meeting on Fuel-Coolant Interaction in Nuclear Reactor Safety; CSNI-Report No. 37, Vol. 1, pp. 54-80, 1979
- /17/ M.L. Corradini:  
Analysis and Modelling of Steam Explosion Experiments,  
SAND 80-2131, Jahreskolloquium 1980 PNS, Karlsruhe, 1981
- /18/ H. Goldammer:  
Untersuchungen über nichtgleichförmige Temperaturverteilung im Reaktionsgemisch einer thermischen Detonation,  
Abschlußbericht, B.T.W.B. - Büro für techn. wissenschaftl. Beratung, Postfach 1303, D-7070 Schwäbisch-Gemünd, 1980
- /19/ W. Schwalbe:  
Theoretische Analyse thermischer Schmelze-Kühlmittel-Reaktionen zwischen großen Schmelzmengen in Wasser,  
Dissertation, IKE, Universität Stuttgart,  
Bericht IKE 2-56, 1982
- /20/ H.K. Fauske:  
The Role of Nucleation in Vapour Explosions,  
Trans. ANS, 15, pp. 813-814, 1972

- /21/ H.K. Fauske:  
Nucleation of Liquid Sodium in Fast Reactors,  
Reactor Technology 15, pp. 278-302, 1972/73
- /22/ H.K. Fauske:  
On the Mechanism of Uranium Dioxide-Sodium Explosive  
Interactions,  
Nucl. Science Eng. 51 pp. 95-101 1973
- /23/ H.K. Fauske:  
Some Aspects of Liquid-Liquid Heat Transfer and Explosive  
Boiling, CONF-740 401-p2, pp. 992-1005  
Proc. of the Fast Reactor Safety Meeting  
Beverly Hills, CA, April 2-4, 1974
- /24/ T.A. Dullforce, J.A. Reynolds, R.S. Peckover:  
Interface Temperature Criteria and the Spontaneous Trigger-  
ing of Small-Scale-Fuel-Coolant Interactions,  
Culham Lab. Rpt. CLM-P517, 1978
- /25/ H.S. Carslaw, J.C. Jaeger:  
Conduction of Heat in Solids,  
Clarendon Press, Oxford, 2nd ed, 1959
- /26/ S. van Strahlen, R. Cole:  
Boiling Phenomena,  
Vol. 1 & 2 Hemisphere Publ., Washington, 1979
- /27/ M. Blander, J.L. Katz:  
Bubble Nucleation in Liquids,  
AIChE Journ., Vol. 21, No. 5, Sept. 1975

- /28/ A.W. Cronenberg:  
A Review of Fragmentation Models Relative to Molten  $UO_2$   
Break-up when Quenched in Sodium Coolant, ASME Paper 74-WA/  
HT-42, 1974
- /29/ L.S. Nelson, L.D. Buxton:  
Steam Explosion Triggering Phenomena: Stainless Steel and  
Corium-E-Simulants Studies with a Floodable ARC Melting Appara-  
tus,  
NRC-Report SAND-77-0998 (NUREG/CR-0122)  
Stania Laboratories, NTIS, 1978
- /30/ S.J. Board, L. Caldarola:  
Fuel Coolant Interactions in Fast Reactor  
Thermal and Hydraulic Aspects of Nuclear Reactor Safety,  
Vol. 2, Liquid Metall Fast Breeder Reactors  
American Soc. Mech. Engineers, New York, 1977
- /31/ A.W. Cronenberg, R. Benz:  
Vapour Explosion Phenomena with Respect to Nuclear Reactor  
Safety Assessment, NRC Report NUREG/CR-0245 (TREE 1242),  
1978
- /32/ H. Jacobs, W. Pepler:  
On ten Mechanisms Defining Temperature Interaction Zones  
and Consequences for the Possibility of Fuel Sodium Inter-  
actions,  
Int. Conf. on the Science and Techn. of FBR-Safety,  
Guernsey, Vol. 1, pp. 411-416, May 12-16, 1986
- /33/ F. Huber et.al.:  
Injection of Thermite Melt into a Sodium Filled Plenum  
(Upper Plenum Injection),  
Proc. of the 13th Meeting of Liquid Metal Boiling Working  
Group, Winfrith, September 27-29, 1988

- /34/ H. Hohmann et.al.:  
Ispra Large Scale Experiment in the Test Facility Thermos,  
Proc. of the 13 th Meeting of Liquid Metal Boiling Working  
Group, Winfrith, September 27-29, 1988
- /35/ D.R. Armstrong et.al.:  
Interaction of Sodium with Molten  $UO_2$  and Stainless Steel  
using a Dropping Mode of Contact, ANL-7890, Dec. 1971
- /36/ D.R. Armstrong et.al.:  
Explosive Interaction of Molten  $UO_2$  and Liquid Sodium,  
ANL-76-24, March 1976
- /37/ H. Mizuta:  
Fragmentation of Uranium Dioxide after Molten Uranium  
Dioxide-Sodium Interaction,  
Journal of Nucl. Science and Techn., 11, pp. 480-487,  
November 1974
- /38/ M.S. Plesset, R.B. Chapman:  
Collapse of an Initially Spherical Vapour Cavity in the  
Neighbourhood of a Solid Boundary,  
Journal Fluid Mech. 47, pp. 283-290, 1971
- /39/ W. Pepler, W. Till:  
Mechanism Observed during Triggered Fragmentation of a Drop-  
let of Molten Alumina in Water  
Int. Conf. on the Science and Techn. of Fast Reactor Safety  
Guernsey, Vol. 2, pp. 497-502, May 12-16, 1986
- /40/ D. Swift, L. Baker:  
Reactor Development Progress Report  
ANL 7152, pp. 87-96, Januar 1965

- /41/ D.J. Buchanan et.al.:  
A Modell for Fuel Coolant Interaction,  
Journal of Physics, d-7, pp. 1441-1457, 1974
- /42/ R.O. Ivins:  
Interaction of Fuel, Cladding, and Coolant,  
Report ANL-7399, pp. 162-165, 1967
- /43/ J. Schriewer:  
Zur Theorie der hydrodynamischen Fragmentation von Flüssig-  
keitstropfen in flüssigen Medien durch Stoßwellen und An-  
wendung auf die System Hg/H<sub>2</sub>O, Fe/H<sub>2</sub>O, Stahl/Na, UO<sub>2</sub>/Na,  
Dissertation, IKE, Universität Stuttgart, 1980
- /44/ B. Knapp, N.E. Todreas:  
Thermal Stress Initiated Fracture as a Fragmentation  
Mechanism in the UO<sub>2</sub>-Sodium Fuel-Coolant Interaction,  
Nuclear Eng. and Design 35, pp. 69-85, 1975
- /45/ M.L. Corradini, N.E. Todreas:  
Prediction of Minimum UO<sub>2</sub> Particle Size Based on Thermal  
Stress Initiated Fracture Model,  
Nuclear Eng. and Design 53, pp. 105-116, 1979
- /46/ A.W. Cronenberg et al.:  
A Thermal Stress Mechanism for the Fragmentation of Molten  
UO<sub>2</sub> Upon Contact with Sodium Coolant,  
Nuclear Eng. and Design 30, pp. 434-443, 1974
- /47/ M. Bürger et al.:  
Effect of Solid Crusts on the Hydrodynamic Fragmentation of  
Melt Drops,  
Final Report to the Research Contract No. 101/D2/625533 of  
the INR, Kernforschungszentrum GmbH, June 1985

- /47/ W. Rapp:  
Quotientenpyrometer für Temperaturen ab 500°C,  
KfK - Bericht 3371, 1982
- /49/ M.M. Farahat:  
Transient Boiling Heat Transfer from Spheres to Sodium,  
Northwestern University, Ph.D., Nr. 72-7778, 1971
- /50/ C.J. Hsu:  
Heat Transfer to Liquid Metals in Flowing Past Spheres and  
Elliptical-Rod Bundles,  
Brooklee National Lab., Upton New York, BNL 7664, R, 1964
- /51/ F.W. Peppler:  
Experimentelle Untersuchungen der Siedevorgänge im Natrium  
in engen Kanälen und deren Anwendung auf schnelle Reaktoren,  
KfK-Ext. 8 (72-1), 1972
- /52/ R. Ladisch:  
Untersuchung der minimalen Filmsiedetemperatur auf kerami-  
schen und metallischen Heizern,  
KfK - Bericht 2970, 1980
- /53/ O.E. Dwyer:  
Boiling Liquid Metal Heat Transfer,  
published by AMERICAN NUCLEAR SOCIETY, 1976
- /54/ F.S. Gunnerson, A.W. Cronenberg:  
On the Thermodynamic Superheat for Liquid Metals and its  
Relation to the Leidenfrost Temperature,  
J. Heat Transfer 100, pp. 736, 1978

- /55/ R.E. Henry:  
A Correlation for the Minimum Film Boiling Temperature,  
Heat Transfer Research Design AIChE Symposium Series 70,  
pp. 81-90, 1974
- /56/ D.Y. Hsieh:  
Interfacial Stability with Mass and Heat Transfer,  
Phys. Fluids 21, pp. 745-748, 1978
- /57/ D.Y. Hsieh:  
Nonlinear Rayleigh-Taylor Stability with Mass and Heat  
Transfer, Phys. Fluids 22, pp. 1435-1439, 1979
- /58/ P.J. Berenson:  
Filmboiling Heat Transfer from a Horizontal Surface,  
Trans. ASME, Journal Heat Transfer Series-C, pp. 351-358,  
August 1961
- /59/ U. Grigull et al.:  
Die Grundgesetze der Wärmeübertragung,  
Springer Verlag, 1963
- /60/ H. Tanaka:  
On the Stability of Vapour Film in Pool Boiling,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 31, No. 1, pp. 129-134, 1988
- /61/ M. Shoji:  
Film Boiling and Minimum Heat Flux of Saturated Pool Boiling on a  
Horizontal Surface,  
Proc. 23rd Nat. Heat Transfer Symp. of Japan, pp. 220-222,  
1986
- /62/ N. Zuber:  
On the Stability of Boiling Heat Transfer,  
Trans. ASME 80, pp. 711-720, 1958

/63/ S. Toda, M. Mori:

The Stability of Quasistable Film Boiling and the Behaviour of the Vapour film to a Quenching Initiation on a Horizontal Wire in Subcooled Water,  
Proc. ANS/ASME/NERG, Int. Topical Meeting on Nucl. Reactor Thermal Hydraulics, New-York, Vol. 2, pp. 1418-1436, 1980

/64/ W. Zijl:

Global Collocation Approximations of the Flow and Temperature Fields around a Gas and a Vapour Bubble,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 20, pp. 487-498, 1977

/65/ W.M. Sluijter et. al.:

On the Behaviour of a Translating Vapour Bubble under the Influence of a Pressure Step - Numerical Solutions of Implosion and Fragmentation,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 29, pp. 1891-1901, 1986

/66/ I.N. Bronstein, K.A. Semendjajew:

Taschenbuch der Mathematik  
Verlag Harri Deutsch, 20. Auflage, 1981

/67/ J. Stoer, R. Burlirsch:

Einführung in die numerische Mathematik I, II  
Springer Verlag, New York, 1978

/68/ R. Jeschar, R. Maaß:

Bestimmung des Wärmeübergangs beim Abschrecken von Metallen in Wasser, Gas-Wärme International, Band 34, Heft 9, 1985

/69/ F.J. Walford:

Transient Heat Transfer from a Hot Nickel Sphere Moving through Water,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 12, pp. 1621-1625, 1969

- /70/ J.W. Stevens, L.C. Witte:  
Transient Film and Transition Boiling from a Sphere,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 14, pp. 443-450, 1971
- /71/ K.H. Hsiao et al.:  
Transient Film Boiling from a Moving Sphere,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 18  
pp. 1343-1350, 1975
- /72/ A. Chesters:  
Institut für Physik, Technische Universität Eindhoven,  
persönliche Mitteilung
- /73/ W.M. Sluijter, S.J. van Stralen:  
The Method of Characteristics Applied to Numerical Solutions of Gas Bubble Implosion and Fragmentation,  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 25, No. 8, pp.1103-1111,  
1981
- /74/ W. Zijl et al.:  
Global Numerical Solutions of Growth and Departure of a Vapour Bubble at a Horizontal Superheated Wall in a Pure Liquid and a Binary Mixture  
Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 22, pp. 401-420, 1977
- /75/ S.J. van Stralen:  
The Growth Rate of a Vapour Liquids and Binary Mixtures  
Int. J. Heat Mass Transfer, Part I, Vol. 11, pp. 1467-1489,  
Part II Vol. 11, pp. 1491-1512. 1968
- /76/ M.S. Plesset, R.P. Chapman:  
Collapse of an Initially Spherical Vapour Cavity in the Neighbourhood of a Solid Boundary,  
J. Fluid Mech. 47, pp. 283-290, 1971

- /77/ W.D. Turner, D.C. Elrod et.al.:  
HEATING6, An IBM 360 Heat Conduction Program,  
ORNL/CSD/TM-15, Contract No. W-7405 eng 26  
March 1977 (Documentation for SCALE-1)
- /78/ D.C. Elrod, W.D. Turner :  
HEATPLOT , A Temperature Distribution Plotting Program for  
HEATING6, K/CSD/TM-11, Contract No. W-7405 eng 26, 1977
- /79/ R. Cole:  
Underwater Explosions  
Princeton Press, Princeton 1948
- /80/ M. Bober:  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik, KfK  
persönliche Mitteilung
- /81/ W. Rapp:  
Institut für Reaktorbauelemente, KfK, persönliche Mitteilung
- /82/ M. Ellion: Study of Mechanism of Boiling Heat Transfer,  
Jet Propulsion Lab. Memo Nr. 20-88, Pasadena, Cal., 1954
- /83/ H.M. Frey:  
Institut für Reaktorentwicklung, KfK,  
persönliche Mitteilung
- /84/ D.L. Katz, L.M. Sliepcevich:  
LNG / Water Explosions: Cause and Effekt  
Hydrocarbon Processing, Nov. 1971
- /85/ H.E. Schins:  
Contribution to the Boiling Curve of Sodium  
Atomenergie 26, pp.48-52, 1975

## 9. NOMENKLATUR

### 1. Lateinische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Einheit
a	Wärmeleitfähigkeit	$\text{m}^2/\text{s}$
b	dimensionslose Temperatur	
	$= (T_{\text{min},H} - T_{\text{min},B}) / (T_{\text{min},B} - T_K)$	
$c_p$	spezifische Wärme	$\text{J}/\text{kg K}$
D	charakteristische Dimension	m
g	Erdbeschleunigung	$\text{m}/\text{s}^2$
Gr	Grashof-Zahl	
	$= g \beta (T_W - T_K) L^3 / (\nu / \rho)^2$	
$h_{fg}$	Verdampfungswärme	$\text{J}/\text{kg}$
l, L	charakteristische Länge	m
Nu	Nusselt-Zahl	
	$= (\alpha L) / \lambda$	
Pr	Prandtl-Zahl	
	$= (\nu c_p) / \lambda$	
p	Druck	Pa
$\dot{q}$	Wärmestromdichte	$\text{W}/\text{m}^2$
R, r	Radius	m
t	Zeit	s

T	Temperatur	K
u	Geschwindigkeit	m/s
We	Weber-Zahl	

$$= (\rho_{\text{liq}} D u^2) / \sigma$$

WÜK                    Wärmeübergangskoeffizient, Abk.

## 2. Griechische Symbole

Symbol	Bedeutung	Einheit
$\alpha$	Wärmeübergangskoeffizient	W/m <sup>2</sup> K
$\beta$	volumetrischer Ausdehnungskoeff.	1/K
$\Delta$	Differenz	
$\Delta T$	$T_w - T$	K
$\Delta T_w$	$T_w - T_{\text{sat}}$	K
$\Delta T_{\text{sub}}$	$T_{\text{sat}} - T_K$	K
$\lambda$	Wärmeleitfähigkeit	W/mK
$\lambda^*$	Wellenlänge	nm
$\epsilon$	Emissionskoeffizient	
$\tau$	Transmissionskoeffizient	
$\delta$	Grenzschichtdicke	m
$\delta_K$	Krustendicke	m
$\nu$	kinematische Zähigkeit	m <sup>2</sup> /s
$\rho$	Dichte	kg/m <sup>3</sup>
$\rho^*$	Reflektionsgrad	
$\eta$	dynamische Zähigkeit	Ns/m <sup>2</sup>
$\theta$	Winkel	°
$\phi$	Argument, error-function	
$\phi$	Potential	
$\sigma$	Oberflächenspannung	N/m

$\sigma$ Boltz.	Boltzmann-Konstante	$W/m^2 K^4$
$\omega$	Wirbelvektor	
$\nabla$	Nabla-Operator	

### 3. Indices

crit	kritisch
DA	Druckaufnehmer
I	Interface
fl	flüssig
gem	gemittelt
HN	Homogene Keimbildung
H	Heiße Flüssigkeit
Inst	Instabilitäten
K	Kalte Flüssigkeit
KH	Kelvin-Helmholtz
kon	Konvektion
liq	Flüssig
melt	melting
min	Minimum
RT	Rayleigh-Taylor
sat	Sättigung
SN	Spontane Keimbildung
SP	Staupunkt
str	Strahlung
T	Tropfen
Ta-Na	Tantal-Natrium
tot	total
u	Umgebung (für Druck)
vap	Dampf
w	Wand

Versuchs-Nr.	T <sub>Na</sub> (K)	T <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> (K)	T <sub>I</sub> (K)	t <sub>Na</sub> (ms)	R.-Druck DA - oben (MPa)	R.-Druck DA - unten (MPa)	R.-Druck DA - TA (MPa)	Verzögerung (μs)	Reaktionsart	Bemerkungen
V1	413	2673	.*	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V2	523	3123	.*	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V3	573	.*	-	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V4	573	2643	.*	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V5	.*	-	-	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V6	573	2963	.*	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V7	573	2883	1630	20	11,7·10 <sup>-3</sup>	7,8·10 <sup>-3</sup>	8,8·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V8	673	2893	1790	33	2,9·10 <sup>-3</sup>	2,9·10 <sup>-3</sup>	9,5·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V9	673	2710	1650	15	0,62·10 <sup>-3</sup>	1,17·10 <sup>-3</sup>	8,2·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V10	673	2943	1750	11	1,95·10 <sup>-3</sup>	1,76·10 <sup>-3</sup>	5,2·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V11	773	2898	1820	27	9,0·10 <sup>-3</sup>	4,5·10 <sup>-3</sup>	8,5·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V12	773	2953	1840	24	5,9·10 <sup>-3</sup>	4,5·10 <sup>-3</sup>	90,0·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V13	773	2933	1830	19	4,9·10 <sup>-3</sup>	3,9·10 <sup>-3</sup>	27,2·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V14	673	2593	.*	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V15	823	2993	.*	-	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V16	823	3003	1905	20	12,7·10 <sup>-3</sup>	12,1·10 <sup>-3</sup>	64,6·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V17	873	2793	1880	21	8,8·10 <sup>-3</sup>	7,4·10 <sup>-3</sup>	27,4·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	

Abb. A.1 Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse

Versuchs-Nr.	T <sub>Na</sub> (K)	T <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> (K)	T <sub>I</sub> (K)	t <sub>Na</sub> (ms)	R.-Druck DA - oben (MPa)	R.-Druck DA - unten (MPa)	R.-Druck DA - TA (MPa)	Verzögerung (μs)	Reaktionsart	Bemerkungen
V18	873	2803	1890	28	18,5·10 <sup>-3</sup>	6,6·10 <sup>-3</sup>	39,1·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V19	873	2953	1930	32	13,7·10 <sup>-3</sup>	9,4·10 <sup>-3</sup>	50,8·10 <sup>-3</sup>	-	spontan	
V20	963	2833	1980	∞	-	-	-	-	keine	erstarrte Tropfen
V21	931	2993	1980	15	12,7·10 <sup>-3</sup>	14,1·10 <sup>-3</sup>	0,1076	-	spontan	
V22	923	2923	1960	17	24,5·10 <sup>-3</sup>	10,5·10 <sup>-3</sup>	0,0704	-	spontan	
V23	1003	3023	2040	120	92,0·10 <sup>-3</sup>	0,11	0,174	-	spontan	
V24	979	2993	2020	110	0,335	0,082	0,374	-	spontan	
V25	983	2993	2020	115	0,128	0,12	0,514	-	spontan	
V26	980	2963	2010	> 400	-*	-	-	-	spontan	* keine Messung
V27	975	3093	2040	20	0,07	0,0045	-*	2822	getriggert	* keine Messung
V28	983	3103	2050	75	0,16	0,19	0,642	1860	getriggert	
V29	986	3123	2060	40	0,26	0,22	-*	-	spontan	* keine Messung
V30	1027	2913	2053	40	0,2053	0,082	0,429	2873	getriggert	
V31	1026	2893	2030	50	0,401	0,42	0,0282	2222	getriggert	
V32	1033	3053	2070	50	0,373	0,340	-*	313	getriggert	* keine Messung
V33	1043	2923	2050	50	0,05	0,05	-*	2604	getriggert	* keine Messung
V34	1100	2933	2090	50	0,425	0,604	-*	334	getriggert	* keine Messung

Versuchs-Nr.	T <sub>Na</sub> (K)	T <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> (K)	T <sub>I</sub> (K)	t <sub>Na</sub> (ms)	R.-Druck DA - oben (MPa)	R.-Druck DA - unten (MPa)	R.-Druck DA - TA (MPa)	Verzögerung (µs)	Reaktionsart	Bemerkungen
V35	1047	2983	2060	75	0,23	0,168	.*	2939	getriggert	* keine Messung
V36	1071	3093	2110	75	0,51	0,461	.*	464	getriggert	* keine Messung
V37	1091	2973	2110	75	0,68	0,665	.*	406	getriggert	* keine Messung
V38	1113	3073	2115	75	0,67	0,74	.*	259	getriggert	* keine Messung
V39	1113	3133	2150	> 100	.*	-	-	-	spontan	* keine Messung
V40	1127	3063	2150	125	0,38	0,61	> 0,5	-	spontan	
V41	1115	3013	2120	81	0,63	0,79	> 1,0	-	spontan	
V42	1055	3088	2100	.*	-	-	-	-	spontan	* keine Messung
V43	1043	3023	2070	8	-	-	-	-	keine	erstarrter Tropfen <sup>f</sup>
V44	1063	2923	2070	.*	-	-	-	-	spontan	
V45	1051	2953	2060	> 80	.*	-	-	-	spontan	* keine Messung
V46	1143	3013	2150	120	0,82	0,83	2,4	-	spontan	
V47	1126	3033	2140	> 95	.*	-	-	-	spontan	* keine Messung
V48	1123	3078	2140	35	0,31	0,22	0,59	-	spontan	
V49	1133	2873	2110	.*	-	-	-	-	spontan	* keine Messung

## 2. Thermophysikalische Eigenschaften der Versuchsmaterialien

	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Na
Schmelzpunkt ( K )	2318	371
Siedepunkt ( K )	3260	1151
kritische Temperatur ( K )		2503
therm. Leitfähigkeit ( W/m K )	6	54 bei T=1070 K
spez. Wärme ( KJ/Kg K )	1.46	1.26
Dichte ( Kg/m <sup>3</sup> )	3200	756
dyn. Viskosität ( Ns/m <sup>2</sup> )		0.16
Verdampfungswärme ( KJ/Kg )		4000
Oberflächenspannung ( N/m )	0.612	0.14

## APPENDIX B

### Technische Realisierung der Schmelzeinrichtung

Die Aufheizung des Rheniumstrahlungssofens bzw. der Schmelztiegel basiert auf dem Prinzip des ohmschen Widerstandes. Die erforderliche elektrische Energie wird an einem Stelltransformator mit einer sinusförmigen Anschlußleistung (200 kVA, 50 Hz) abgegriffen. Der in Abb. A.1 stark vereinfacht dargestellte Wirkschaltplan der elektrischen Anlage wird in einen Leistungsteil, einen Steuer- und Regelteil und in eine Momentanmeßwertdatenerfassung zur Darstellung, Überwachung und Einstellung veränderlicher Verfahrensgrößen unterteilt.

#### - Leistungsteil

Die Befehlsstruktur der Leistungszuschaltung erfolgt über das Steuerfeld (13.-14.), der Geräteanordnung (1.-2.-4.-5.) und dem Experimentieranschluß (6.-7.-8.). Mit dem veränderbaren Vorwiderstand (7.) wird der experimentelle Gesamtwiderstand an die Transformator Kennlinie angepaßt und gleichzeitig das statische Eigenverhalten des Stelltransformators (3.) verbessert.

#### - Steuer und Regelteil

Die manuelle oder automatische Einstellung der Betriebsart des Stelltransformators (3.) ist am Steuerfeld (13.-14.) wählbar. Die manuelle Ansteuerung ist ein digitales Verfahren der Spannungsgröße und wird vom Steuerfeld (14.) aus geregelt. Die automatische Ansteuerung erfolgt über ein analoges, lineares Verfahren und wird durch eine transiente experimentierbezogene Bezugsspannung am Leistungsanzeigefeld (12.) vorgegeben. Nach Erreichen der Einstellgröße ist der Regelvorgang abgeschlossen.

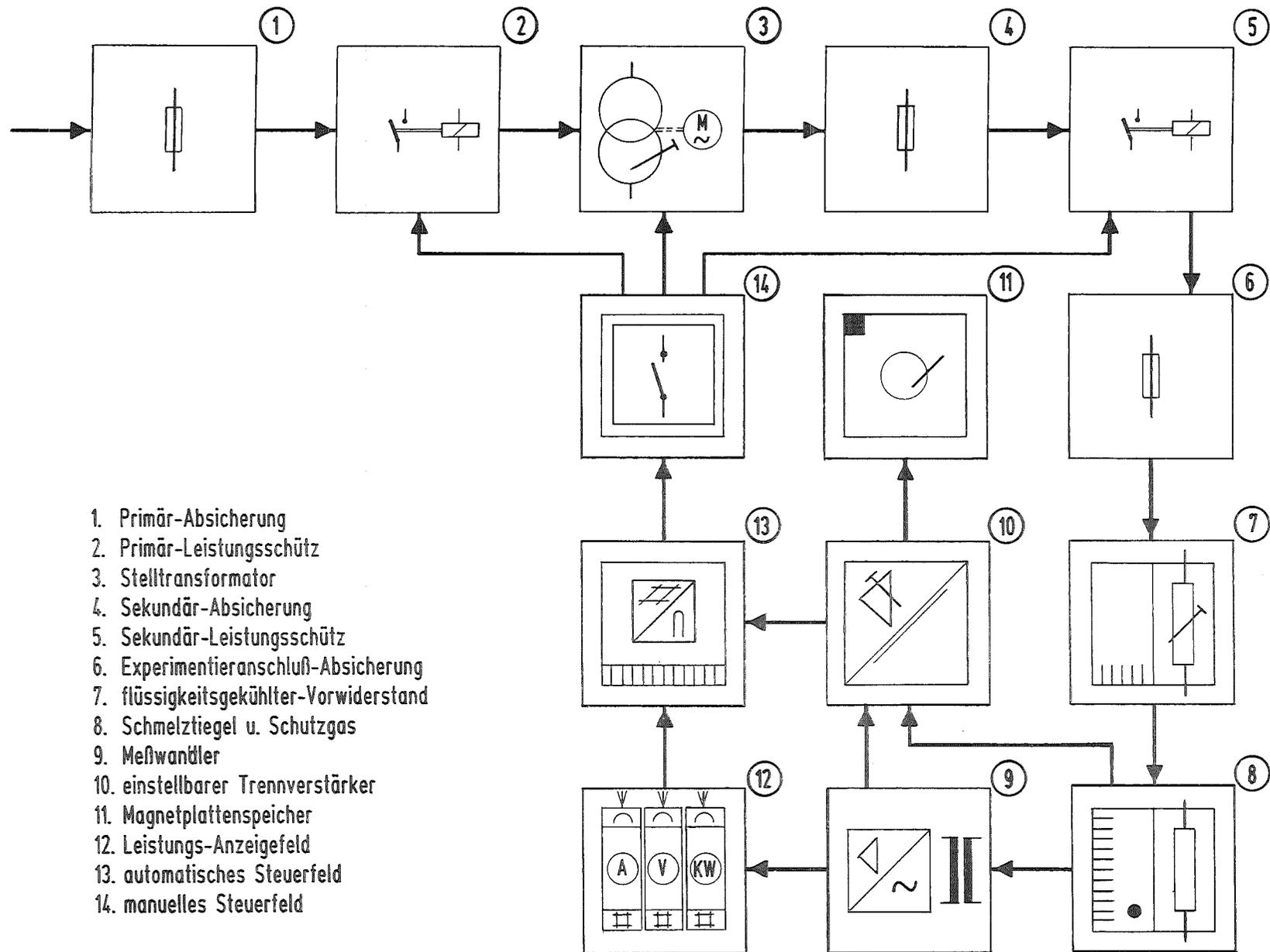


Abb. B.1 Wirkschaltplan der elektrischen Anlage

- Meßwerterfassung

Die physikalischen Meßgrößen können mit Hilfe eines Trennverstärkers (10.) und Meßwandlers (9.) auf einem Magnetplattenspeicher gespeichert werden. Gleichzeitig können zugeordnete Parallelabgriffe zur Regelung, Überwachung und Einstellung der experimentellen Versuchsgrößen über das Anzeigefeld (12.) bzw. Steuerfeld (13.) verwendet werden.

APPENDIX C

Korrektur der HENRY-Korrelation hinsichtlich des Strahlungseinflusses

Im folgenden soll eine Korrektur der HENRY-Korrelation, unter Berücksichtigung der Strahlung, angegeben werden /52/. In die HENRY-Gleichung (5-1) wird auf folgende Weise die Strahlung eingeführt. Man definiert den Wärmeübergang zwischen der Wand und der Phasengrenzfläche zu

$$\alpha_H = \frac{\dot{q}''_{\min}}{T_{\min, H} - T_{\text{sat}}} \quad (\text{C-1})$$

Zur Bestimmung von  $\dot{q}''_{\min}$  dient eine Kombination der Nusselt-Beziehung für die Naturkonvektion /49/

$$Nu = 0,75 (Gr \cdot Pr^2)^{1/4} \quad (\text{C-2})$$

mit den Meßergebnissen von Farahat /49/, so daß gilt:

$$\dot{q}'' = (19,9 + 1,08 \cdot \Delta T_{\text{sub}}) \cdot e^{-c_6 \cdot \Delta T_{\text{sub}}^2} + (1 - e^{-c_6 \cdot \Delta T_{\text{sub}}^2}) c_5 \cdot \Delta T_{\text{sub}}^{1,25} \quad (\text{C-3})$$

Die Konstante  $c_5$  ist von den Stoffwerten des Kühlmittels und der Geometrie abhängig:

$$c_5 = 0,75 \lambda_{\text{liq}} \left( \frac{g \beta}{D \nu_{\text{liq}}} \right)^{1/4} \cdot Pr^{1/2} \quad (\text{C-4})$$

$c_6$  wurde so gewählt, daß Gleichung (C-3) die Meßergebnisse von Farahat in der Nähe der Sättigungstemperatur gut wiedergibt,

$c_6 = 10^{-5} \text{ 1/K}^2$ . Zur Bestimmung von  $\alpha_{tot}$  wird der Strahlungswärmeübergangskoeffizient  $\alpha_{str}$  zu  $\alpha_H$  hinzuaddiert.

$$\alpha_{tot} = \alpha_H + \alpha_{str} \quad (C-5)$$

mit

$$\alpha_{str} = \frac{\sigma_{\text{Boltem.}}}{\frac{1}{\epsilon_{Al_2O_3}} + \frac{1}{\epsilon_{Na}} - 1} \cdot \frac{T_w^4 - T_{sat}^4}{(T_w - T_{sat})} \quad (C-6)$$

Die Beziehung für  $\alpha_{str}$  erhält man unter der Annahme, daß das Verhältnis von Dampffilmdicke zu Tropfenradius sehr klein ist und man den Strahlungsaustausch wie im Fall zweier unendlich ausgedehnter, grauer Platten berechnen kann.

Mit

$$\dot{q}''_{tot} = \alpha_{tot} (T_w - T_{sat}) \stackrel{!}{=} \dot{q}''_{min} \quad (C-7)$$

erhält man eine weitere Gleichung, sodaß  $T_w$  bestimmt werden kann. Bevor (C-7) mit einem "Trial and Error"-Verfahren gelöst werden kann, sind noch einige Umformungen notwendig. Einsetzen von (C-1) und (C-5) in (C-7) ergibt

$$\dot{q}''_{min} = \frac{\dot{q}''_{str} (T_{min,H} - T_{sat})}{(T_{min,H} - T_{sat}) - (T_w - T_{sat})} \quad (C-8)$$

Mit

$$C_7 = \frac{\dot{q}''_{str}}{\dot{q}''_{min}} \quad (C-9)$$

folgt daraus

$$c_7 = 1 - \frac{T_w - T_{\text{sat}}}{T_{\text{min},H} - T_{\text{sat}}} \quad (\text{C-10})$$

Gleichung (C-10) nach  $T_w$  aufgelöst ergibt:

$$T_w = (1 - c_7) (T_{\text{min},H} - T_{\text{sat}}) + T_{\text{sat}} \quad (\text{C-11})$$

Gleichung (C-11) in (C-9) eingesetzt, ergibt letztendlich:

$$\dot{q}''_{\text{min}} \cdot c_7 = \dot{q}''_{\text{str}} = \alpha_{\text{str}} \left[ \left\{ (1 - c_7) (T_{\text{min},H} - T_{\text{sat}}) + T_{\text{sat}} \right\}^4 - T_{\text{sat}}^4 \right] \quad (\text{C-12})$$

Für eine gegebene Unterkühlung  $\Delta T_{\text{sub}}$  steht  $\dot{q}''_{\text{min}}$  nach Gleichung (C-3) fest.  $c_7$  kann durch "Probieren" gefunden werden, um mit Gleichung (C-10) die gesuchte, korrigierte Wandtemperatur  $T_w$  zu berechnen.

## APPENDIX D

### Mathematische Beschreibung des Dampffilmkollapsmodells

Ein starrer, kugelförmiger Körper taucht in eine unterkühlte Flüssigkeit ein und ist unmittelbar danach aufgrund seiner Anfangstemperaturen vollständig von einem Dampffilm umgeben. Nach einer bestimmten Fallzeit im Kühlmittel wird durch eine sprunghafte Systemdruckerhöhung der Dampffilm um den Körper zum Kollabieren gebracht.

Zur analytischen Beschreibung der zweidimensionalen, instationären Phasengrenzflächenbewegung wird das numerische Verfahren der "Globalen Kollokation" angewendet /64/, /65/. Die globale Kollokationsmethode wurde in diesem physikalischen Zusammenhang erstmals von Zijl /64/ zur näherungsweise Beschreibung des Zerfalls- und Wachstumsvorganges einer anfänglich kugelförmigen Dampf- und Gasblase angewendet. Mit Hilfe dieses Verfahrens wird eine Lösung der in Frage kommenden Erhaltungsgleichungen an den Kollokationspunkten der Phasengrenze Dampf-Flüssig herbeigeführt. Die Beschreibung der instationären Grenzflächenbewegung wird für eine horizontal-rotationssymmetrische Dampfblase um einen Körper angegeben. Die Anfangsbedingungen gelten für eine unendlich ausgedehnte, inkompressible, reibungsfreie Flüssigkeit. Die Kompressibilität des Dampfes oder Gases wird bei der Rechnung berücksichtigt. Unter diesen genannten Voraussetzungen, und der Annahme vollständiger Wirbelfreiheit ( $\vec{\omega} = 0$ ), kann man die Gesetze der Potentialstörungen inkompressibler Flüssigkeiten anwenden. Anstelle der Geschwindigkeit muß nun das Potential  $\phi$  aus den Erhaltungsgleichungen bestimmt werden. Da die Impulsgleichung bereits durch die Bedingung  $\vec{\omega} = 0$  erfüllt ist, ist die Kontinuitätsgleichung Bestimmungsgleichung für  $\phi$ . Einsetzen ergibt:

$$\nabla^2 \phi = 0 \quad (D-1)$$

Kombiniert man die Laplace'sche Gleichung für die Oberflächenspannung mit der Bernoulli-Gleichung für den Flüssigkeitsdruck an der Phasengrenzfläche, so erhält man, in Kugelkoordinaten ausgedrückt, die dynamische Randbedingung für den Druck:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} (\Delta p, \rho, \sigma, R, \psi) = 0 \quad (D-2)$$

Aus (D-2) erhält man die zeitabhängige Lösung des Geschwindigkeitspotentials  $\phi_i(t) = \phi(R_i(t), \psi_i)$  mit Hilfe der numerischen Integration

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} \Big|_{\psi_i} = \frac{\partial \phi}{\partial t} \Big|_{\psi_i} + \left[ \frac{dR}{dt} \cdot \frac{\partial \phi}{\partial r} \right] \Big|_{\psi_i} \quad (D-3)$$

an den sogenannten Kollokationspunkten  $N$ , von denen jeder durch den entsprechenden Kollokationswinkel  $\psi_i$  bestimmt ist, siehe Abb. D.1. Die Bewegung der Phasengrenzfläche, entsprechend  $R_i(t) = R(\psi_i, t)$ , folgt aus der kinematischen Randbedingung, die die Erhaltung der Masse über die bewegende Grenzfläche beschreibt:

$$\frac{dR}{dt} \Big|_{\psi_i} = \frac{\partial \phi}{\partial r} \Big|_{\psi_i} + \left[ \frac{1}{R^2} \cdot \frac{\partial \phi}{\partial \psi} \frac{\partial R}{\partial \psi} \right] \Big|_{\psi_i} \quad (D-4)$$

Gleichung (D-1) sowie die in (D-3) und (D-4) formulierten Randbedingungen werden in Kombination mit dem entsprechenden Gas-, bzw. Dampfdruck gelöst, um die Grenzflächenkontur zu den entsprechenden Zeitschritten zu bestimmen.

Die Lösung von (D-1) hat folgende Form:

$$\phi_i(t) = \sum_{k=0}^{N-1} \left[ \frac{1}{R_i(t)} \right]^{k+1} a_k(t) P_k(\cos \psi_i) \quad (D-5)$$

wobei  $P_k$  die Legendre-Polynome der Ordnung Null und Grad  $k$  darstellen und  $\cos \psi_i$  durch die Nullstellen von  $P_N(\cos \psi_i)$  vorge-

geben sind. Auch  $R$  wird in Legendre Polynomen approximiert und lautet:

$$R_i(t) = \sum_{k=0}^{N=1} b_k(t) \cdot P_k(\cos \psi_i) \quad (D-6)$$

Die erhaltene Matrix aus Gleichung (D-5) und (D-6) wird für jeden Zeitschritt mit Hilfe einer numerischen Standard-Routine gelöst/67/.

Es gelten folgende Anfangsbedingungen:

$$\phi_i(0) = 0 \quad ; \quad R_i(0) = R(0) \quad (D-7)$$

- Formulierung der rückstellenden Kräfte infolge des Dampfdruckes im Film

Im Falle eines asymmetrischen Dampfblasenkollapses um einen Tropfen findet eine azimuthale Dampfströmung, entsprechend dem Druckgradienten  $\partial p / \partial \psi_i$ , im Dampffilm statt Abb D.2. Dieser Gradient kann unter der Annahme einer Laminar- oder Schichtenströmung mit Hilfe der Hagen-Poiseuille'schen-Gesetze approximiert werden. Die ringförmige Gas-, Dampfschicht wird durch  $h_i = h(l_i, t) = S(\beta_i, t) S(\beta_i) = S_i - s_i$  begrenzt. Für den resultierenden Druckgradienten erhält man folgende Beziehung:

$$\left. \frac{\partial p}{\partial l} \right|_{l_i} = \frac{12 \eta \bar{u}_i}{h_i^2} \quad ; \quad i = 0(1)_{N-1} \quad (D-8)$$

mit  $\bar{u}_i = \bar{u}(l_i, t)$  als mittlere azimuthale Dampfgeschwindigkeit.

Für  $\bar{u}_i$  läßt sich auch schreiben:

$$\bar{u}_i = - \frac{\dot{V}_i}{A_i} \quad (D-9)$$

mit  $\dot{V}_i = \dot{V}(l_i, t)$  und  $A_i = A(l_i, t)$

Gleichung (D-9) in (D-8) eingesetzt ergibt:

$$\left. \frac{\partial p}{\partial l} \right|_{l_i} = \frac{12 \cdot \eta \cdot \dot{V}_i}{h_i^2 A_i} \quad (D-10)$$

Durch Integration von (D-10) erhält man für den Druck  $p_i$  im Dampffilm:

$$p_i = p_0 - \frac{1}{2} \sum_{k=1}^i \left\{ \left( \frac{\partial p}{\partial l} \right)_{\beta_k} + \left( \frac{\partial p}{\partial l} \right)_{\beta_{k-1}} \right\} (l_{k-1} - l_k) \quad (D-11)$$

mit

$$p_0(t) = p_0(0) \quad (D-12)$$

und der Symmetriebedingung

$$\left. \frac{\partial p}{\partial l} \right|_{\beta=0} = \left. \frac{\partial p}{\partial l} \right|_{\beta=\delta} = 0 ; t \geq 0 \quad (D-13)$$

Die Gleichungen (D-11 - D-13) werden im Falle reinen Dampfes numerisch integriert, um  $\Delta p$  aus Gleichung (D-12) bestimmen zu können.

In einigen Berechnungen, in denen angenommen wurde, daß um den

Tropfen sich anstelle von Dampf Inertgas befindet, wurde Gleichung (D-12) durch die Isentropenbeziehung ersetzt:

$$p_0(t) = p_0(0) \left\{ \frac{V_{N-1}(0)}{V_{N-1}(t)} \right\}^{\kappa} \quad (\text{D-14})$$

mit einem Isentropenkoeffizient von

$$\kappa = 1,4 \quad (\text{D-15})$$

Die numerischen Integration von Gleichung (D-3) und (D-4) wird mit Hilfe des Adams & Bashfort-2 /67/ Algorithmus durchgeführt wobei der Gradient aus dem vorhergehenden Zeitschritt wie folgt berücksichtigt wird, z.B. für Gleichung (D-3):

$$\phi_i(t) = \phi(t - \Delta t) + 0,5 \left\{ 3 \cdot \frac{\partial \phi_i}{\partial t} \Big|_t - \frac{\partial \phi_i}{\partial t} \Big|_{t - \Delta t} \right\} \cdot \Delta t \quad (\text{D-16})$$

In folgenden Literaturstellen wird ausführlicher auf die mathematischen Verfahren und Algorithmen eingegangen: /26/, /64/, /65/, /73/, /74/, /75/.

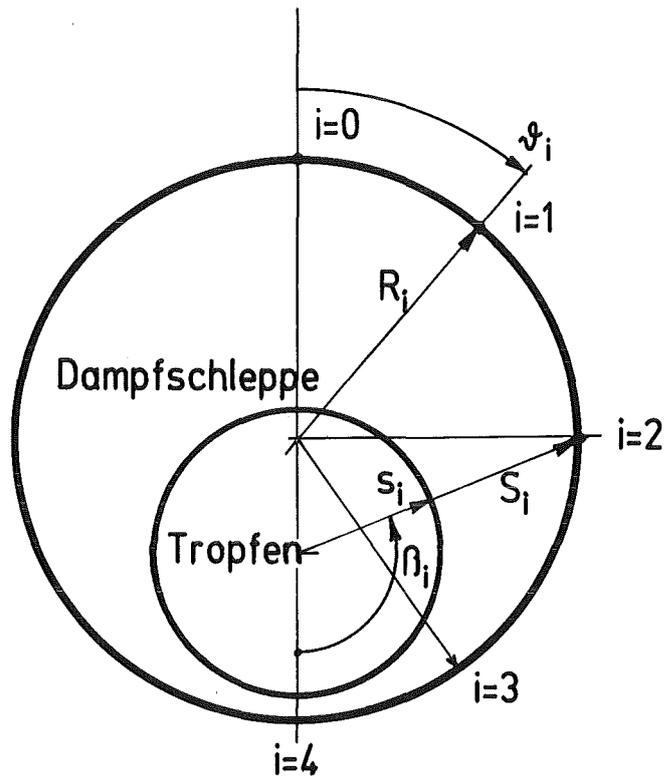


Abb. D.1 Modellvorstellung zur Kollokationsmethode, hier mit fünf Kollokationswinkeln

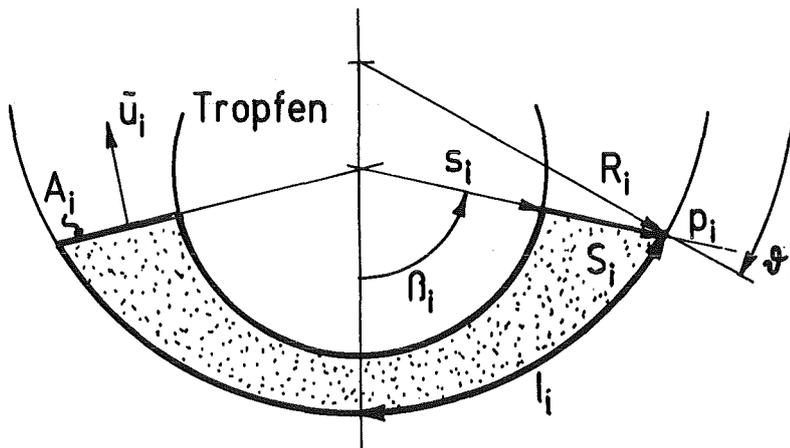


Abb. D.2 Modellvorstellung der Dampfströmung im Film

APPENDIX E

Einfluß der Marangoni-Instabilität auf die thermische Wechselwirkung

In Kapitel 6.1.2 wird eine Vorvermischung der heißen und kalten Komponente infolge Marangoni-Instabilitäten an der Schmelzoberfläche in Betracht gezogen. Nachfolgende Überlegungen sollen diese besondere Art der Oberflächenturbulenz etwas näher erläutern und im Hinblick auf eine Anfachung einer thermischen Wechselwirkung diskutieren.

Abb. E.1 zeigt schematisch die grundlegenden Zusammenhänge bei der Herleitung der Marangoni-Instabilität. Infolge der partiellen, hohen Wärmeübergänge bei der Annäherung der Phasengrenzfläche an die Tropfenoberfläche, sinkt die Oberflächentemperatur des Tropfens an den "Kontaktstellen" unter die Anfangstemperatur  $T_0$ . Die dadurch hervorgerufene Erhöhung der Oberflächenspannung,  $\sigma = \sigma(T)$ , bewirkt eine Grenzschichtbewegung im Tropfen der Dicke  $\delta$  in Richtung des "Kontaktpunktes" /72/, Abb. E.2 .

Für den Marangoni-Effekt gilt:

$$\frac{\Delta \sigma}{\ell} \approx \tau \approx \zeta \frac{u}{\delta} \quad (\text{E-1})$$

Weiterhin ist

$$\delta \approx (\nu t)^{1/2} \approx (\nu \ell / u)^{1/2} \quad (\text{E-2})$$

"t" entspricht der benötigten Zeit für die Bildung eines Mikrojets.

Gleichung (E-2) in (E-1) eingesetzt und nach der Geschwindigkeit u aufgelöst ergibt:

$$u \approx (\Delta \sigma)^{2/3} \cdot (\zeta \rho \ell)^{-1/3} \quad (\text{E-3})$$

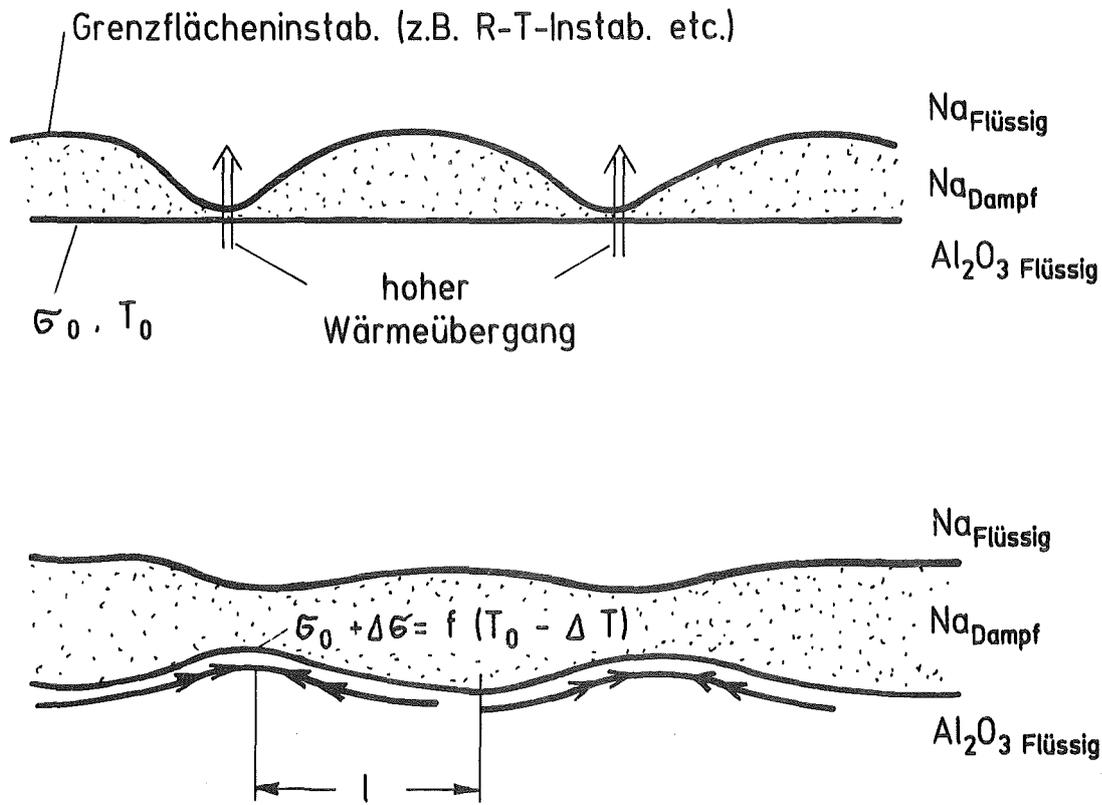


Abb. E.1 Schematische Darstellung der Oberflächenturbulenz infolge Marangoni-Instabilitäten

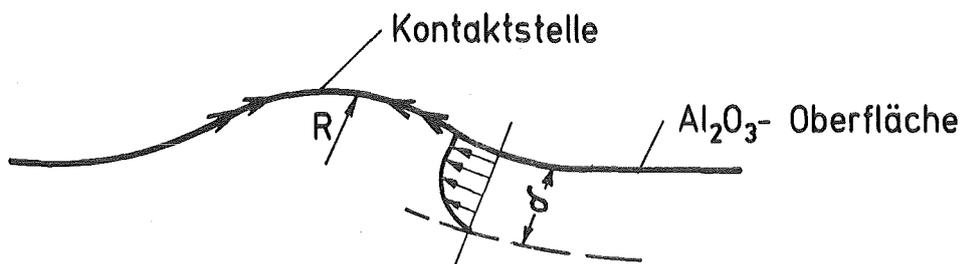


Abb. E.2 Geschwindigkeitsverteilung in der Grenzschicht der Dicke  $\delta$

Definiert man die treibende Druckdifferenz mit

$$\Delta p \cong \frac{1}{2} \rho u^2 \quad (\text{E-4})$$

so ergibt sich für die entgegen der Oberflächenspannung entstehende Ausbeulung an der Tropfenoberfläche

$$\frac{\Delta \sigma}{\frac{1}{2} R_{\min}} \cong \Delta p \quad (\text{E-5})$$

folgender minimale Radius

$$R_{\min} \cong \frac{2 \cdot \Delta \sigma}{\Delta p} \quad (\text{E-6})$$

Im folgenden sollen in zwei Beispielrechnungen mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - und Fe - Schmelzen die Möglichkeiten einer solchen Oberflächenturbulenz diskutiert werden.

Folgende Randbedingungen werden zugrundegelegt:

Anfangstemperatur der $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schmelze:	$T_0 = 3000 \text{ K}$
Veränderung der Oberflächenspannung aufgrund der sinkenden Temperatur:	$\Delta \sigma = 25\% \cdot \sigma_0$
Anfangswert der Oberflächenspannung:	$\sigma_0 = 0.46 \text{ N/m}$

Mit einer Wellenlänge  $\lambda$  für die Störung von  $\lambda = 1 \text{ mm}$  erhält man für die Geschwindigkeit  $u$ :

$$u_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 1.12 \text{ m/s} \quad \text{mit } \eta_0 = 3,9 \cdot 10^{-3} \text{ Ns/m} \text{ und } \rho_0 = 2400 \text{ kg/m}^3$$

Für  $\Delta p$  erhält man:

$$\Delta p = 1,51 \cdot 10^3 \text{ N/m}^2$$

Daraus ergibt sich für den Radius  $R_{\min}$ :

$$R_{\min} = 153 \mu\text{m}$$

Für die Fe-Schmelze erhält man mit  $T_0 = 2000 \text{ K}$ ,  $\sigma_0 = 1,69 \text{ N/m}$ ,  
 $\eta_0 = 3,95 \cdot 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$ ,  $\rho_0 = 6900 \text{ kg/m}^3$

einen minimalen Radius für die Ausbeulung an der Tropfenoberfläche:

$$R_{\min} = 70 \mu\text{m}$$

Diese, in relativ vereinfachter Modellvorstellung vollzogene Abschätzung zeigt, daß durch den Marangoni-Effekt verursachte Störungen an der Tropfenoberfläche durchaus denkbar sind. Dieser Oberflächeneffekt hat darüberhinaus selbsteskalierenden Charakter, da nach der ersten Bildung einer "Ausbuchtung" der Abstand zwischen Schmelzeoberfläche und Phasengrenzfläche verringert wird und Wärme wieder in verstärktem Maße über die Grenzfläche transportiert werden kann. Dieser Wärmeübergang facht die Bewegung erneut an und erhöht auf diese Weise wieder die Turbulenz an der Tropfenoberfläche, siehe hierzu die Beobachtungen von Ando /5/ in den Kupfer-Wasser Experimenten.

APPENDIX F

Makro- bzw. REM - Aufnahmen der Fragmente

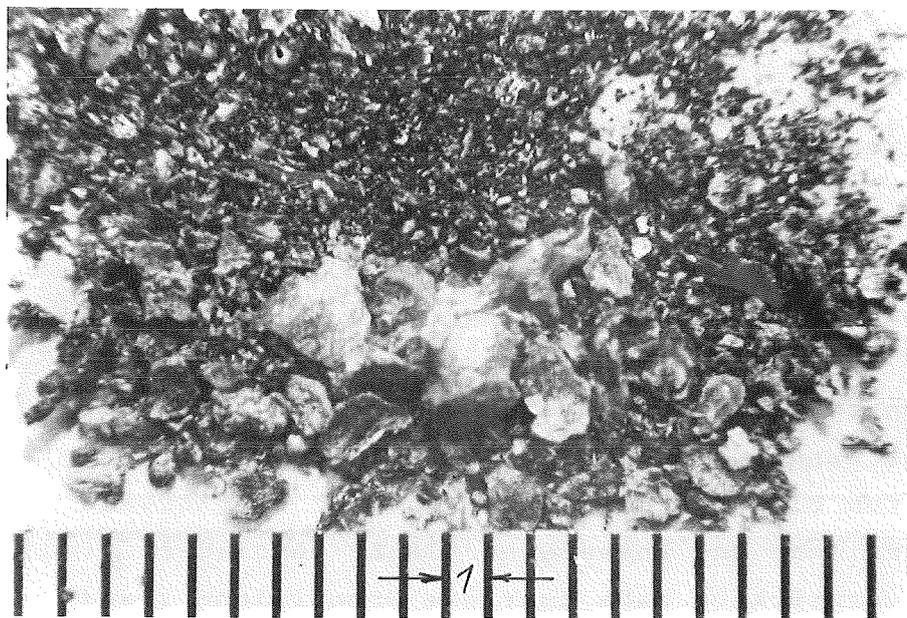


Abb. F.1 Makroaufnahme der Fragmente, Versuch V15

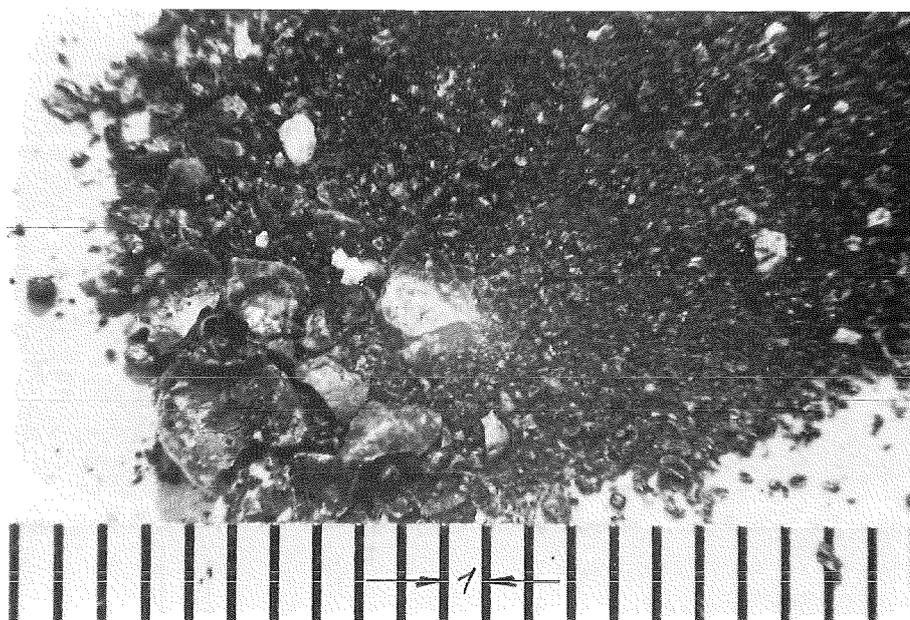


Abb. F.2 Versuch V19



Abb. F.3 Versuch V20

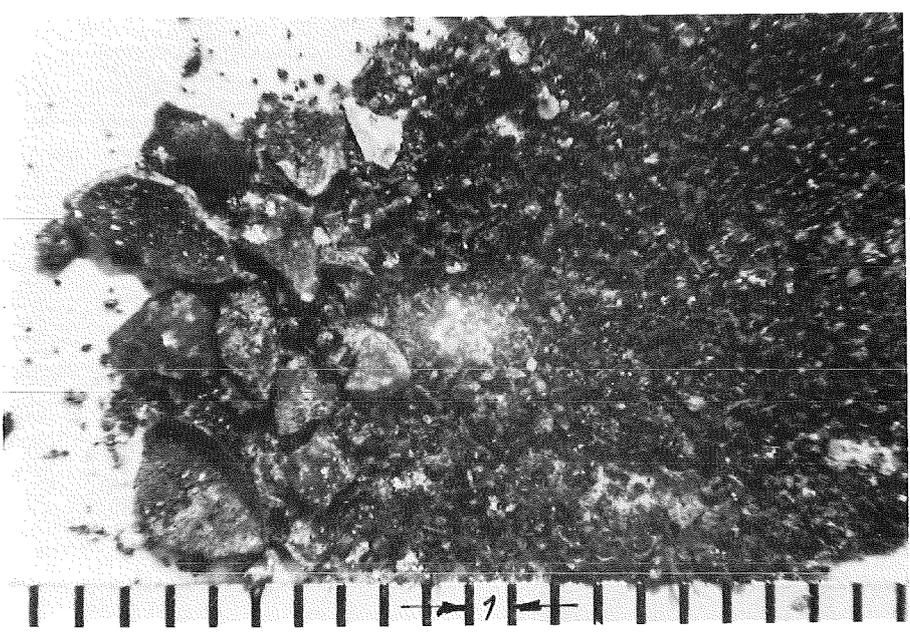
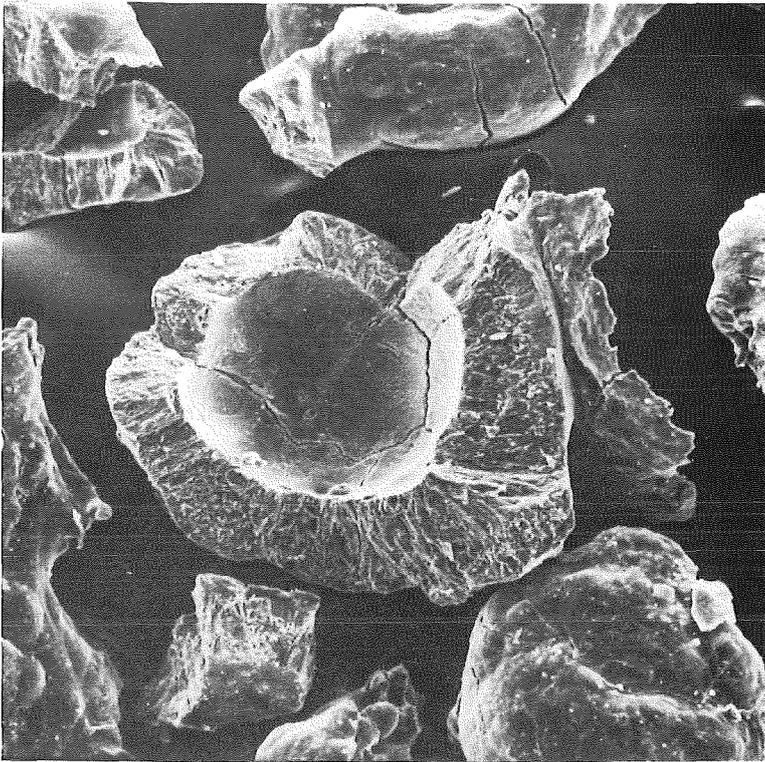
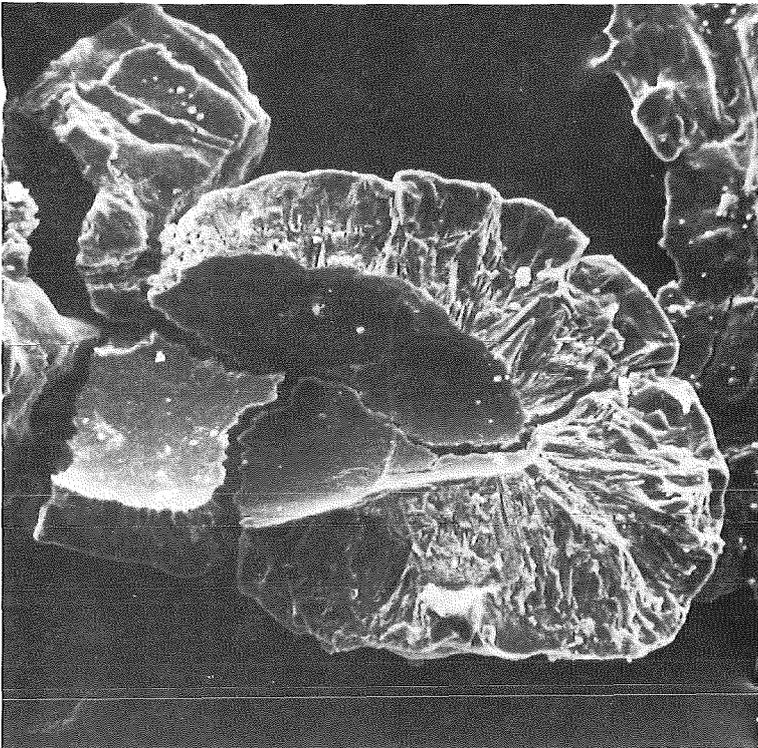


Abb. F.4 Versuch V23



0,1  
┌───┐

Abb. F.5 Elektronenmikroskopische Aufnahmen der Fragmente, V3



0,1  
┌───┐

Abb. F.6 Versuch V3

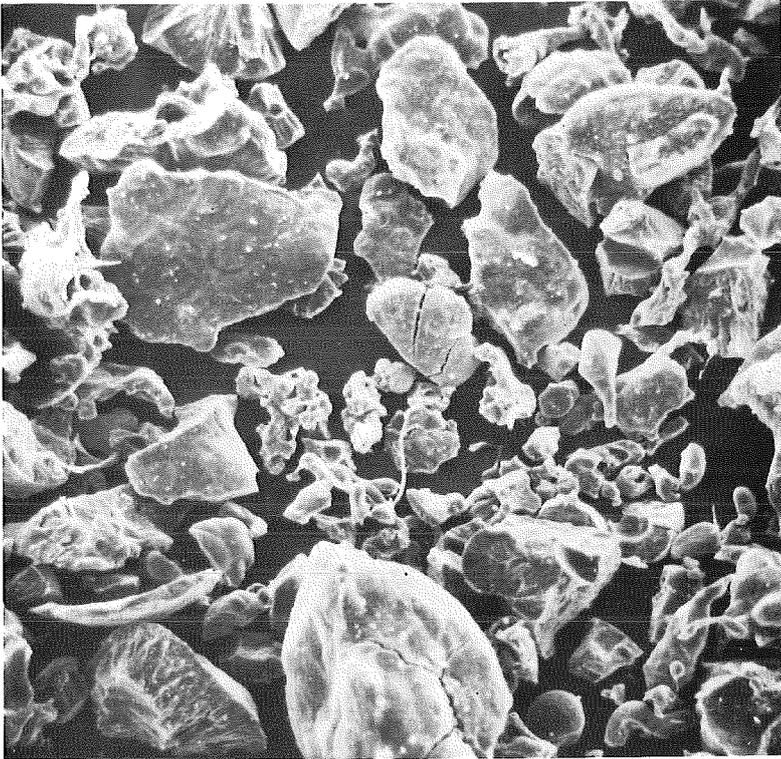


Abb. F.7 Versuch V16

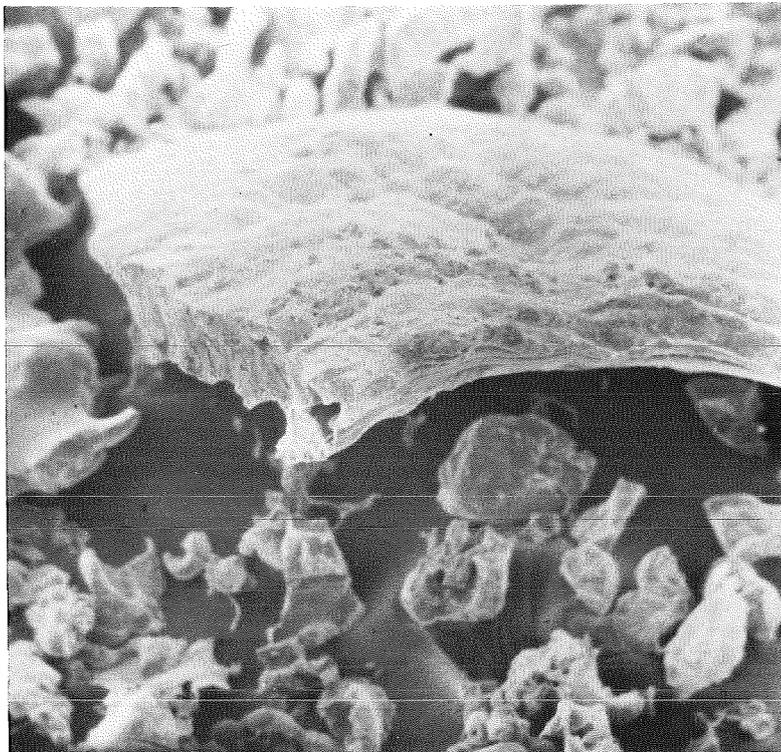
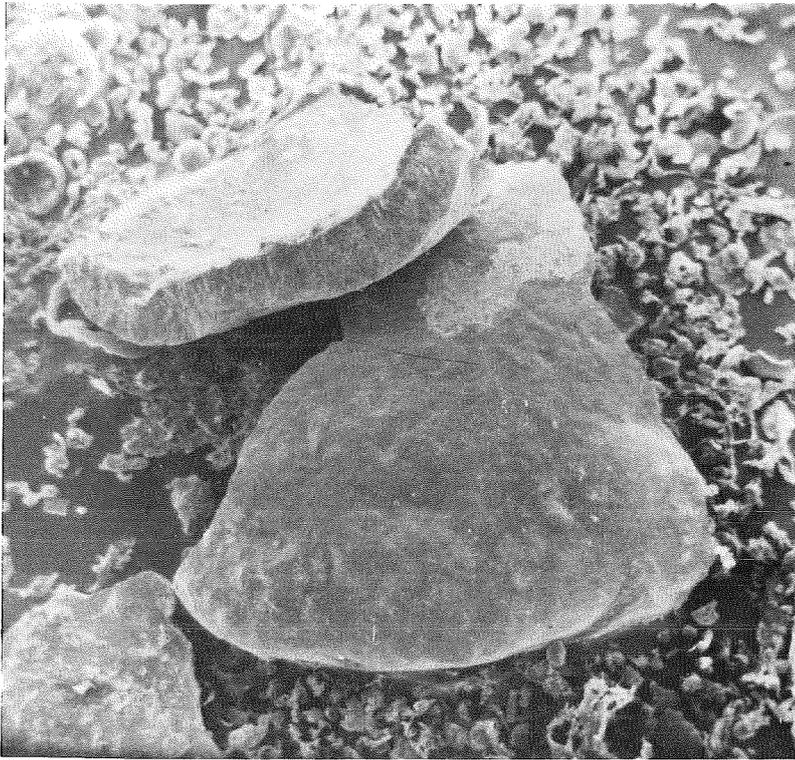
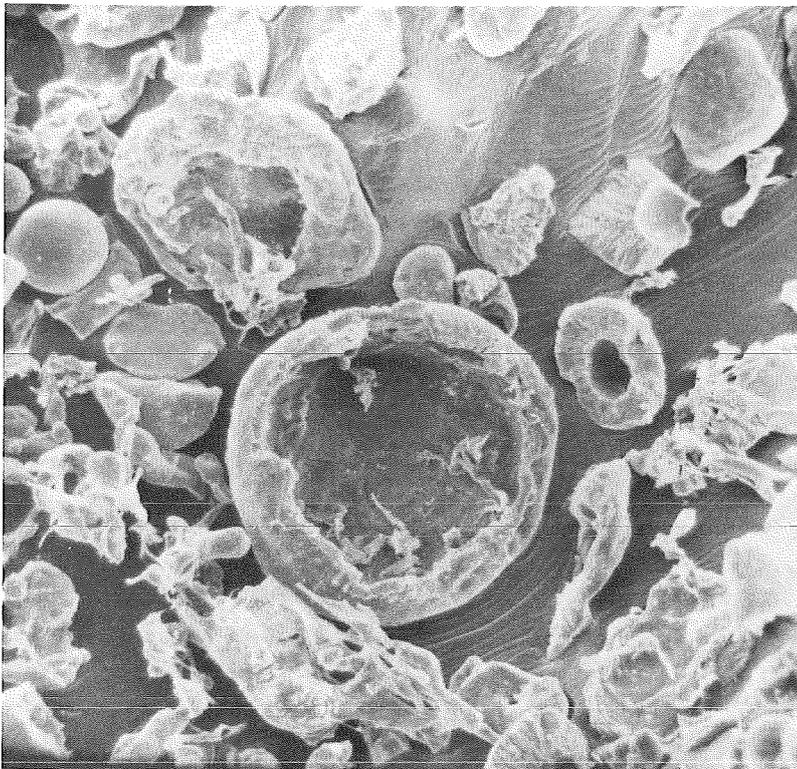


Abb. F.8 Versuch V16



1  
|-----|

Abb. F.9 Versuch V24



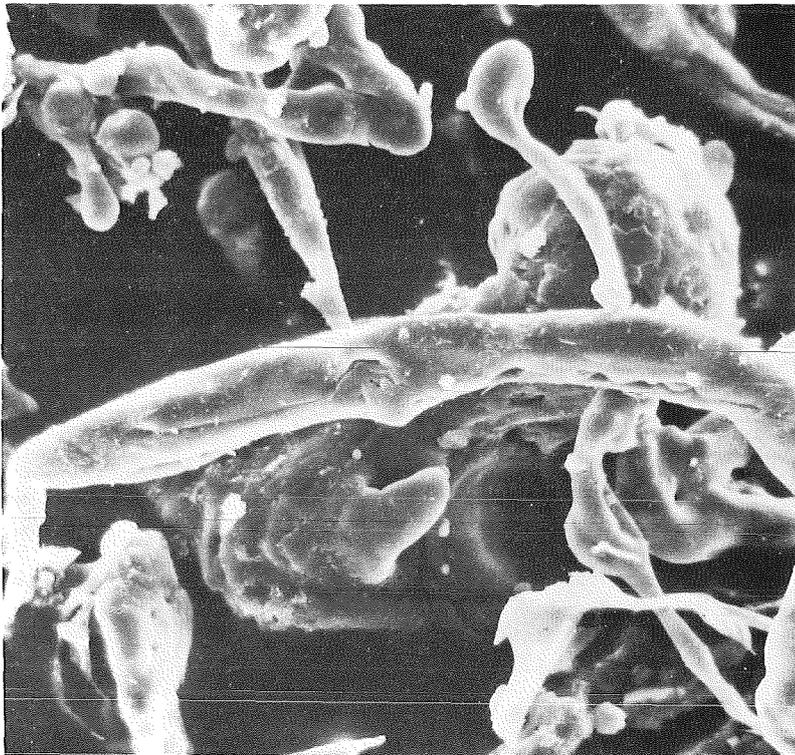
0,1  
|-----|

Abb. F.10 Versuch V24



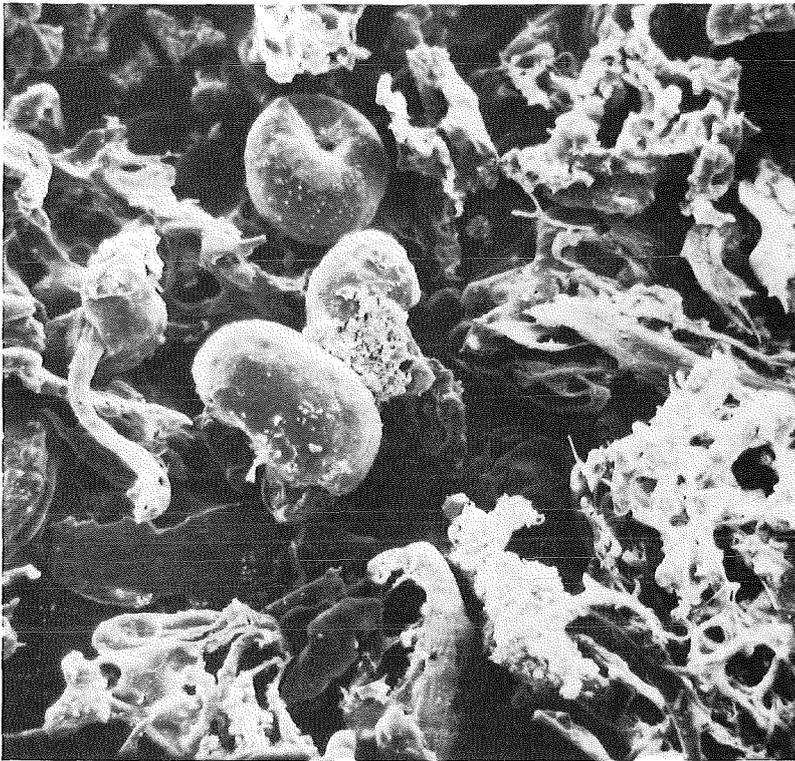
0,2  
|

Abb. F.11 Versuch V30



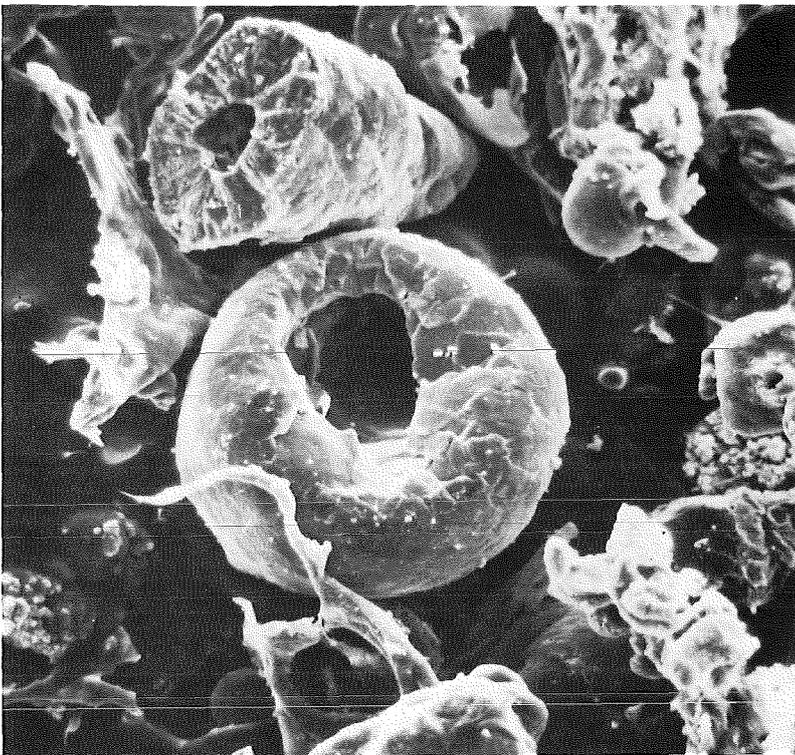
0,2  
|

Abb. F.12 Versuch V30



0,1

Abb. F.13 Versuch V31



0,1

Abb. F.14 Versuch V31