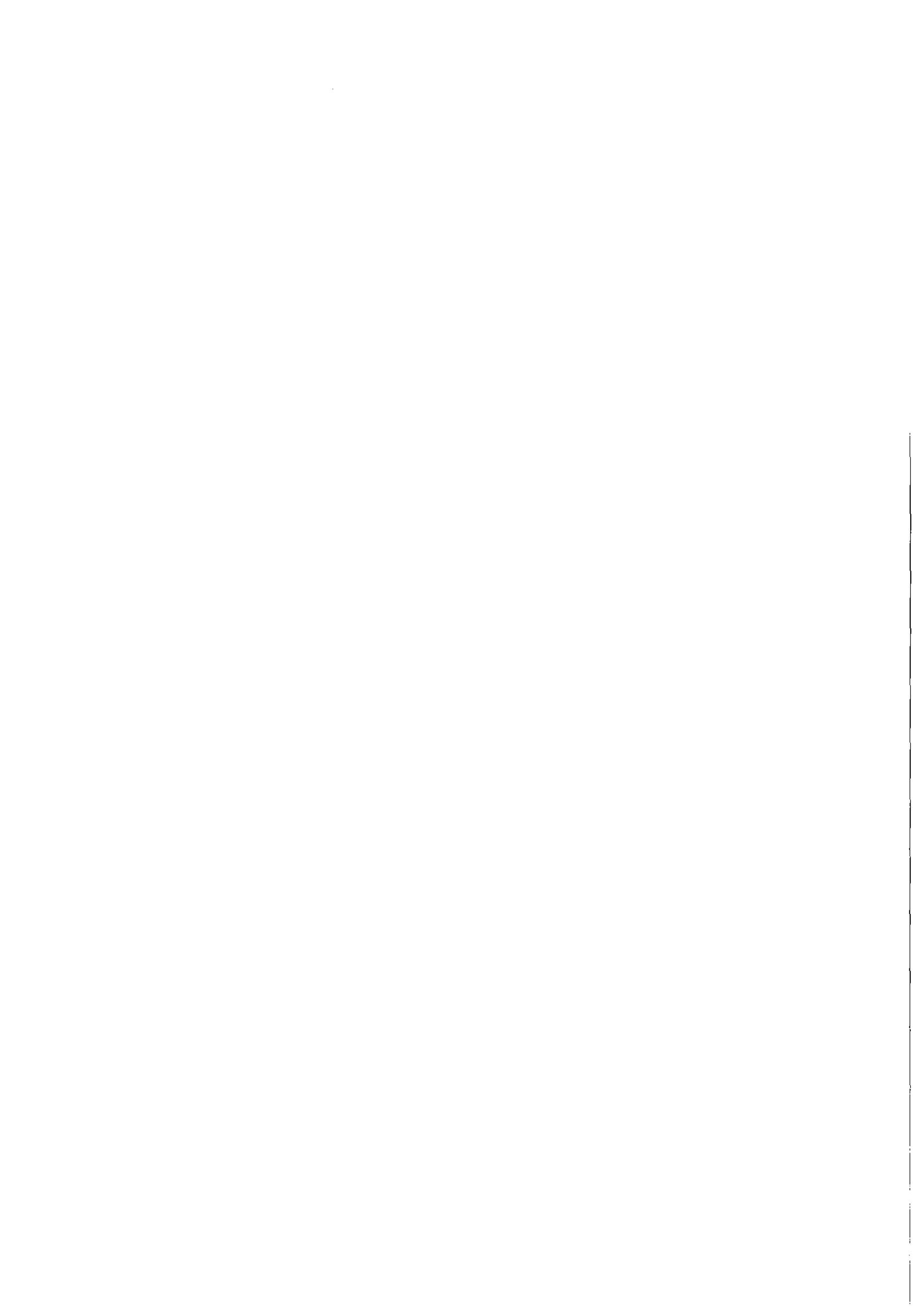


KfK 3041
August 1983

Die Natrium-Brandversuche in der FAUNA-Anlage auf Brandflächen bis 12 m²

**W. Cherdron, S. Jordan
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik
Projekt Schneller Brüter**

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik
Projekt Schneller Brüter

KfK 3041

Die Natrium-Brandversuche in der FAUNA-Anlage
auf Brandflächen bis 12 m²

W. Cherdron, S. Jordan

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003**

Zusammenfassung

Die Versuchsanlage FAUNA wurde 1979 in Betrieb genommen. Sie dient der Untersuchung großflächiger Natriumbrände in geschlossenen Containments sowie der Untersuchung der Erzeugung, des Verhaltens und der Abscheidung von Natriumbrandaerosolen. In diesem Bericht werden die Versuchsergebnisse der sechs Natriumflächenbrände beschrieben, die mit bis zu 500 kg Natrium in 2 m², 5 m² bzw. 12 m² großen Brandpfannen durchgeführt wurden. Es wurden sowohl die thermodynamischen Daten als auch die reaktionskinetischen Daten bei den Bränden ermittelt. Darüber hinaus wurde das Verhalten der freigesetzten Aerosole während und nach dem Brand untersucht. Aufgrund von Messungen der Temperaturprofile in verschiedenen Ebenen oberhalb der Brandflächen konnte gezeigt werden, daß sich die Konvektionsströmungen oberhalb verschieden großer Brandflächen in geschlossenen Containments wesentlich unterscheiden und offensichtlich Einfluß auf den Brandablauf und die Partikelfreisetzung haben. Während bei kleineren Bränden das Gas oberhalb der Pfanne kaminartig aufsteigt und an den Wänden zurückströmt, ist bei einem flächendeckenden Brand kein Kamineffekt zu beobachten. Bei größeren Bränden wurden höhere Brandraten und Aerosolfreisetzungsraten beobachtet. Einige Meter oberhalb der Brandfläche wurden Temperaturen um 300 - 400 °C, zeitweilig bis zu 700 °C gemessen. Die Versuche F5 und F6 wurden insbesondere durchgeführt, um das thermodynamische und reaktionskinetische Brandverhalten in einem völlig geschlossenen Containment zu beobachten.

Während der Versuche wurde auch der verbrauchte Sauerstoff im Versuchskessel nicht ergänzt. Die Sauerstoffkonzentration erreichte nach ca. 2 Stunden 10 % im Versuch F5, beim Versuch F6 wurden nach ca. 1 Stunde 4,3 % gemessen. Dabei ist besonders interessant, daß bei beiden Versuchen eine fast völlig lineare Abnahme der Sauerstoffkonzentration gemessen wurde. Dies läßt auf eine konstante Reaktionsrate schließen. Bei den Versuchen wurden bis zu 30 % des Natriums als Na₂O₂-Aerosol freigesetzt.

Bei großen Flächenbränden wurde anteilig mehr Aerosol freigesetzt (10 - 30 %) als bei kleinen Bränden (bis 10 %). Die Aerosolmassenkonzentration lag während der Brände über 10 g/m³ und fiel bei Brandende exponentiell ab, und zwar um ca. 5 Größenordnungen nach 100 Stunden. Der mittlere aerodynamische Partikeldurchmesser lag während des Brandes bei 1,5-3,0 µm und fiel nach Brandende ab auf ca. 0,7 µm nach 30 Stunden. Während großer Brände wurde Korrosion und Zerstörung an Edelstahlkomponenten beobachtet.

The Sodium Fire Tests Performed in the FAUNA Facility on
up to 12 m² Fire Areas

Summary

The FAUNA test facility started operation in 1979. It serves to investigate large area sodium fires in closed containments and to study the generation, behaviour and removal of sodium fire aerosols. In this report, the experimental results of the 6 sodium pool fires are described which were performed with up to 500 kg of sodium in fire pans of 2 m², 5 m² and 12 m² surface area, respectively. Both, the thermodynamic data and the data of the reaction kinetics of the fires were determined. In addition, the behaviour of the released aerosols during and after the fire was studied. On the basis of measurements of the temperature profiles at various levels above the fire areas it was shown that the convective flows above fire areas of different sizes in closed containments differ markedly and, obviously, exert an influence on the development of the fire and the release of particles. Whilst in rather small fires the gas above the pan rises as in a chimney and flows back on the walls, no chimney effect can be observed in a large pool fire. In rather large fires higher burning rates and aerosol release rates were observed. Some meters above the fire area temperatures around 300 - 400 °C, temporarily even up to 700 °C, were measured. The tests F5 and F6 were performed above all to observe the fire behaviour in terms of thermodynamics and reaction kinetics in a fully closed containment.

During the tests the oxygen consumed was not refilled into the test vessel. After about two hours the oxygen concentration attained 10% in test F5, in test F6 4.3% were measured after about 1 hour. It is of particular interest that in both tests the reduction in the oxygen concentration measured was nearly linear. This suggests that the reaction rate is constant. In the tests up to 30% of the sodium were released as Na₂O₂ aerosol.

In large pool fires a higher percentage of aerosols was released (10 - 30%) than in small fires (up to 10%). During the fires the aerosol mass concentration was more than 10 g/m³ and declined exponentially at the end of the fire, by about five orders of magnitude after 100 hours. The mean aerodynamic particle diameter during the fire attained 1.5 to 3.0 μm and dropped to about 0.7 μm after 30 h following the end of the fire. During large fires corrosion and destruction of stainless steel components were observed.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>		<u>Seite</u>
I	Einleitung	1
II	Beschreibung der FAUNA-Anlage	3
III	Meßtechnische Ausrüstung und Datenverarbeitung	6
IV	Die Brandversuche F1 - F6	9
IV.1	Thermodynamische Ergebnisse der Versuche F1 und F2	10
IV.2	Thermodynamische Ergebnisse der Versuche F3 und F4	13
IV.3	Thermodynamische Ergebnisse der Versuche F5 und F6	16
V	Aerosolverhalten bei Natriumbränden	19
VI	Zusammenfassung der Ergebnisse und Diskussion	25
VII	Literatur	27
VIII	Abbildungen	28

I Einleitung

Bei der technischen und konstruktiven Auslegung von Containment-Systemen natriumgekühlter Brutreaktoren muß man in Betracht ziehen, daß Störfälle denkbar sind, die in großen Teilen des Containments zu großflächigen Natriumbränden führen können. Die Analyse dieser Störfälle ist für die Beurteilung der Sicherheit der gesamten Anlage unbedingt erforderlich, im Genehmigungsverfahren für den Prototyp Reaktor SNR-300 fest verankert und bedeutend für die Auslegung großer Brüter-Kraftwerke (SNR-2).

Natriumbrände im SNR-Containment erfordern ein komplexes Sicherheitssystem. Sie führen zu einer Temperatur- und Druckerhöhung im Containment, bilden mit Restwasser (Luftfeuchte, Betonwasser) aggressive chemische Verbindungen und erhöhen somit die korrosive Belastung für die Stahlbauten und -Werkstoffe und erzeugen schließlich Natriumaerosole (bestehend aus verschiedenen Natriumverbindungen), die wegen ihrer Radioaktivität (aktiviertes Natrium, das unter Umständen auch Spaltprodukte enthält) und Toxizität im Containment zurückgehalten werden müssen.

Die vollständige Beschreibung eines beliebigen, großflächigen Natriumbrandes erfordert die genaue Kenntnis einer Reihe charakteristischer Kenngrößen. Unter den hier interessierenden Gesichtspunkten sind dies im wesentlichen die Brandrate, die damit eng gekoppelte Aerosolerzeugungsrate sowie das Wärmefreisetzungsverhalten. Darüber hinaus ist das Verhalten der Natriumaerosole nach ihrer Freisetzung im Containment (Aerosolkonzentration als Funktion der Zeit, Ablagerungsverhalten) bedeutsam für die Auslegung von Containment-Systemen, Abluftanlagen und aerosolgefährdeten Komponenten.

Bisherige Untersuchungen lassen erkennen, daß die Natriumbrandrate für größere Flächen nicht linear von der Fläche abhängt, insbesondere dann, wenn die Brandfläche größer als 1 m^2 wird und das darüberliegende Volumen relativ groß ist. Diese Resultate wurden erzielt durch Experimente in einem 4 m^3 Volumen und mit Brandflächen bis zu 1 m^2 (NABRAUS) /1/, /2/. Diese Dimensionen sind jedoch wesentlich kleiner als die der denkbaren

...

Räume des SNR-300 bzw. SNR-2, in denen im Falle eines Störfalls Natriumbrände zu erwarten sind, so daß eine Extrapolation der bisherigen Ergebnisse auf diese Verhältnisse nicht verlässlich erscheint. Insbesondere kann man davon ausgehen, daß die bei einem Flächenbrand unter einem großen Volumen auftretende Zwangskonvektion die Verhältnisse und die Resultate in einer Weise beeinflussen kann, die bei den bisherigen Experimenten nicht mit erfaßt werden konnten.

Die vorliegenden Experimente in der FAUNA-Anlage sind ein vorläufiger Abschluß einer Versuchsreihe von Natriumbränden im technischen Maßstab. Zunächst wurde im wesentlichen eine Variation der Parameter Brandfläche und Natriummenge durchgeführt: Bei den Versuchen F1 und F2 betrug die Brandfläche 2 m^2 , die Natriummengen betragen 150 kg und 250 kg. Die Versuche F3 und F4 wurden auf einer 12 m^2 großen Brandfläche mit jeweils 500 kg Natrium durchgeführt. Bei den Versuchen F5 und F6 (auf 2 m^2 bzw. 5 m^2) betrug die Natriummenge jeweils 350 kg. Bei diesen beiden Versuchen wurde das FAUNA-Containment völlig geschlossen gehalten, um den Druckaufbau während des Brandes zu messen.

II Beschreibung der FAUNA-Anlage

Die Forschungsanlage zur Untersuchung von Natriumbränden und nuklearen Aerosolen des Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik am Kernforschungszentrum Karlsruhe wurde nach mehrjähriger Bauzeit Anfang 1979 in Betrieb genommen. Das Blockdiagramm (Bild 1) gibt einen Überblick über die Anlage, die der besseren Übersicht wegen in drei Anlagenteile aufgegliedert werden kann:

- Betriebsgebäude
- Versuchskessel
- Abgasanlage

Im Betriebsgebäude sind neben der Versuchsmeßtechnik alle Einrichtungen zum Betrieb der Anlage untergebracht. Die Hauptschaltwarte dient der Überwachung der gesamten Anlage; hier laufen auch die sicherheitstechnischen Einrichtungen zusammen. Die Natriumschaltwarte dagegen dient lediglich der Natriumhandhabung.

Alle Räume, in denen mit Natrium umgegangen wird, sind deutlich getrennt von den Meß- und übrigen Anlageräumen. Flüssiges Natrium wird stets unter einer Schutzgasatmosphäre gehalten, außer natürlich im Versuchskessel selbst. Das Natrium wird von der Lieferfirma in Spundfässern (Fassungsvermögen 190 kg Natrium) ausgeliefert.

Zur Aufbereitung (in diesem Zusammenhang: schmelzen) dient eine erprobte Natriumschmelzanlage, die über eine Rohrleitung mit drei sich im Keller-geschoß befindlichen Stahlbehältern verbunden ist.

Zur Aufbewahrung des Natriums dienen die drei oben genannten Vorratsbehälter, die ein Volumen von je 1 m^3 haben, beheizbar sind und mit Natriumfüllstands-, Temperatur- und Druckmeßeinrichtungen sowie je einem Sicherheitsventil versehen sind. Sie sind ferner über Ventile mit einem Schutzgassystem und dem Versuchskessel verbunden. Der Versuchskessel ist ein gasdichtes Stahlgefäß mit einem Volumen von 220 m^3 , der zylindrische Teil des Versuchskessels ist 6 m hoch bei einem Durchmesser von ebenfalls 6 m. Er ist über einen kreisförmigen ($d = 2 \text{ m}$) Einstieg

...

begehrbar. Die Dimensionen des Behälters wurden so gewählt, daß Natriumbrandversuche mit einer Brandfläche bis zu ca. 12 m² und einer Natriummenge bis zu 1000 kg möglich sind. Die Brandversuche finden in sogenannten Brandpfannen statt, die beheizbar sind und auf einer Wägeeinrichtung stehen, so daß stets eine Kontrolle über die in der Pfanne befindliche Natriummenge möglich ist. Die für jeden Versuch notwendige Natriummenge wird in flüssiger Form von den Vorratsbehältern pneumatisch in die Brandpfanne eingefüllt.

Der Kessel ist über zwei Ventile mit der Lüftungsanlage verbunden. Darüber hinaus ist ein weiteres Ventil eingebaut, das bereits bei einem $\Delta p = 2,5$ bar anspricht und die Abluft in die Lüftungsanlage ableitet. An der oberen Außenseite des Behälters ermöglicht eine Arbeitsplattform Montage- und Kontrollarbeiten. Der Behälter selbst ist für einen Überdruck von $\Delta p = 3$ bar ausgelegt und mit einem entsprechenden Sicherheitsventil ausgestattet. Außerdem ist der Versuchskessel evakuierbar, so daß vor Versuchsbeginn eine beliebige Atmosphäre im Kessel eingestellt werden kann. Dabei sind die für den Betrieb und die Sicherheit notwendigen Gase Sauerstoff und Stickstoff von der Hauptschaltwarte aus regelbar.

Die Behälterkühleinrichtung sorgt für eine geregelte Wärmeabfuhr während der Versuche. Eine Berieselungsanlage besprüht den Behälterdeckel und über einen Rundkranz die Behälterwand mit Wasser (maximal 60 m³ H₂O pro Stunde), so daß gewährleistet ist, daß selbst bei Experimenten mit hoher Wärmefreisetzung die maximal zulässige Kesselwandtemperatur von 150 °C nicht überschritten wird.

Die Lüftungsanlage ermöglicht eine ausreichende Durchlüftung des Versuchsbehälters, zum Beispiel während der Entsorgungsarbeiten. Eine der Lüftungsanlage nachgeschaltetes Gasreinigungssystem verhindert einen unzulässig hohen Natriumoxid-Aerosolausstoß in die Atmosphäre während einer in den Experimenten vorgesehenen Druckentlastung des Behälters. Die Lüftungsanlage setzt sich zusammen aus einem zweistufigen Hochleistungsnaßwäscher mit eingebautem Ventilator und einem Rohrleitungssystem, das über drei Ventile (2 NW 100, 1 NW 32) mit dem Versuchsbehälter verbunden ist.

Der Naßwäscher hat folgende Daten:

Betriebstemperatur:	50 °C - 60 °C
Ansaugleistung bis zu:	3000 m ³ /Stunde
maximale Beaufschlagung:	500 mg/m ³ .
Abscheidegrad bei 0,5 µm Durchmesser:	99%, gemessen für inerte Aerosole

Für Natriumbrandaerosole wurden unter extremen Bedingungen noch Abscheidegrade von 95 % gemessen, womit durch Beimischungen von Frischluft eine Verdünnung der Aerosolmassenkonzentration auf den Betriebswert des Naßwäschers ermöglicht wird.

III Meßtechnische Ausrüstung und Datenverarbeitung

Die meßtechnische Ausrüstung der FAUNA-Anlage läßt sich in zwei getrennte und in sich selbständige Bereiche gliedern:

1. Betriebsmeßtechnik
2. Versuchsmeßtechnik

Der Bereich Betriebsmeßtechnik umfaßt alle für den Betrieb und die Sicherheit der Anlage notwendigen meßtechnischen Einrichtungen. Diese Einrichtungen sollen einen ordnungsgemäßen Betrieb und die Überwachung der Anlage gewährleisten.

Hierbei kommt den sicherheitstechnischen Einrichtungen besondere Bedeutung zu. So werden z. B. folgende Größen kontinuierlich überwacht:

- Druck im Versuchskessel
- Wandtemperatur des Versuchskessels
- Druck in den Natrium-Vorratstanks
- Temperatur in den Natrium-Vorratstanks

Die Überschreitung von Grenzwerten wird akustisch und optisch angezeigt, zum Teil werden sogar automatisch Maßnahmen eingeleitet. Weitere technische Einzelheiten der Gesamtanlage können dem technischen Bericht /3/ und dem Sicherheitsbericht /4/ entnommen werden.

Der Bereich Versuchsmeßtechnik umfaßt die Messungen aller Größen, die für die Auswertung und Analyse der Versuche von Bedeutung sind. Dazu sind folgende charakteristische Größen eines Natriumbrandes zu zählen:

- Brandrate
- Temperaturverteilung
- Konvektion
- Druck
- Aerosol-Größen-Verteilung

...

Partikelzahl-Konzentration
Aerosol-Massenkonzentration
Chemie der Aerosole
Chemie des Rückstandes

Abgesehen von dem Aerosol-Massenkonzentrations-Meßgerät SAMP(Sodium-Aerosol-Mass-Monitor), das kontinuierlich und weitgehend automatisch arbeitet /5/, müssen die aerosolphysikalischen Daten in Einzelmessungen bestimmt werden. Im folgenden wird ein Überblick gegeben über die eingesetzten Geräte und Methoden zur Bestimmung der aerosolphysikalischen Größen. Zur Messung der Natriummassenkonzentration werden verwendet:

- SAMP (Colora)
- Filterabscheidung
- Waschflaschen
- Mikrowaage (TSI)

Das Natrium-Massenkonzentrationsmeßgerät SAMP arbeitet naßchemisch mit Hilfe einer Natrium-Ionenelektrode. Dadurch konnte das Gerät so aufgebaut werden, daß ein kontinuierlicher Betrieb möglich ist. Testmessungen haben bestätigt, daß das Gerät ausreichend zuverlässig und genau arbeitet, so daß es als alleinige Methode zur Bestimmung der Massenkonzentration eingesetzt werden kann. Trotzdem werden während der Versuche mit den herkömmlichen Methoden - Filter, Waschflaschen und Mikrowaage - Messungen zur Kontrolle durchgeführt. Der Bestimmung der Aerosoldurchmesser stehen zur Verfügung:

- Aerosol-Zentrifuge (nach Stöber)
- Impaktor (nach Anderson)
- Streulichtmeßgerät (90 ° Streuung, weißes Licht)
- Elektronenmikroskopie.

Prinzipiell messen sowohl die Zentrifuge als auch der Impaktor den aerodynamischen Durchmesser. Die genaue Bestimmung dieses Durchmessers ist besonders wichtig, da er zusammen mit dem massenbezogenen Durchmesser zur Bestimmung des dynamischen Formfaktors benötigt wird. Das Streulichtmeßgerät liefert einen Streulichtdurchmesser ; allerdings ist die Eichung problematisch, so daß die Ergebnisse dieses Gerätes, zusammen mit einem

Kondensationskernzähler, vor allem zur Bestimmung der Partikelzahl-Konzentration verwendet werden. Die chemischen Untersuchungen bauen auf bereits bewährten Methoden auf /6/. Insbesondere werden folgende Fragen untersucht:

- In welcher chemischen Zusammensetzung liegen die Aerosole vor?
- Wie setzt sich der Rückstand in der Brandpfanne zusammen?

Diese Fragen sind auch von Bedeutung, um aus dem Sauerstoffverbrauch die momentane und mittlere Brandrate zu bestimmen. Die Sauerstoffkonzentration im Versuchskessel und der Sauerstoffverbrauch werden während der Experimente kontinuierlich gemessen. Die automatische Nachspeisung von Sauerstoff ist von der Sauerstoffkonzentration im Kessel abhängig, die Konzentrationsgrenzwerte sind beliebig wählbar. Im Gegensatz zu allen obigen Größen können die Messungen von

- Temperatur
- Konvektion
- und Druck

on line durchgeführt werden.

Diese 'one-line'-Daten werden mit Hilfe eines rechnergesteuerten Datenerfassungssystem automatisch erfaßt . Dieses System besteht im wesentlichen aus einem Analog/Digital-Wandler, einem Rechner und der entsprechenden Peripherie. An den A/D-Wandler (Autodata) können zur Zeit bis zu 100 Meßstellen angeschlossen werden. Das Gerät ist mikroprozessorgesteuert; jeder Kanal ist in seinem Meßbereich frei programmierbar, ebenso die Taktzeit für einen Meßzyklus. Eingebaute Speicher ermöglichen schon bei der Messung eine entsprechenden Aufbereitung der Daten (Linearisierung bzw. Umrechnung), so daß z. B. die Daten der verwendeten NiCr-Ni Thermoelemente schon in der Form "°C" an den Rechner übermittelt werden.

...

IV Die Brandversuche F1 - F6

Die Versuche F1 - F6 wurden unter verschiedenen Bedingungen durchgeführt, die in folgender Tabelle zusammengefaßt sind:

	F1	F2	F3	F4	F5	F6
Brandfläche /m ² /	2	2	12	12	2	5
Natriummenge /kg/	150	250	500	500	350	350
Sauerstoffkonzentration /%/	19-22	17-25	15-25	18-25	10-21	4-21

Bei den Versuchen F1-F4 wurde die Sauerstoffkonzentration in den angegebenen Grenzen konstant gehalten. Um bei diesen Versuchen eine ungestörte Aerosolmeßtechnik sicherzustellen, wurde der Überdruck im FAUNA-Containment über den Wäscher abgelassen. Die Lage der Brandpfannen und die Positionen der wichtigsten Thermoelemente sind in Bild 2 dargestellt. Außer bei dem Versuch F4 wurden die Brandpfannen vor Versuchsbeginn elektrisch beheizt, so daß sie beim Natrium-Einlaß bereits auf Natriumtemperatur waren.

Die Versuche F5 und F6 unterscheiden sich von den Versuchen F1 bis F4 insbesondere dadurch, daß bei den Experimenten 5 und 6 das Containment für die ersten 60 bzw. 120 Minuten zur Ermittlung des Druckaufbaues geschlossen gehalten wurde. Außerdem wurde bei den Versuchen F5 und F6 das Natrium durch eine Öffnung von nur 7 mm Durchmesser in die Brandpfanne gespritzt, so daß während des Einfüllvorganges (ca. 20 Min) ein kombinierter Spritz-Pool-Brand vorlag.

IV.1 Thermodynamische Ergebnisse der Versuche F1 und F2

Der Verlauf eines Natriumbrandes läßt sich gut anhand des Temperaturverlaufes über der Brandpfanne beschreiben. Da sich Kessel und Brandpfanne in einer axialsymmetrischen Anordnung befinden, ist es zunächst ausreichend die Temperaturen vertikal über der Pfannenmitte zu betrachten, wie sie in Bild 3 und 4 dargestellt sind. Zum Zeitpunkt 0, also unmittelbar vor dem Einfüllen des Natriums, liegen die Temperaturen infolge der beheizten Pfanne bei ca. 50 °C. Beim Versuch F1 ist dann für die Dauer von ca. 50 Minuten nach dem Einfüllen ein starkes Anwachsen der Temperatur zu beobachten, ein Temperaturmaximum von fast 200 °C ist nach ca. 70 Minuten erreicht. Der Temperaturgradient zu Beginn des Versuches F2 ist nicht so steil wie bei dem Versuch F1, auch das Temperaturmaximum von ca. 190 °C wird erst nach ca. 105 Minuten erreicht. Die kurzzeitigen Temperaturrückgänge, z. B. nach ca. 35 Minuten (F1) oder 45 Minuten (F2), sind auf die Sauerstoffzugabe und die Strömungsverhältnisse im Versuchskessel zurückzuführen. Durch die in der Mitte angeordnete relativ kleine Brandfläche im Verhältnis zum Kesselquerschnitt (28,3 m²) stellt sich eine ausgeprägte Konvektionsströmung ein. Diese Strömung läßt sich gut anhand der Temperaturen erkennen, wie sie in Bild 5 für den Versuch F2 dargestellt sind. Durch diese Strömungen kann der noch nicht erwärmte Sauerstoff, der nahe der Kesselwand in Pfannenhöhe zugeführt wird, die Thermolemente senkrecht über der Brandpfanne erreichen. Bereits die Temperaturen in der Rückströmung, wie sie in Bild 6 dargestellt sind, zeigen diese Temperaturschwankungen nicht mehr. Auch sind in der Rückströmung keine großen Temperaturunterschiede zwischen den einzelnen horizontalen Meßstellen zu erkennen (Bild 7 und 8). Dies läßt auf eine gute Durchmischung am Übergang von Aufwärtsströmung zu Rückströmung und auf stabile Strömungskonfigurationen während des Brandes schließen. Dieser Zusammenhang zwischen Sauerstoffzuführung und den damit verbundenen Temperaturänderungen wird durch Auftragung von Temperatur, Sauerstoffkonzentration und zeitlichem Verlauf der Sauerstoffzugabe verdeutlicht (Bild 9 und 10).

Die Strömungsgeschwindigkeit in der Rückströmung wurde mit Hilfe eines Heißfilmanemometers gemessen. Zwar sind die Bedingungen im Versuchskessel während Natriumbränden wegen Temperaturschwankungen und Aerosolbeladung für Heißfilmmessungen denkbar schlecht, jedoch konnten mit einer temperaturkompensierten, besonders robusten Sonde zumindest Mittelwerte gemessen werden. Es ergab sich eine durchschnittliche Strömungsgeschwindigkeit von ca. 0.8 m/s in der Rückströmung, was einer Geschwindigkeit von ca. 11.3 m/s in der Aufwärtsströmung über der Pfanne entspricht.

Da die chemische Zusammensetzung der Aerosole und des Pfannenrückstandes bekannt ist /5/, /6/, läßt sich aus dem Verlauf der Sauerstoffkonzentration (Bild 9 und 10) die Brandrate bestimmen. Die folgende Tabelle gibt einen Überblick über die integrale Brandrate für den gesamten Versuch und die momentanen Brandraten während einzelner Versuchsabschnitte.

F 1		F 2	
Versuchszeit	Brandrate	Versuchszeit	Brandrate
/min/	/kg Na/m ³ h/	/min/	/kg Na/m ² h/
0 - 30	20.8	0 - 45	16.8
40 - 60	26.3	60 - 105	19.8
75 - 85	37.3	115 - 140	25.3
100 - 110	22.0	150 - 175	18.9
Gesamtbrandrate	29.5		21.0

Neben den Gastemperaturen wurde auch an vier Stellen die Temperatur in oder knapp über dem Natrium gemessen. Die Meßstellen lagen bei $x = 0$ cm und $y = 1$ cm, 2 cm, 4 cm und 7 cm (Bild 11 und 12). Damit sind bei Brandbeginn alle Thermoelemente in das Natrium eingetaucht. Naturgemäß läßt sich zwischen den Schwankungen in der Gastemperatur und den Schwankungen in der Natriumtemperatur kein eindeutiger Zusammenhang herstellen: die lokalen Temperaturmessungen im Natrium oder in Natriumnähe werden vor

allem vom örtlichen Brandverlauf beeinflusst (Oberflächenbewegungen, Krustenbildung usw.). Die Feinstruktur kann natürlich von den Thermo-
elementen einige Meter über der Brandpfanne nicht mehr aufgelöst werden.

IV.2 Thermodynamische Ergebnisse der Versuche F3 und F4

Die Versuche F3 und F4 wurden beide auf 12 m² Brandfläche mit jeweils 500 kg Natrium durchgeführt. Damit waren bei beiden Versuchen die für das Verhalten wesentlichen Parameter identisch. Unterschieden aber haben sich die beiden Versuche in der Pfannenheizung und der Art der Sauerstoffzuführung.

Beim Versuch F3 war die Brandpfanne an der Unterseite mit Heizleitern versehen und isoliert. So war es möglich, die Brandpfanne vor dem Versuch auf die Natriumtemperatur vorzuheizen, außerdem verhinderte die Isolierung während des Versuches zum großen Teil Wärmeabstrahlung nach unten. Dagegen war beim Versuch F4 die Brandpfanne nicht beheizt und unisoliert. Für den Einfluß auf den Brandverlauf dürfte dabei die unbeheizte Pfanne von untergeordneter Bedeutung sein: rein rechnerisch sinkt die Natriumtemperatur um weniger als 20 °C, wenn die Pfanne beim Natriumeinlaß nicht beheizt ist. Von größerer Bedeutung war, daß die Brandpfanne beim Versuch F4 nicht nach unten isoliert war, so daß auch ein Wärmefluß aus dem Natrium durch die Pfanne nach unten möglich war. Einen wesentlichen Einfluß auf das Brandverhalten zeigt auch die beim Versuch F4 veränderte Sauerstoffzuführung. Während beim Versuch F3 der Sauerstoff am Kesselrand ($y = 1$ m) zugeführt wurde (wie auch bei F1 und F2), wurde beim Versuch F4 der Sauerstoff aus 3 m Höhe, ebenfalls in Kesselwandnähe, aber mit Richtung auf die Pfannenmitte zugeführt. Wie der Versuch gezeigt hat, beeinflusst die Art der Sauerstoffzuführung auch deutlich den Brandverlauf, der trotz gleicher Natriummenge und Brandfläche bei den Versuchen F3 und F4 sehr unterschiedlich war. Betrachtet man den Temperaturverlauf des Versuches F3, wie er in Bild 13 für verschiedene Meßstellen dargestellt ist, so fällt auf, daß nach einem relativ gleichmäßigen Temperaturanstieg bis auf ca. 350 °C nach ca. 60 Minuten ein Temperaturmaximum von fast 800 °C erreicht wird. Dieses Temperaturmaximum wurde nicht nur in der Kesselmitte ($x = 0$ m) gemessen, sondern auch an den Meßstellen in der Nähe des Randes (Bild 14 und 15). Dies wird besonders deutlich, wenn man die Temperaturen über dem Kesselquerschnitt aufträgt (Bild 16 und 17). Dieses Maximum bedeutet praktisch auch das Brandende, denn die Temperaturen fallen anschließend stark und gleichmäßig ab.

Völlig verschieden vom Versuch F3 sieht der Temperaturverlauf für den Versuch F4 aus (Bild 18). Nach einem starken Temperaturanstieg zu Brandbeginn wird bereits nach ca. 18 Minuten ein Maximum von fast 450 °C erreicht. Ähnliche Maxima treten auch bei 30 Minuten, 44 Minuten und 50 Minuten auf. Dieser für F4 typische Temperaturverlauf ist nicht nur an einigen Meßstellen zu beobachten, sondern kann über den gesamten Kesselquerschnitt verfolgt werden (Bild 19, 20, 21). Die Darstellung der Temperatur zu verschiedenen Zeitpunkten über den Kesselquerschnitt zeigt wieder eine relativ gleichmäßige Verteilung (Bild 22 und 23), wie sie schon beim Versuch F3 beobachtet wurde.

Der Einfluß der unterschiedlichen Sauerstoffzufuhr bei den Versuchen F3 und F4 ist auch aus dem Temperaturverlauf gut zu erkennen. Die Sauerstoffzugabe am Kesselrand zeigt beim Versuch F3 keinen direkten Einfluß auf den Temperaturverlauf (Bild 24). Beim Versuch F4 allerdings beeinflusst die Sauerstoffzuführung, senkrecht über der Brandpfanne, den Brandverlauf unmittelbar, wie in Bild 25 deutlich erkennbar ist. Jedoch ist die Beeinflussung der Brandrate derart, daß gerade beim Versuch F4, wo die Sauerstoffzugabe am Temperaturverlauf deutlich erkennbar ist, die Brandraten geringer sind als beim Versuch F3. Die aus der Sauerstoffkonzentration berechneten Brandraten sind in folgender Tabelle zusammengestellt:

F 3		F 4	
Versuchszeit /min/	Brandrate /kg Na/m ² h/	Versuchszeit /min/	Brandrate /kg Na/m ² h/
30 - 40	28	7 - 15	23
40 - 51	43	19 - 25	26
69 - 74	85	30 - 37	29
		42 - 48	30
Gesamtbrandrate	33,0		27

Die gegen Versuchsende bei F3 aufgetretenen hohen Brandraten sind auf die Wärmerückhaltung (Isolation) an der Pfannenunterseite zurückzuführen. Die mit dieser Brandrate verbundenen hohen Temperaturen führten während des Versuches zu Schäden an verschiedenen Meßeinrichtungen und Armaturen.

Bild 26 zeigt die während des Brandes aufgetretenen Korrosion an einem Natriumeinlaßstutzen aus Edelstahl kurz über der Natriumboberfläche.

IV.3 Thermodynamische Ergebnisse der Versuche F5 und F6

Die Versuche F5 und F6 unterscheiden sich von den Versuchen F1-F4 insbesondere durch die Art des Natriumeinfüllens in die Brandpfanne. Während bei den Experimenten F1-F4 das Natrium über eine Leitung von 50 mm Durchmesser in kurzer Zeit eingefüllt wurde, wurde bei den Experimenten F5 und F6 das Natrium durch eine Öffnung von nur 7 mm Durchmesser in die Brandpfanne gespritzt, so daß während des Einfüllvorganges (ca. 20 Min) ein kombinierter Spritz-Pool-Brand vorlag.

Außerdem wurde zur Messung des Druckverlaufs das Containment völlig geschlossen gehalten, der verbrannte Sauerstoff wurde nicht ergänzt. Der Brandverlauf läßt sich zunächst anhand der Temperaturen über der Brandpfanne diskutieren. In Bild 27 sind die Temperaturen 4,10 m über der Brandpfanne und zwar genau in der Kesselachse ($x = 0,0$ m) und ± 30 cm daneben ($x = + 30$ cm, $x = - 30$ cm). Für die Zeit des Einfüllvorgangs - ca. 20 Minuten lang - ist ein unregelmäßiger Temperaturverlauf zu erkennen, ein kurzzeitiges Maximum von fast 150 °C tritt nun unmittelbar nach Versuchsbeginn auf. Nach Ende des Einfüllvorgangs stellt sich ein stabiler Brandverlauf ein mit einem praktisch konstanten Temperaturverlauf bis zu dem Zeitpunkt ($t \approx 110$ min), zu dem wieder Sauerstoff in den Versuchskessel nachgefüllt wird. Danach steigen die Temperaturen über der Brandpfanne leicht an, um nach einer weiteren Sauerstoffzufuhr bei $t \approx 150$ min ein Maximum von ca. 250 °C zu erreichen. Danach fallen die Temperaturen bis zum Brandende. Wie schon frühere Versuche zeigten, stellt sich insbesondere bei kleinen Brandflächen eine ausgeprägte Konvektionsströmung ein. Trotz axialsymmetrischer Anordnung der Brandpfanne im FAUNA-Kessel ist diese Strömung nicht symmetrisch bezüglich der Kesselachse. Dies wird durch den Einfüllvorgang verursacht. Durch das Einspritzen des Natriums von oben in Richtung Pfannenrand bilden sich an dieser Stelle vermehrt Krusten und Rückstände aus Natrium und Brandprodukten. Nach dem Einfüllvorgang sind diese Krusten höher als der Natriumspiegel, so daß die tatsächliche Brandfläche nicht mehr mit der Pfannenfläche übereinstimmt. Diese Asymmetrie läßt sich gut aus der Darstellung der Temperaturprofile über den Ort zu verschiedenen Zeitpunkten erkennen (Bilder 28, 29, 30). Aus dieser Art der Darstellung wird auch deutlich, daß in der für das

Versuchsziel wichtigen Zeit zwischen 30 und 170 min sehr gleichmäßige Temperaturverteilung herrschen (Bild 29). In diesem Zeitraum ist, wie schon erwähnt, der zeitliche Temperaturverlauf praktisch konstant, was auf stabile Brandverhältnisse schließen läßt, obwohl die Sauerstoffkonzentration von 21 % auf 10 % abfällt (Bild 31). Ein wichtiges Versuchsziel war die Bestimmung des Druckaufbaus und des Brandverhaltens bei völlig geschlossenem Versuchskessel, d. h.: keine Druckentlastung über die Abgasreinigungsanlage, aber auch keine Ergänzung des verbrauchten Sauerstoffs. Erst nach 110 min Versuchszeit, als die Sauerstoffkonzentration auf 9 % abgefallen war, wurde wieder Sauerstoff zugeführt. Bild 32 zeigt den zeitlichen Verlauf des Kesseldrucks. Mit Beginn des Einfüllvorganges tritt eine Druckspitze von ca. 160 mbar Überdruck auf, danach treten zwei weitere Druckspitzen bei 25 min und 30 min auf. In dem Zeitraum des gleichmäßigen Brennens zwischen 30 und 110 min fällt der Druck leicht ab.

Von besonderem Interesse war der Verlauf der Brandrate in dem Zeitraum ohne Sauerstoffnachfuhr. Wie Bild 31 zeigt, ist in diesem Zeitraum die Abnahme der Sauerstoffkonzentration linear, die daraus berechnete Brandrate beträgt 18.4 kg Na/m²h. Diese Linearität würde bedeuten, daß bei diesem Experiment im Bereich zwischen 21 % und 10 % Sauerstoffkonzentration die Brandrate konstant ist.

Die Lage der Thermoelemente beim Versuch F6 ist identisch mit der von Versuch F5. Dadurch kann der Brandverlauf ähnlich wie bei F5 diskutiert werden. In Bild 33 ist der Brandverlauf 4.10 m über der Mitte der Brandpfanne und jeweils 30 cm rechts und links daneben dargestellt. Der Einfüllvorgang dauert wieder ca. 20 Minuten und ist geprägt von einem Temperaturmaximum von fast 300 °C. Danach stellt sich bis ca. 45 Minuten ein stabiler Brandverlauf mit ca. 170 °C ein. Zu diesem Zeitpunkt beginnen die Temperaturen stark zu fallen, um bei 60 Minuten ca. 120 °C zu erreichen. Zu diesem Zeitpunkt wird zum erstenmal wieder Sauerstoff zugeführt, die Temperaturen steigen auf über 340 °C, um dann bis zum Brandende abzufallen. Bei größer werdender Brandfläche wird die Konvektionsströmung immer weniger ausgeprägt. Damit werden auch die Einflüsse des Einfüllvorganges (Krustenbildung usw.) geringer. Dies ist auch aus der Darstellung der Temperaturprofile über dem Ort erkennbar (Bild 34, 35). Diese Darstellung zeigt auch die relativ gleichmäßige

Temperaturverteilung in dem wichtigen Versuchszeitraum bis 60 min. In diesem Zeitraum fällt die Sauerstoffkonzentration auf 4 % ab (Bild 36), der lineare Abfall läßt auf eine konstante Brandrate über mehr als 40 Minuten schließen, sie beträgt in diesem Zeitraum 28.0 kg/m²h.

Der Druckaufbau ist zu Versuchsbeginn am größten und erreicht nach ca. 6 min ein Maximum von fast 500 mbar Überdruck. Danach fällt der Überdruck während weiteren 50 min auf praktisch Null ab (Bild 37).

V. Aerosolverhalten bei Natriumbränden

Während die Messungen zur Branddynamik keine besonderen Schwierigkeiten bereiten und auch weitgehend automatisch durchgeführt werden können, sind die Messungen zur Aerosolphysik gerade während des Brandes - bedingt durch die hohe Massenkonzentration und die Druckschwankungen im Versuchskessel - wesentlich problematischer. Sowohl der CNC, zur Messung der Teilchenzahl, als auch die Massenwaage, zur Bestimmung der Massenkonzentration, arbeiten während des Brandes an ihrer (oberen) Nachweisgrenze. Diese Problematik trifft auch für die Geräte zu, die große Meßbereiche haben, wie z. B. Impaktor und Zentrifuge.

Deshalb war die Verbesserung der Aerosolmeßtechnik, so daß sie auf Natriumbrände anwendbar ist, ebenfalls ein Versuchsziel dieser Brandversuche. So war beim Versuch F1 die Erprobung des Konzentrationsmeßgerätes "SMM" /5/ von besonderer Bedeutung. Das Gerät bestimmt nach Auflösen der Aerosole in einer wäßrigen Lösung den Natriumgehalt naßchemisch mit Hilfe einer Natriumelektrode. Nach geringfügigen Verbesserungen arbeitete das Gerät während sämtlicher Versuche verläßlich und einwandfrei. Durch die Reaktion verdampften Natriums mit Sauerstoff in der Gasphase und anschließender Kondensation bzw. Koagulation des Reaktionsproduktes entstehen große Mengen Aerosole, die zum Teil in das Containment transportiert werden, zum Teil in die Lache sedimentieren. Die Aerosolerzeugungsrate hängt somit von der Temperatur der Lache, dem Sauerstofftransport (wie die Brandrate) und vom Gastransport über der Lache ab. Durch Bilanzierung der Brandrückstände nach den Versuchen wurden folgende Aerosolerzeugungsraten bestimmt:

Versuch	Aerosolerzeugungsrate $K_s \text{ Na/m}^2 \text{ h}$	Prozentuelle Freisetzung %
F2	2	10
F3	9	27
F4	4	15
F5	6	32

Von dem luftgetragenen Natrium wurden ca. 40 % an den Wänden (ca. 65 % der Gesamtfläche) abgelagert, während 60 % auf den Boden sedimentierten. Der in Bild 38 und 39 gezeigte Verlauf der Massenkonzentration für die Versuche F1 bis F4 wurde kontinuierlich unter Verwendung von "SAMM" gemessen, die Kontrollmessungen mit anderen Methoden zeigen dabei eine sehr gute Übereinstimmung. In Abb. 40 ist für einen Versuch der Verlauf der Massenkonzentration im linearen Zeitmaßstab aufgezeichnet. Vier verschiedene Bestimmungsmethoden, nämlich mit SAMM, durch diskontinuierliches Auswaschen der Aerosole in drei hintereinander angeordneten Waschflaschen, durch Probenahme auf Filtern mit anschließender Na-Bestimmung oder Wägung und durch Messung mit Hilfe einer Massenwaage von TSI (insbesondere bei niedrigeren Konzentrationen). Die Auswertung und der Vergleich der Meßergebnisse zeigen, daß die Na-Massenkonzentration mit einer Genauigkeit von $\pm 10\%$ bestimmt werden kann. Trotz der unterschiedlichen Versuchsbedingungen zeigen die Versuche ein fast identisches Verhalten der Massenkonzentration. Typisch für Versuche dieser Art ist das schnelle Anwachsen der Massenkonzentration zu Brandbeginn und die hohe Konzentration von über 10 g/m^3 während des Brandes. Nach Brandende geht die Massenkonzentration in einen nahezu logarithmischen Abfall über, so daß nach ca. 50 Stunden der Wert der Massenkonzentration um fast 5 Zehnerpotenzen abgenommen hat.

Wie schon erwähnt, ist die Bestimmung der Aerosolparameter während des Brandes besonders problematisch. So zeigen zwei unabhängige Messungen deutliche Unterschiede, obwohl die Probenahme zur gleichen Zeit begann und die verwendeten Geräte - Impaktor (I) und Zentrifuge (Z) - beide den aerodynamischen Durchmesser erfassen (vgl. Abbildung 41).

Beim Vergleich dieser Werte ist auch die bei den beiden Geräten unterschiedliche Meßdauer zu berücksichtigen. Aufgrund des kleinen Durchsatzes und der Forderung, daß titrierbare Mengen abgeschieden werden, ergibt sich bei der Zentrifuge eine Meßdauer von 30 Minuten. Dagegen sind beim Impaktor weniger als 10 Minuten Meßzeit ausreichend. Abb. 41 zeigt die während der Versuche gemessenen Partikeldurchmesser in Abhängigkeit von der Versuchszeit. Deutlich ist hier die Streuung der einzelnen Werte, insbesondere während

des Natriumbrandes zu erkennen. Betrachtet man zusammengehörige Zentrifugen- und Impaktorwerte, so läßt sich bedingt durch die schwierigen Bedingungen eine Meßwertgenauigkeit für den aerodynamischen Partikeldurchmesser von $\pm 30 - 50 \%$ ableiten. In der folgenden Tabelle sind die gemessenen Zentrifugen- und Impaktorwerte zusammengefaßt.

Zeit nach Versuchsbeginn	Partikel - Durchmesser							
	F1 /µm/	σ	F2 /µm/	σ	F3 /µm/	σ	F4 /µm/	σ
0.1					1.4 (I)	2.7	2.7(I)	1.8
0.5							2.5(Z)	1.5
1.5	2.35(Z)	2.0	2.75(Z)	2.0				
2.3	1.65(Z)	2.2	2.05(Z)	1,7	1.9 (I)	3.8		
3.0					1.25(Z)	1.8		
3.5					1.2 (I)	2.6		
4.5	0.35(Z)	3.2	1.8 (Z)	1,9				
7.0	0.35(Z)	3.0	1.8 (Z)	1.5				
27.0			0.7 (Z)					

I = Impaktor, Z = Zentrifuge

Während des Brandes liegt der mittlere aerodynamische Durchmesser bei allen Versuchen annähernd übereinstimmend bei 2 - 3 µm und nimmt nach Ablauf des Brandes stetig ab, um nach ca. 20 Stunden etwa 1 µm zu erreichen. Auch mit Hilfe eines Streulichtmeßgerätes (HC 15) wurde der Durchmesser der Aerosole bestimmt. Die so gemessenen Durchmesser sind naturgemäß mit dem aerodynamischen Durchmesser nicht vergleichbar. Auch ist aufgrund der unterschiedlichen optischen Eigenschaften des Natriums gegenüber der Eichsubstanz Latex die mit Latexaerosolen erstellte Eichkurve nicht ohne weiteres auf Natriumaerosole zu übertragen.

Bei einigen Versuchen (F1 und F2) wurde auch die Teilchenzahl mit einem Kondensationskernzähler gemessen, Während des Brandes lag die Anzahlkonzentration an der oberen Meßbereichsgrenze mit 210 bzw. 280 · 10³

Teilchen pro cm^3 . Nach Erlöschen des Brandes fiel die Konzentration stetig ab und erreichte nach ca. 4 Stunden einen Wert zwischen 20 und $30 \cdot 10^3 \text{p/cm}^3$.

In der folgenden Tabelle wurde aus der Massenkonzentration und der Partikelzahl ein volumenäquivalenter Durchmesser berechnet. Hierbei wurde angenommen, daß das Aerosol zu 100 % aus Na_2O_2 besteht und daß die Aerosole kompakte, runde Struktur besitzen. Für die Dichte wurde die Materialdichte angenommen. Dies ist vermutlich mit einem Fehler behaftet, denn aufgrund von Messungen an abgeschiedenen Partikeln (allerdings Na_2CO_3) wurde eine Partikeldichte von 70 % der Materialdichte ermittelt.

Versuchszeit /h/	Massenkonzentration /g Na_2O_2 /cm 3 /	Anzahlkonzentration /P/cm 3 /	Berechneter Durchmesser $\gamma = 2,805$ /μm/	gemessener Durchmesser /μm/	Meßmethode
0.5	$4.58 \cdot 10^{-6}$	$2.8 \cdot 10^5$	2.26	2.75	Impaktor
2.3	$6.1 \cdot 10^{-6}$	$2.5 \cdot 10^5$	2.57	2,05	Zentrifuge
2.3	$6.1 \cdot 10^{-6}$	$2.5 \cdot 10^5$	2.57	3.70	Impaktor
2.3	$6.1 \cdot 10^{-6}$	$2.5 \cdot 10^5$	2.57	0.52	Lichtstreuung
4.5	$4.29 \cdot 10^{-7}$	$3.0 \cdot 10^4$	2,16	1.80	Zentrifuge
4.5	$4.29 \cdot 10^{-7}$	$3.0 \cdot 10^4$	2,16	2.08	Impaktor
27.0	$3.39 \cdot 10^{-9}$	$3.0 \cdot 10^3$	0.93	0.70	Zentrifuge

Tab.

Es ist nicht gelungen, von Natriumoxid-Aerosolen elektronenmikroskopische Aufnahmen herzustellen, da aufgrund der chemischen Affinität von Na_2O_2 zu Wasser eine aufwendige Präparationstechnik notwendig ist. Basierend auf den Aufnahmen von Na_2CO_3 -Aerosolen wird eine überwiegend runde Form der Aerosole angenommen (vgl. Abb. 42). Ein Maß für die Abweichung der Partikeln von der Kugelgestalt - hinsichtlich ihres dynamischen Verhaltens - ist der dynamische Formfaktor

$$\alpha = \frac{D_{ev}^2 \cdot C(D_{ev}) \cdot \rho}{D_{ae}^2 \cdot C(D_{ae}) \cdot \rho \sigma}$$

mit der auf den volumenäquivalenten bzw. aerodynamischen Durchmesser bezogenen Cunningham Korrektor (CD). Dieser Formfaktor α wurde mit Hilfe der Aerosolzentrifuge zu $\alpha = 1.1$ für Na_2O_2 -Aerosole bestimmt. Dies bedeutet aerodynamisch eine nur geringfügige Abweichung von der Kugelgestalt.

Die physikalisch-chemische Analyse zeigt, daß das Brandaerosol im abgeschlossenen Behälter, wenn nur geringe Mengen Wasser und CO_2 zur Verfügung stehen, überwiegend aus Na_2O_2 besteht.

Die Aerosole unterliegen während und nach dem Brand folgenden physikalischen Prozessen. Sehr kleine Partikeln ($< 0.5 \mu\text{m}$) werden durch Kondensationsprozesse innerhalb der Flamme gebildet. Die Anzahl dieser Partikeln wird durch Koagulation und Deposition reduziert. Es entstehen größere Teilchen, die nach Ablauf des Brandes relativ schnell aufgrund ihrer hohen Sinkgeschwindigkeit sedimentieren. Die derzeitigen Aerosolcodes berücksichtigen die physikalischen Aerosolprozesse, wie Diffusion, Koagulation, Sedimentation und Thermophorese und berechnen die numerischen Lösungen der resultierenden Integro-Differential Gleichungssysteme. Da diese Codes streng nur für kugelförmige Teilchen gelten, wird das abweichende Verhalten der realistischen Partikeln gegenüber Kugeln für die verschiedenen Prozesse durch Einführung von Formfaktoren, nämlich den dynamischen Formfaktor α und den Koagulationsfaktor f berücksichtigt.

Der Faktor α wurde - wie bereits beschrieben - durch eine getrennte Messung zu $\alpha = 1.1$ ermittelt. Für den Faktor f ist noch keine direkte Messung verfügbar. Der f -Wert wurde durch Anpassung an den Verlauf der Massenkonzentration ermittelt. Der mittlere volumenäquivalente Durchmesser der Primäraerosole wurde bereits in früheren Messungen zu $0.89 \mu\text{m}$ bestimmt.

Mit Hilfe des Codes PARDISEKO III b wurde der gemessene Verlauf der Aerosolmassenkonzentration nachgerechnet. Abb. 43 zeigt den für verschiedene f -Werte berechneten Verlauf der Massenkonzentration im Vergleich mit den

Meßwerten. Die Massenkonzentration wird insbesondere während des Brandes überschätzt, und zwar etwa um den Faktor 2. Eine ausgezeichnete Übereinstimmung erhält man, wenn unter Verwendung der gemessenen Partikelraten der Verlauf der Massenkonzentration nach Brandende berechnet wird (vgl. Abb. 43). Der Einfluß des Koagulationsformfaktors ist gering, desgleichen die Berücksichtigung der Gravitationskoagulation als weiteren Aerosolprozeß.

Die größte Abweichung vom Meßwert ist während des Brandes. Hier liegt wohl auch die größte Unsicherheit der Eingabedaten: Der Aerosolquellterm wird aus einer örtlichen Bilanzierung des abgelagerten Aerosols ermittelt. Die Freisetzungsrates wurden dann mit der Natriumtemperatur während des Brandes korreliert. Aerosolcodes gehen von einer gleichmäßigen Mischung der Partikel im Containment aus. Während des Brandes treten - insbesondere bei den großen Brandflächen - sicher erhebliche Konzentrationsunterschiede im Containment auf, die z. T. auf die hohe Quellrate, aber auch auf die starken Turbulenzen zurückzuführen sind.

Abb. 44 zeigt, daß für einen großflächigen Lachenbrand, der die halbe Bodenfläche des Containments bedeckt, eine Nachrechnung des Verlaufes der Massenkonzentration die Meßwerte stärker überschätzt, als bei kleinerem Brand (1/14 Bodenfläche).

In Abb. 45 ist die zeitliche Änderung des mittleren massenäquivalenten Durchmessers für den Versuch F2 mit PARDISEKO berechnet und mit Meßwerten verglichen worden. Berücksichtigt man, daß die Meßgeräte der aerodynamischen Partikeldurchmesser betimmen und daß, wie oben beschrieben, der Meßfehler relativ groß ist, so ist die Übereinstimmung relativ gut.

VI Zusammenfassung der Ergebnisse und Diskussion

Die vorliegenden Versuche umfassen Brandflächen von 2 m² bis 12 m² bei Natriummengen von 150 kg bis 500 kg. Bei den Versuchen F1/F2 (2 m²) und F3/F4 (12 m²) wurde die Sauerstoffkonzentration im Versuchscontainment in den angegebenen Grenzen konstant gehalten.

Bei den Versuchen F5 (2 m²) und F6 (5 m²) wurde für die ersten 120 bzw. 60 min kein Sauerstoff zugeführt und das Versuchscontainment zur Ermittlung des Druckaufbaues geschlossen gehalten. Außerdem wurde bei den Versuchen F5 und F6 das Natrium durch eine Öffnung von nur 7 mm Durchmesser in die Brandpfanne gespritzt, so daß während des Einfüllvorganges (ca. 20 min) ein kombinierter Spritz-Pool-Brand vorlag. Bei den Experimenten wurden ca. 60 - 90% des eingefüllten Natriums während des Brandes oxidiert; die Brandrückstände bestanden zu ca. 60% aus Natriumoxid und zu ca. 40% aus Natriumperoxid. 10 - 30% des Reaktionsproduktes waren luftgetragen. Die Analysen lassen den Schluß zu, daß das luftgetragene Natrium während des Brandes zu 60 - 90% aus Natriumperoxid und zu 40 - 10% aus Natriumsuperoxid NaO₂ bestand.

Der zeitliche Ablauf eines Natriumbrandes in einem Containment läßt sich leicht anhand des Temperaturverlaufes an repräsentativen Meßstellen verfolgen. So findet man aus der Temperaturverteilung, daß sich bei kleinen Brandflächen durch die in der Mitte des Behälters angeordneten Brandpfanne eine ausgeprägte axialsymmetrische Konvektionsströmung einstellt.

Zur Erfassung der Auswirkung großflächiger Natriumbrände ist die Bestimmung der Brandrate von ausschlaggebender Bedeutung. Experimentell läßt sich die Brandrate aus der Abnahme der Sauerstoffkonzentration bestimmen; die so ermittelten Brandraten liegen zwischen 18 kg Na/m² · h (F5) und 85 kg Na/m² · h (F3). Hier ist bemerkenswert, daß - obwohl bei den Versuchen F5 und F6 während der ersten 60 bzw. 120 min die Sauerstoffkonzentration auf 9 bzw. 4% abfiel - die Brandrate nur unwesentlich zurückging. Bei Versuch F3 wurde kurzzeitig eine außergewöhnlich hohe Brandrate beobachtet, die auch zu einer Temperaturspitze im Gas über der Brandpfanne (750 °C, 4,10 m über der Brandfläche) führte. Bei diesem Brand wurden Stahleinbauten erheblich beschädigt. Die extrem hohe Brandrate beim Versuch F3 ist insbesondere auf die Aufheizung (bis zu 700 °C) der im Vergleich zur Brandfläche relativ kleinen Containmentatmosphäre, in die Sauerstoff nachgespeist wurde, zurückzuführen. Hinzu kommt,

daß im Gegensatz zu F4 die Brandpfanne nach unten hin isoliert war, so daß der wesentliche Wärmeanteil nur über die Oberfläche abgegeben werden konnte.

Neben der Thermodynamik bei großflächigen Natriumbränden sind auch die aerosolphysikalischen Auswirkungen von Interesse. Der Verlauf der Aerosolmassenkonzentration ist für alle Versuche typisch: nach einem relativ steilen Anstieg der Konzentration in den ersten 5 - 10 Minuten des Brandes bleibt diese hohe Konzentration während des Brandes annähernd konstant. Während bei den kleineren Bränden maximale Massenkonzentrationen von etwa $10 \text{ g Na}_2\text{O}_2/\text{m}^3$ gemessen wurden, lagen die entsprechenden Werte bei großen Brandflächen bis zum Faktor 4 - 5 höher. Nach dem Brand wurde ein exponentieller Abfall der Massenkonzentration beobachtet. Innerhalb von ca. 10 Stunden fiel die Konzentration um 5 Größenordnungen auf etwa $0,1 \text{ mg}/\text{m}^3$ ab. Ein Vergleich der Massenkonzentrationsverläufe bestätigt die aus der Aerosolphysik abzuleitende Tatsache, daß aufgrund der Abscheideprozesse höhere Konzentrationen (F3) schneller abfallen als geringe Partikelkonzentrationen (F1, F2). Bei den Versuchen wurde die Massenkonzentration der Aerosole sowohl mit einem kontinuierlich arbeitenden Gerät SAMM [5] als auch durch Auswaschen der Aerosole in mehreren hintereinander geschalteten Waschflaschen, durch Filterabscheidung und auch bei niedrigen Konzentrationen mit der Partikelmassenwaage bestimmt. Diese verschiedenen Methoden zeigen eine gute Übereinstimmung. Die Aerosole bestanden ausschließlich aus Na_2O_2 . Die gemessenen (massenbezogenen, aerodynamischen) Durchmesser lagen für alle Versuche bei $1,4 \text{ }\mu\text{m}$ bis $3 \text{ }\mu\text{m}$ während des Brandes, wobei die Durchmesser gegen Brandende anwachsen, um dann nach Brandende wieder abzunehmen.

Obwohl Brände aus gleicher Brandfläche nicht unbedingt völlig gleichartig verlaufen, so lassen sich doch einige Schlußfolgerungen ziehen: größere Brandflächen führen in geschlossenen Räumen zu größeren Brandraten. Dies ist eine Folge der größeren Wärmefreisetzung von großen Brandflächen. Dadurch werden sowohl das Gas im Versuchskessel als auch das Natrium in der Brandpfanne stärker erwärmt. Dieses höhere Temperaturniveau führt letztlich zu einer Steigerung der Brandrate. Aus ähnlichen Gründen läßt sich auch feststellen, daß die Brandrate mit der Branddauer zunimmt. Aus den Versuchen läßt sich folgern, daß höhere Gastemperaturen eine höhere Brandrate zur Folge haben. Bei keinem Versuch jedoch hat die auf die gesamte Versuchszeit bezogene Brandrate $33 \text{ kg}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ überschritten.

VII Literatur

- [1] I. Böhm, S. Jordan: Aerosolerzeugung und Filterverhalten bei Natriumbränden, KfK 2202
- [2] A. Alexas, S. Jordan, W. Lindner: unveröffentlichter Bericht
- [3] W. Lindner, J. Kind: Beschreibung der Forschungsanlage zur Untersuchung nuklearer Aerosole (FAUNA), KfK 3011
- [4] S. Jordan, W. Lindner: unveröffentlichter Bericht
- [5] W. Cherdron, Ch. Hofmann, S. Jordan: Experience on Measurement Methods for Sodium Fire Aerosols, 2nd CSNI Specialist Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, Gatlinburg/Tennessee, U.S.A., April 1980
- [6] Ch. Hofmann: unveröffentlichter Bericht

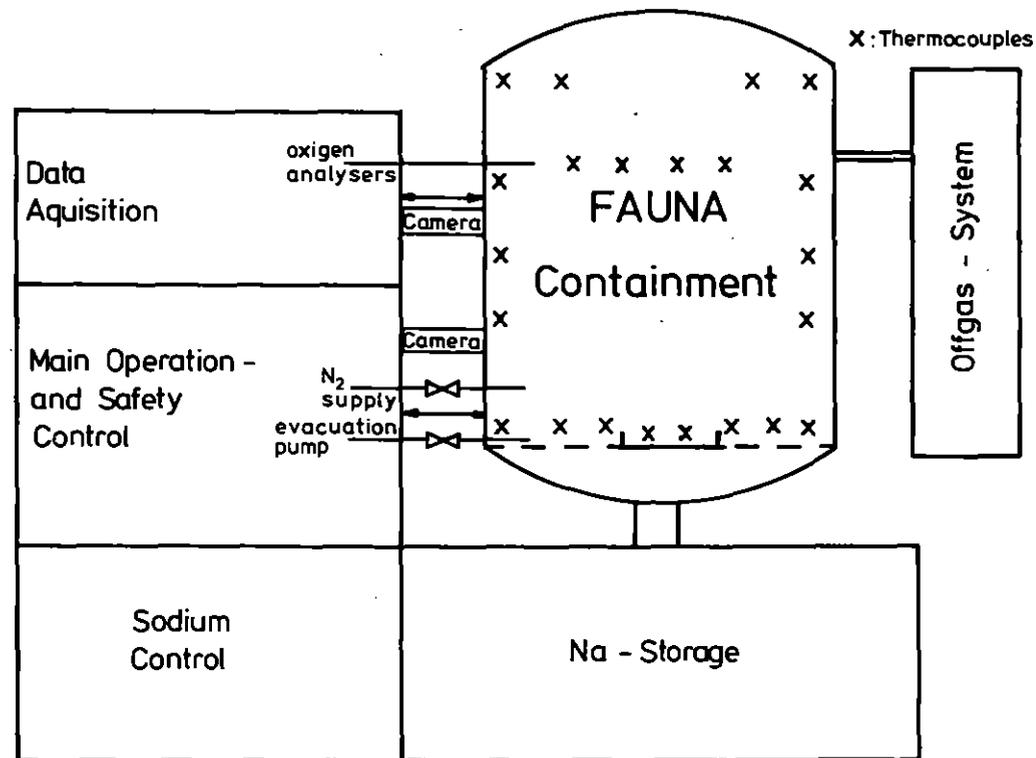


Abb.1: Anlagen-Überblick

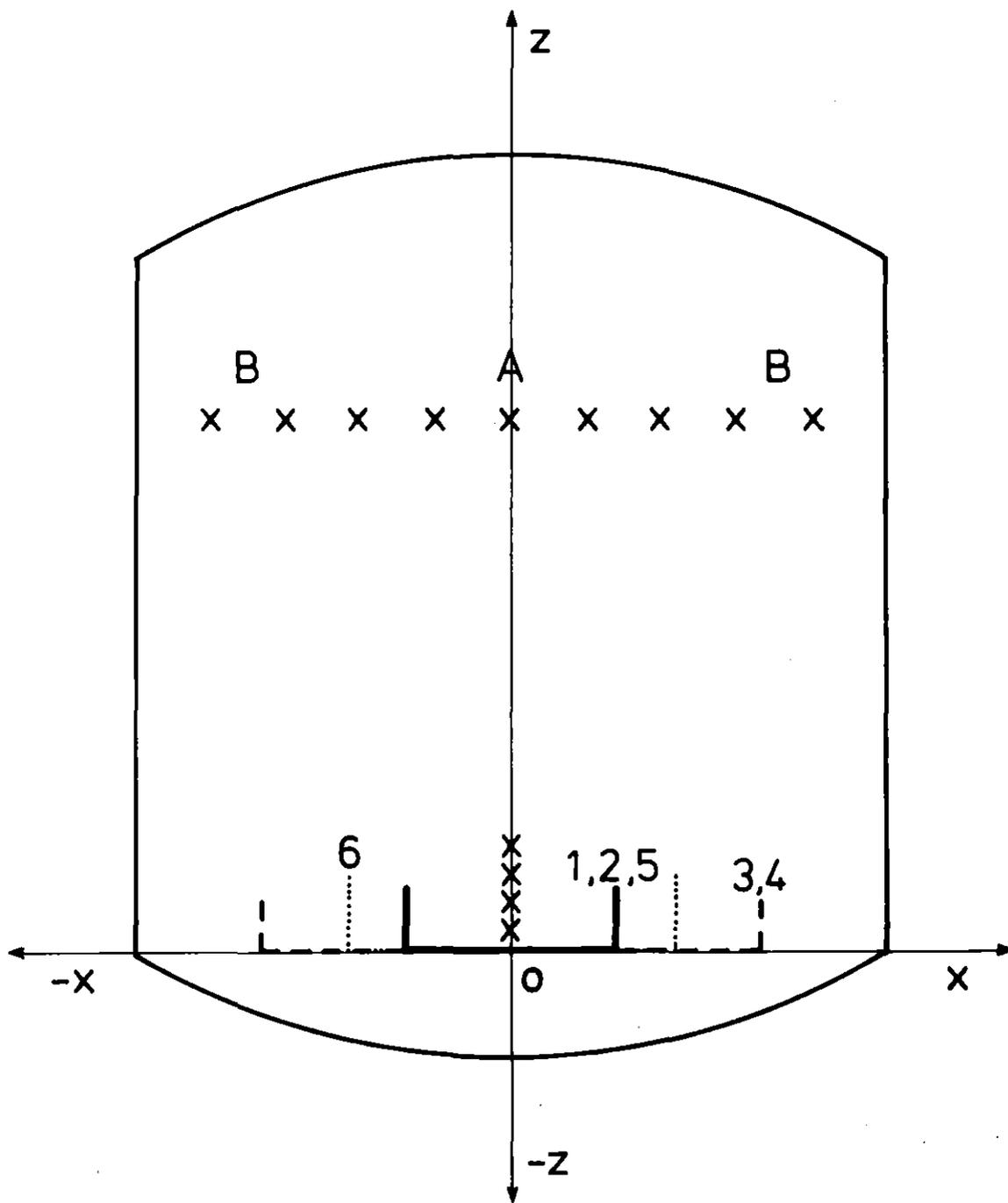


Abb. 2: Anordnung der Brandpfanne und Lage der wichtigsten Thermoelemente

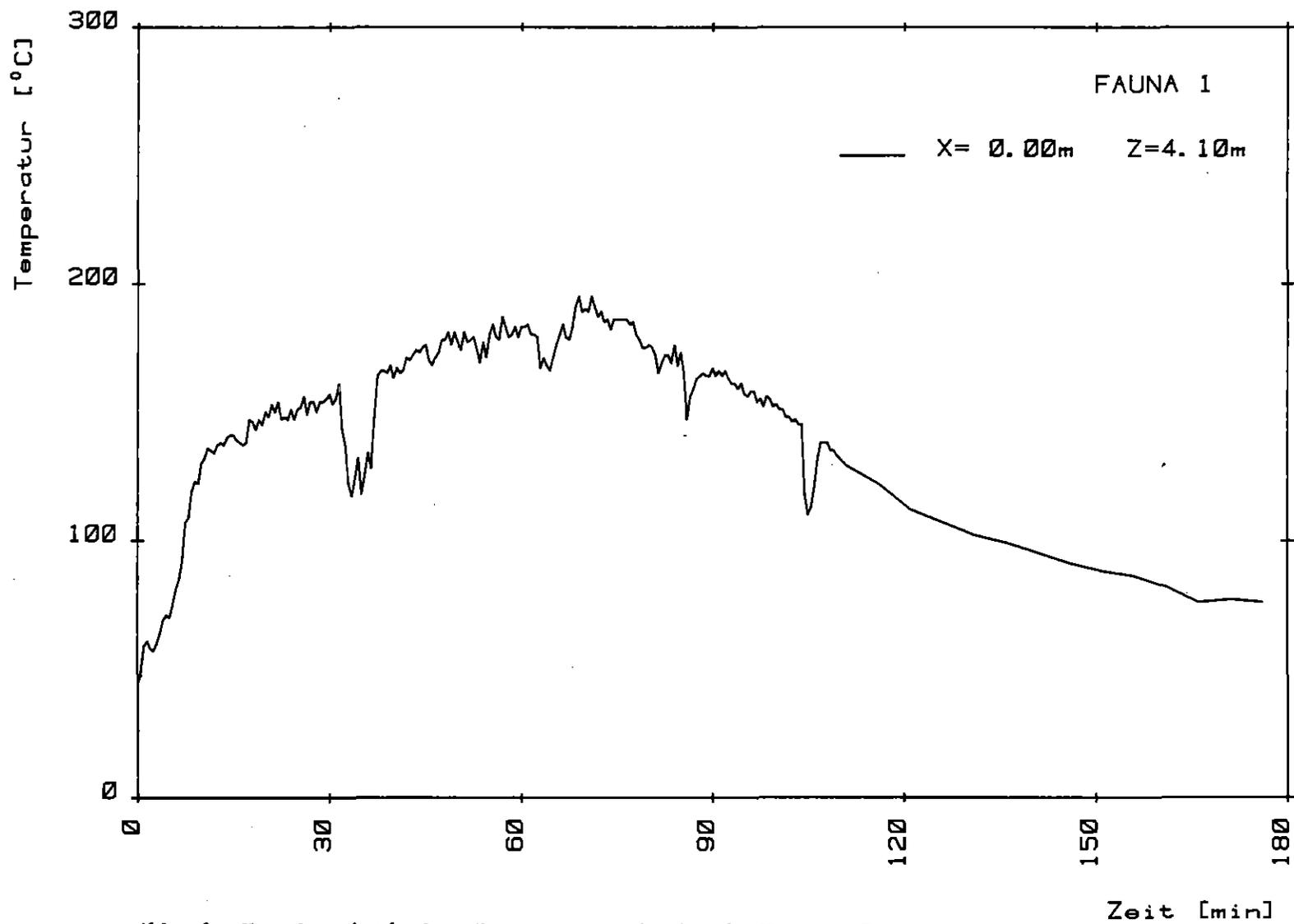


Abb. 3: Charakteristischer Temperaturverlauf beim Versuch F1

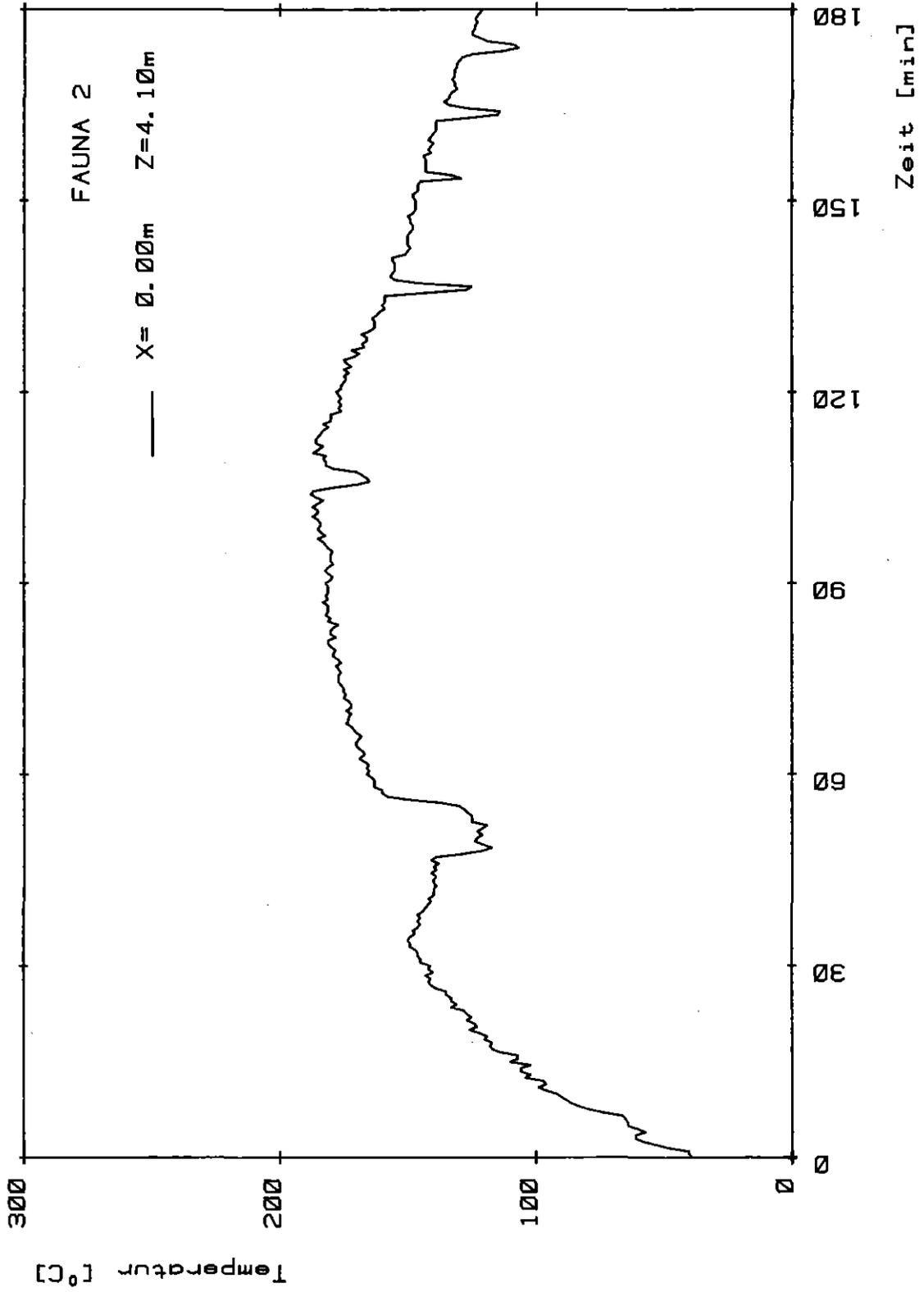


Abb. 4: Charakteristischer Temperaturverlauf beim Versuch F2

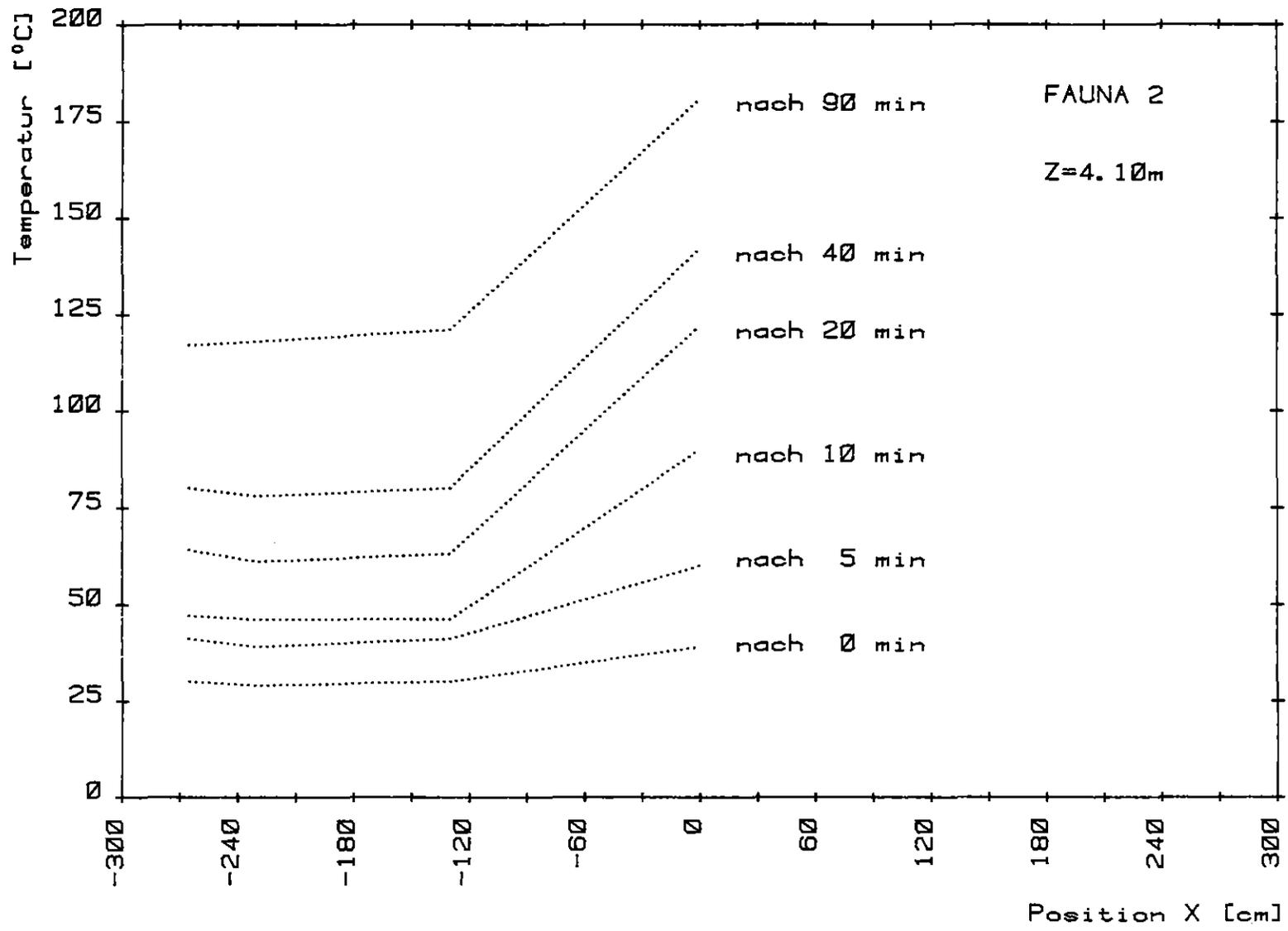


Abb. 5: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

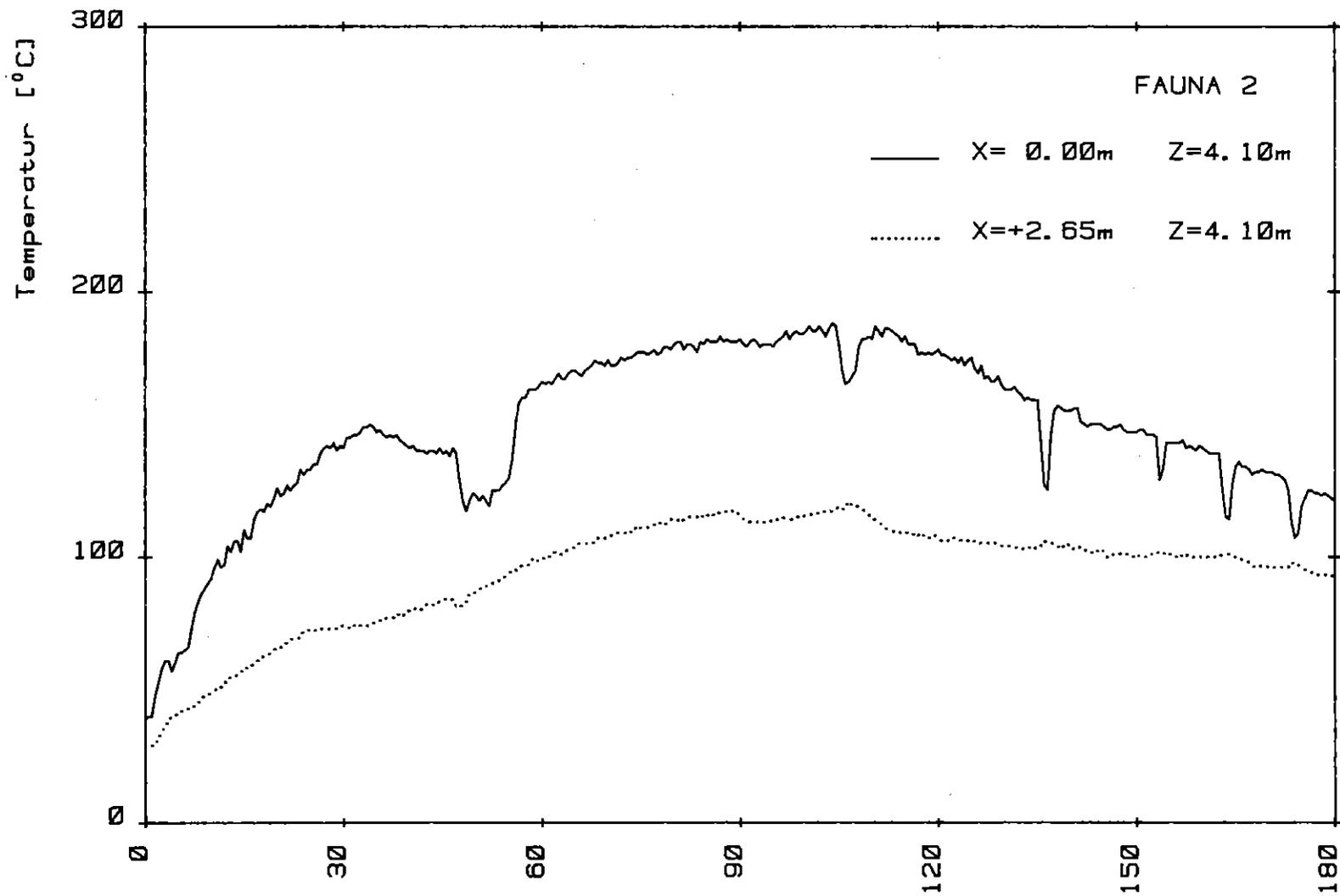


Abb. 6: Vergleich des Temperaturverlaufes in der Kesselmitte und am Kesselrand Zeit [min]

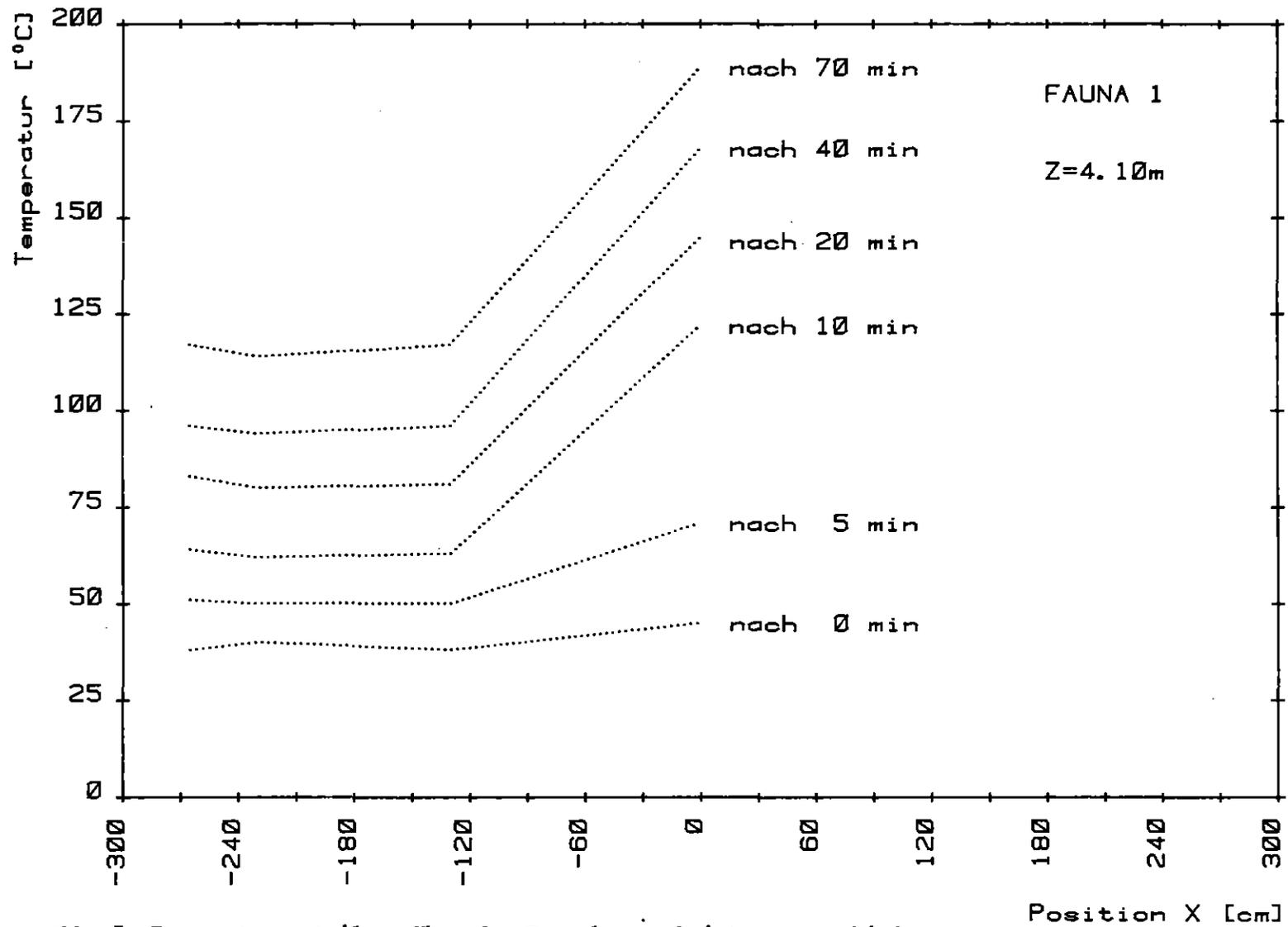


Abb. 7: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

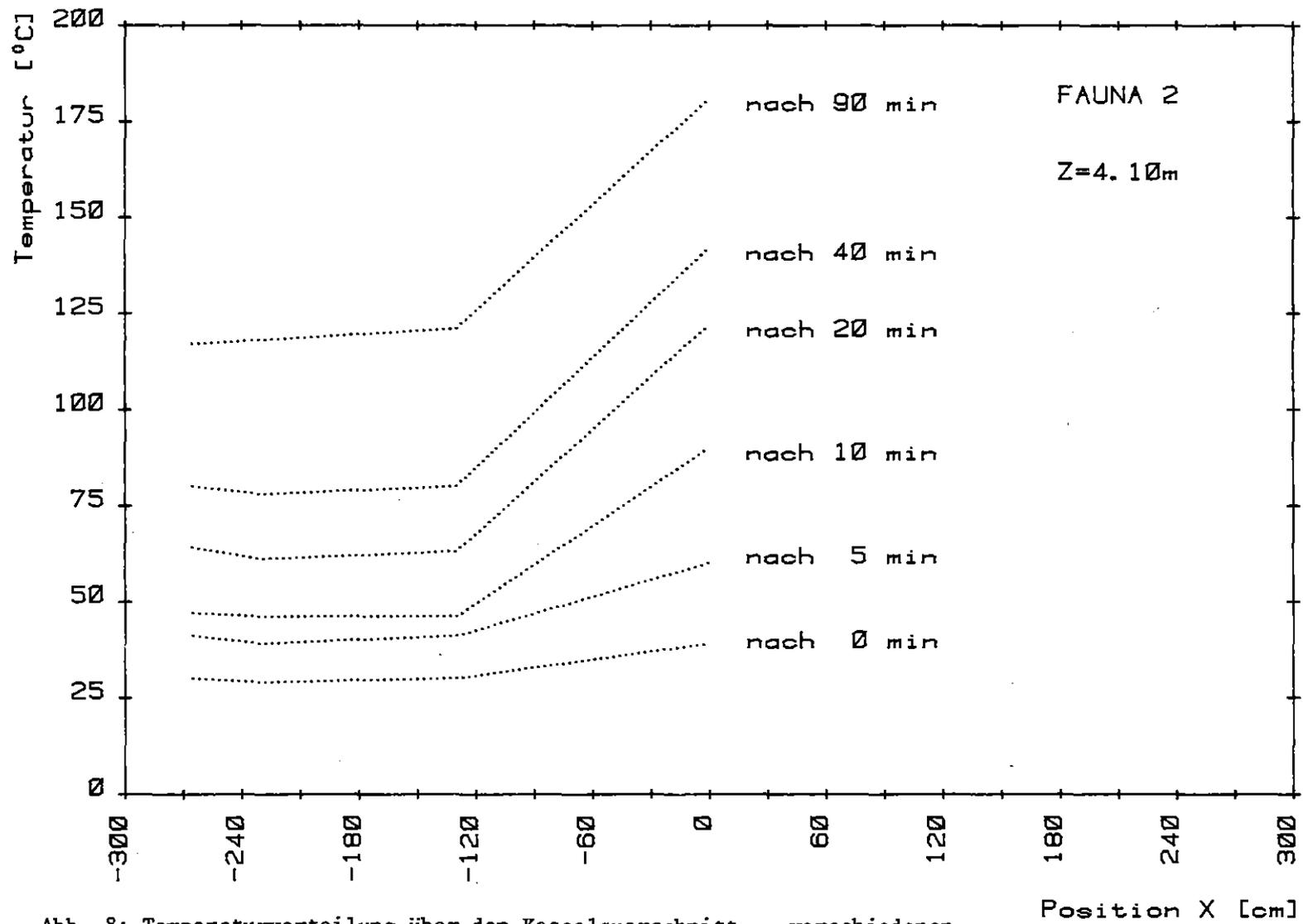


Abb. 8: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

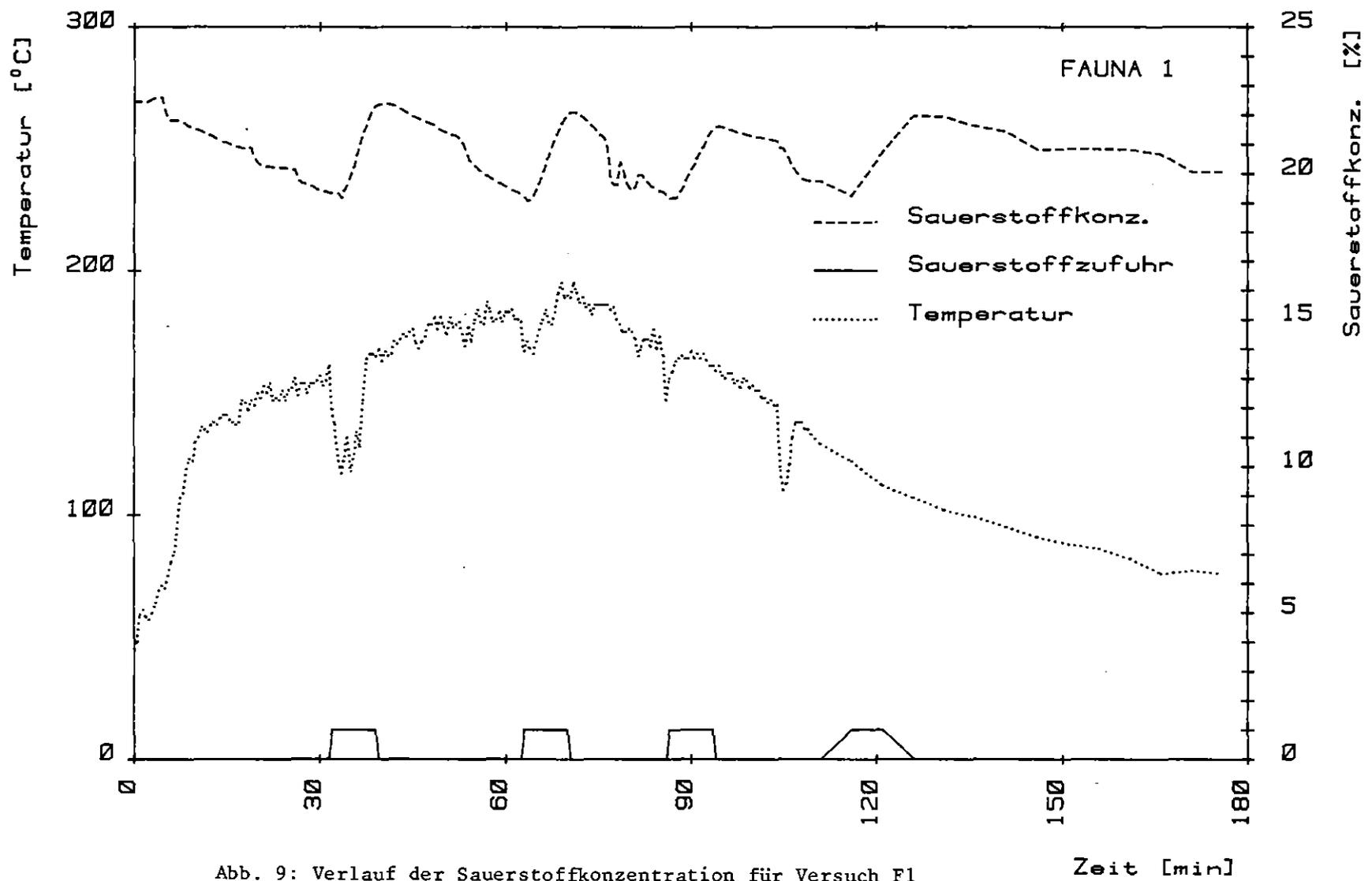


Abb. 9: Verlauf der Sauerstoffkonzentration für Versuch F1

Zeit [min]

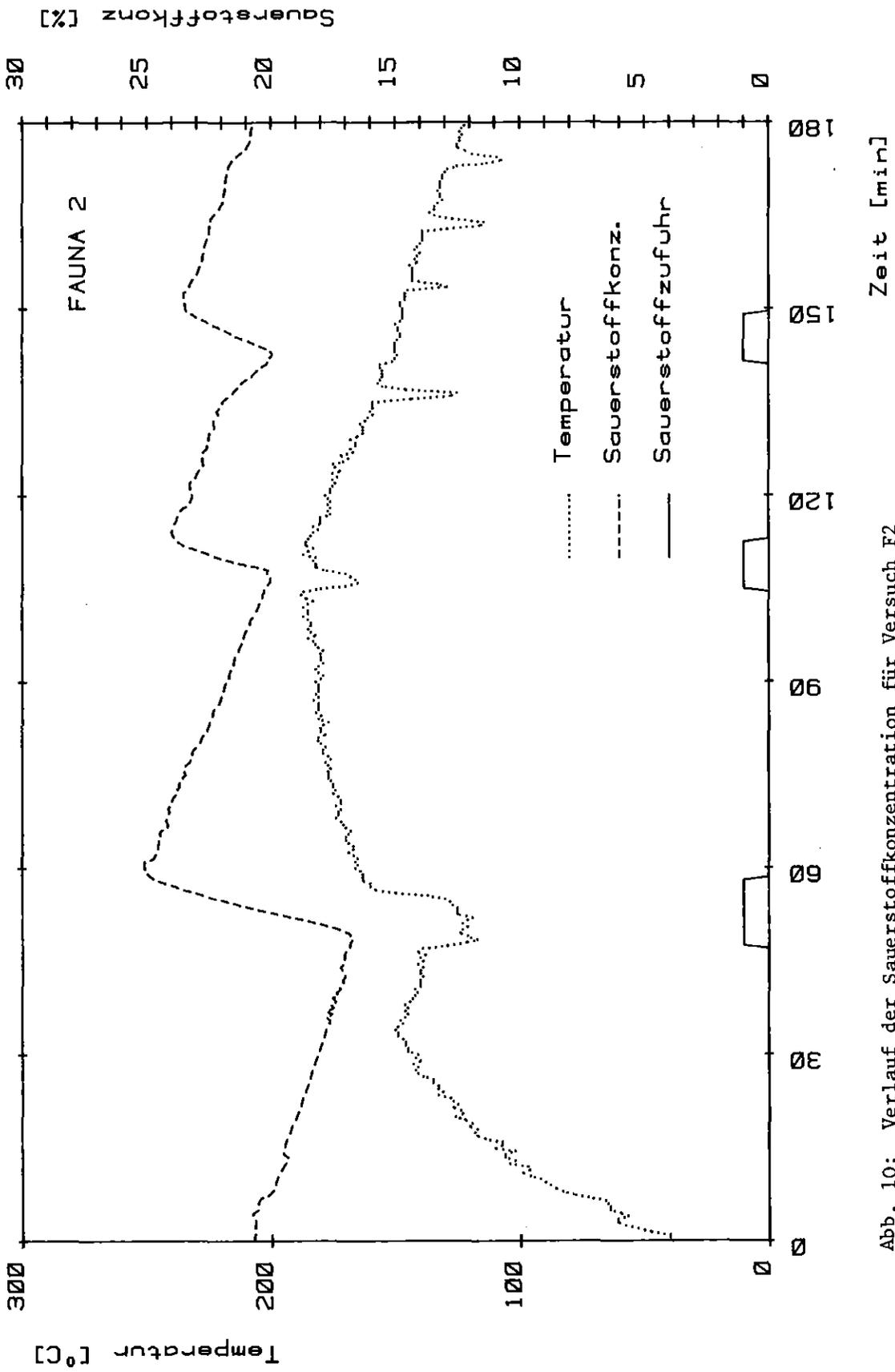


Abb. 10: Verlauf der Sauerstoffkonzentration für Versuch F2

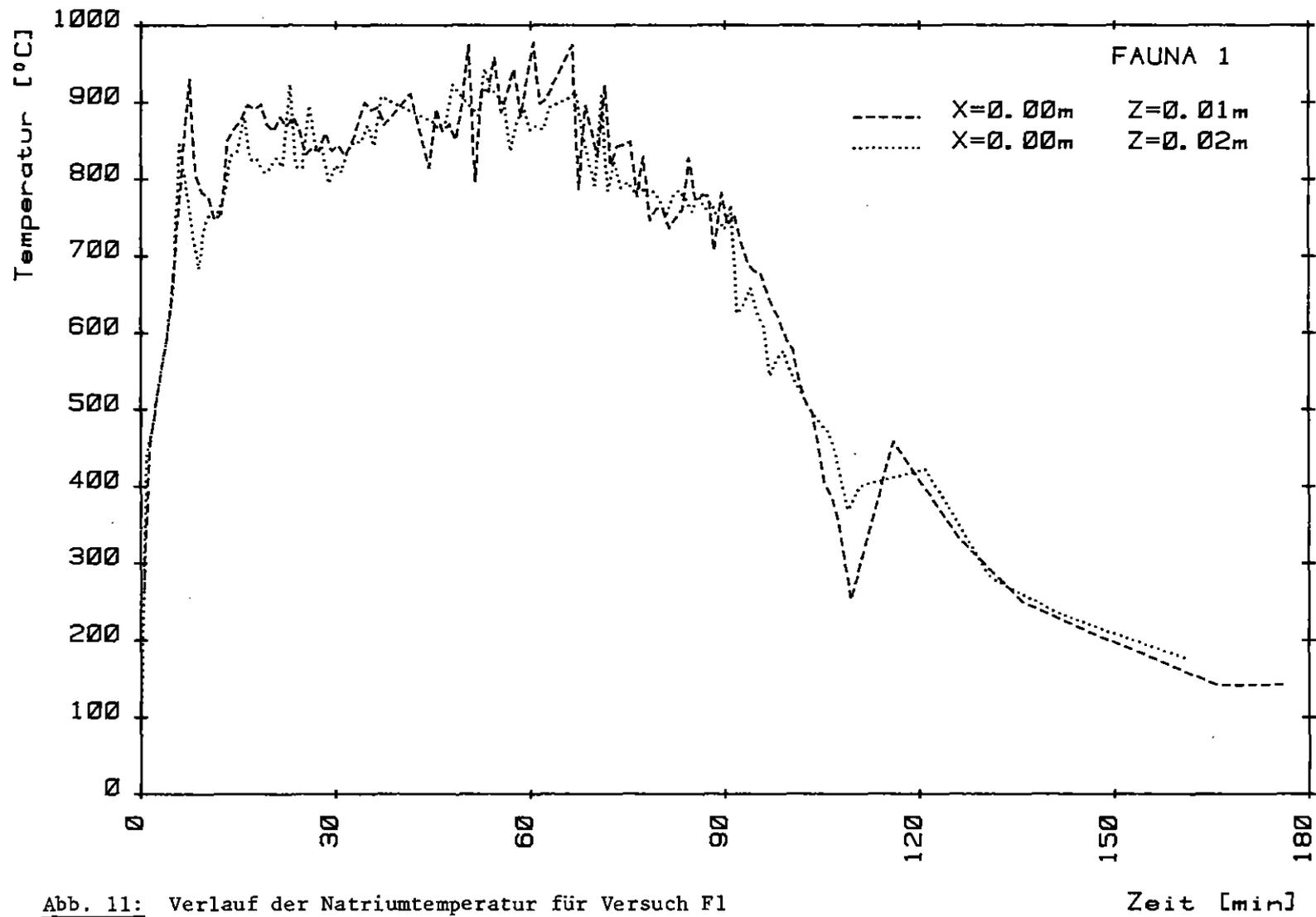


Abb. 11: Verlauf der Natriumtemperatur für Versuch F1

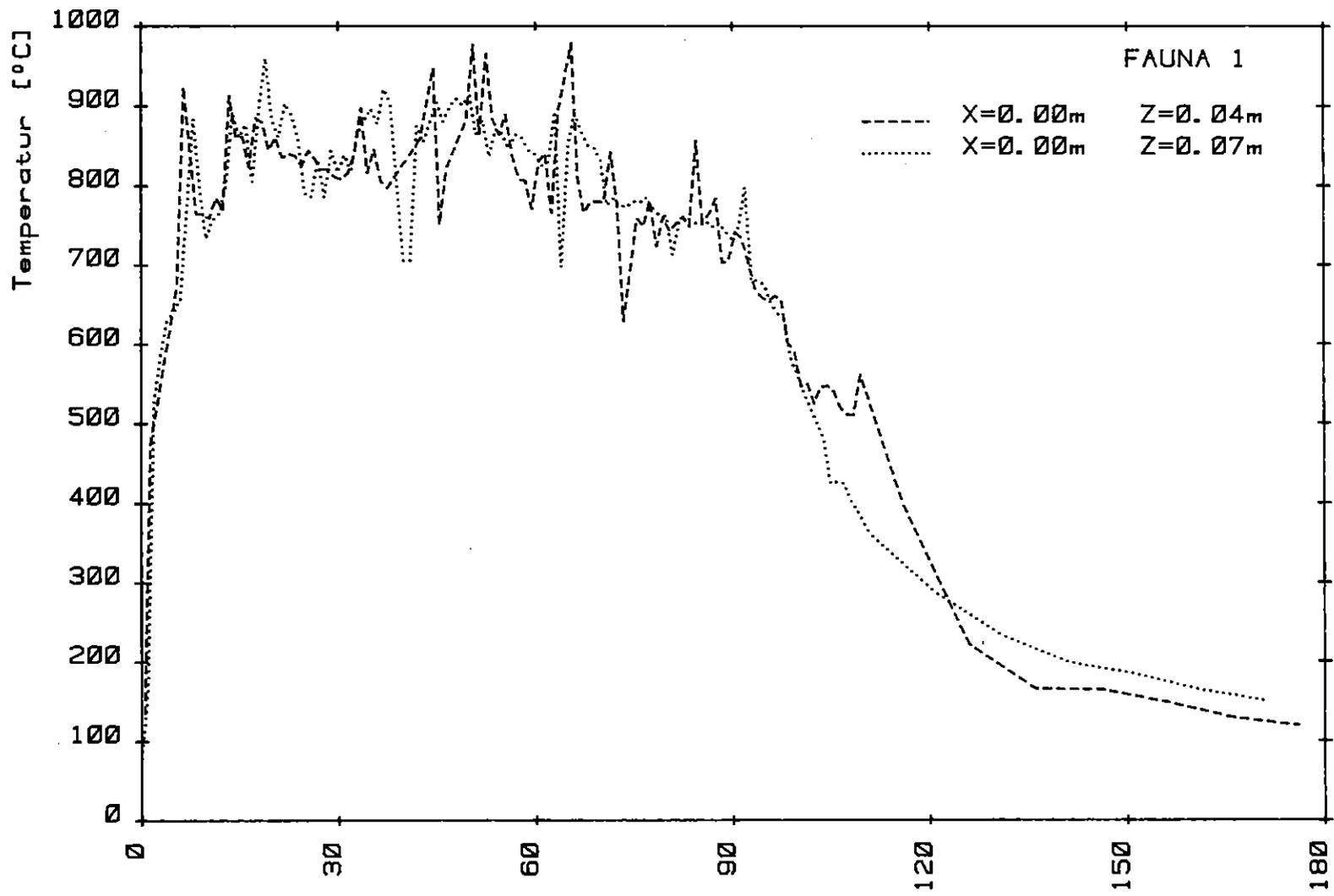


Abb. 12: Verlauf der Natriumtemperatur für Versuch F2

Zeit [min]

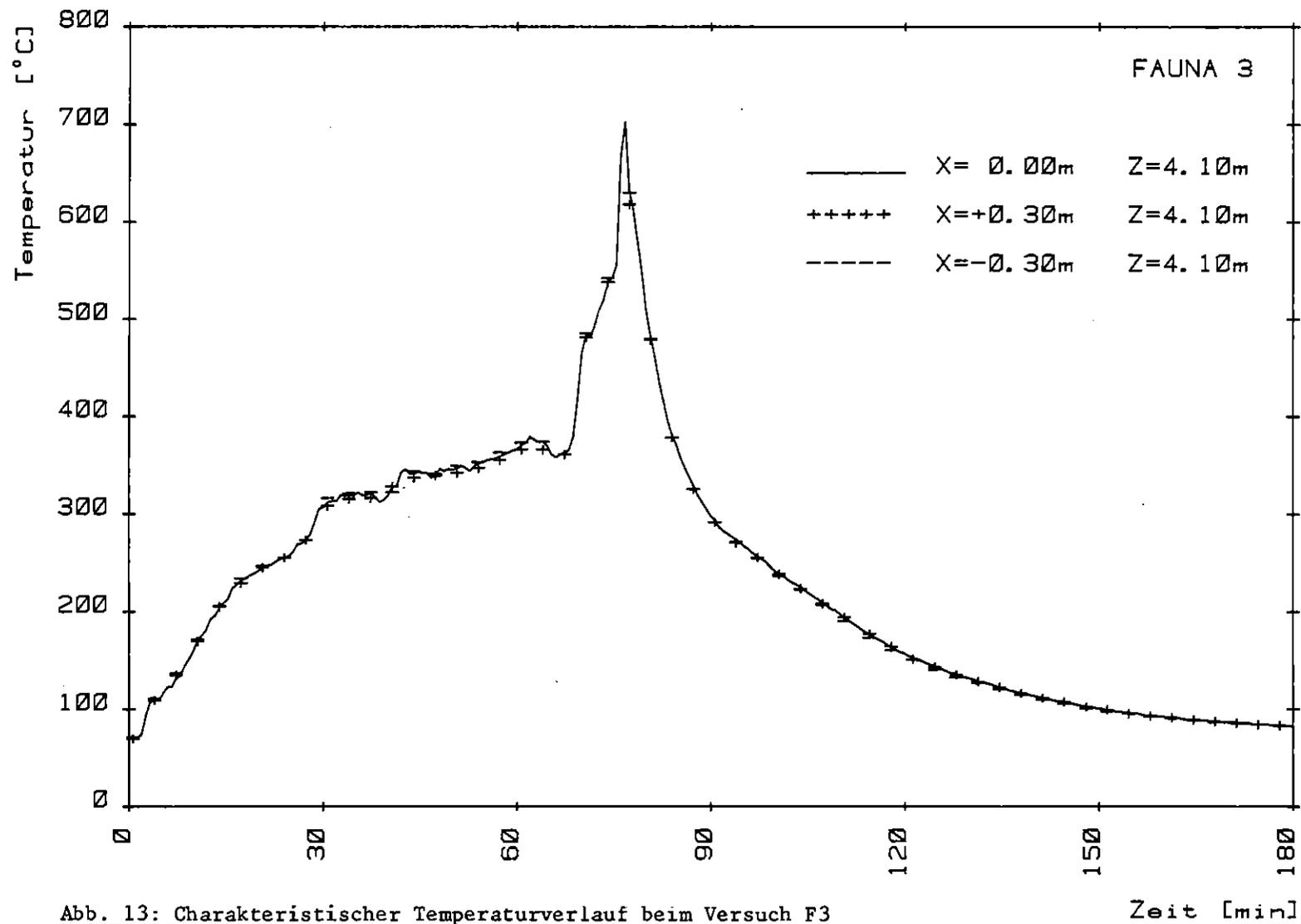


Abb. 13: Charakteristischer Temperaturverlauf beim Versuch F3

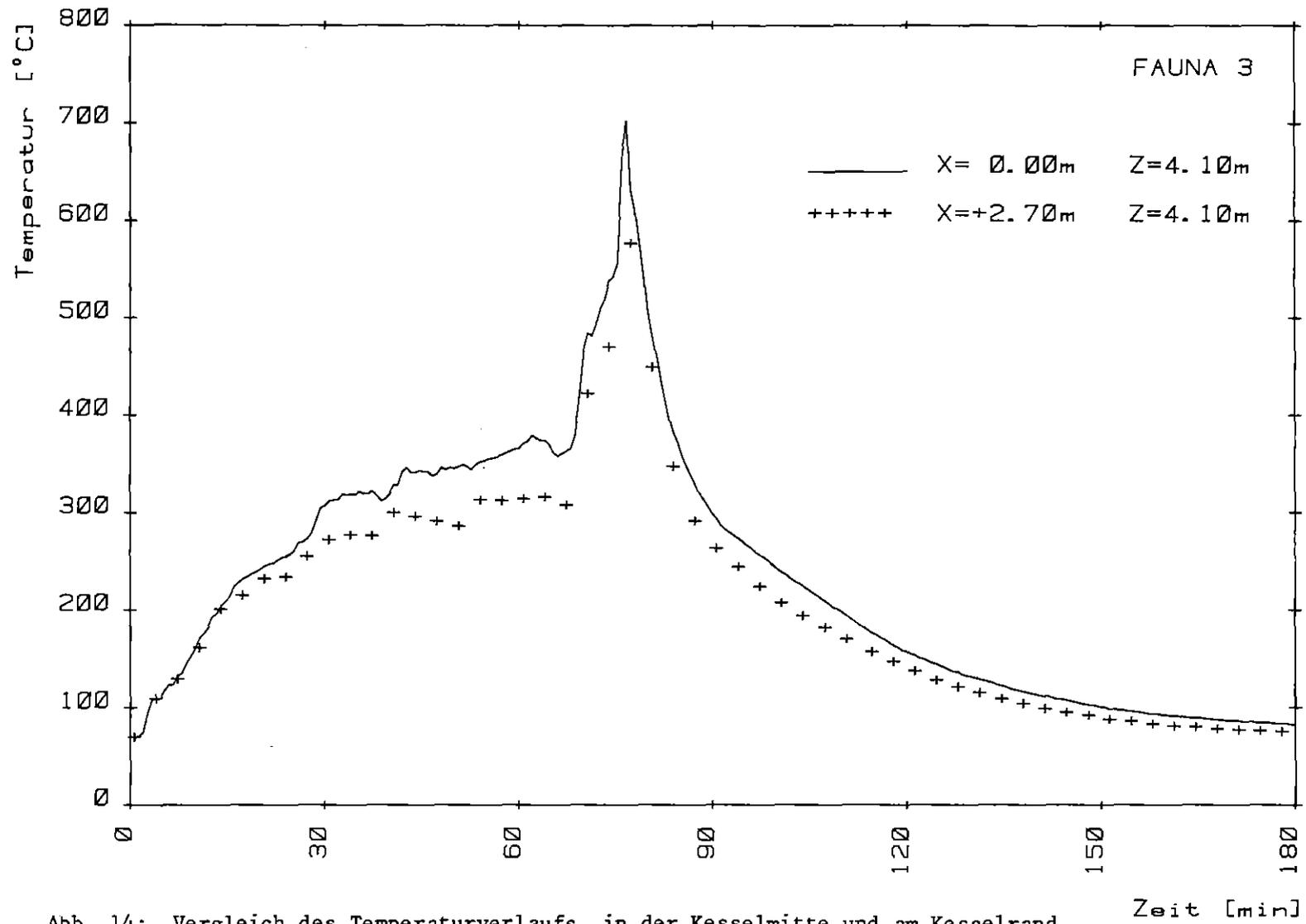


Abb. 14: Vergleich des Temperaturverlaufs in der Kesselmitte und am Kesselrand

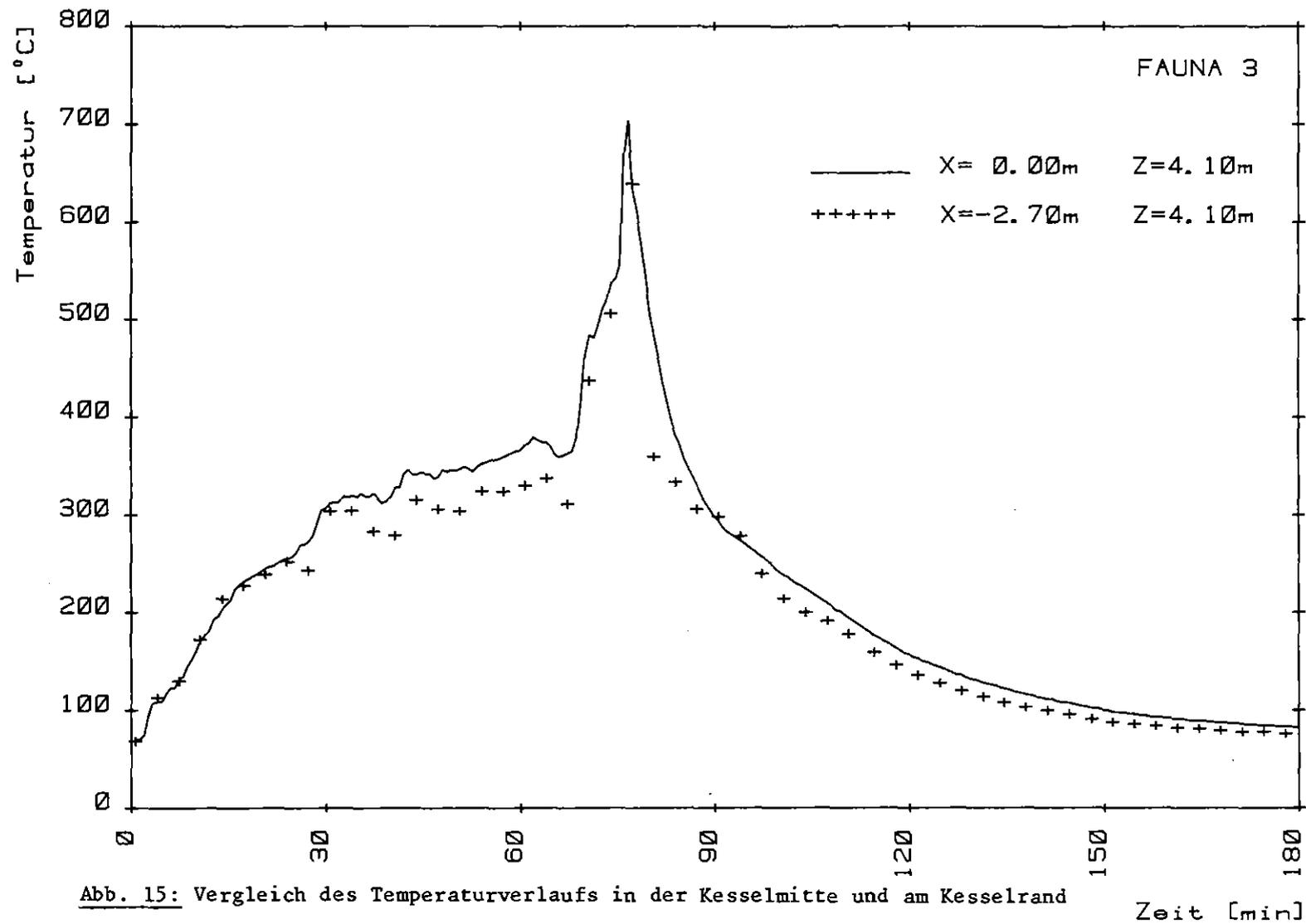


Abb. 15: Vergleich des Temperaturverlaufs in der Kesselmitte und am Kesselrand

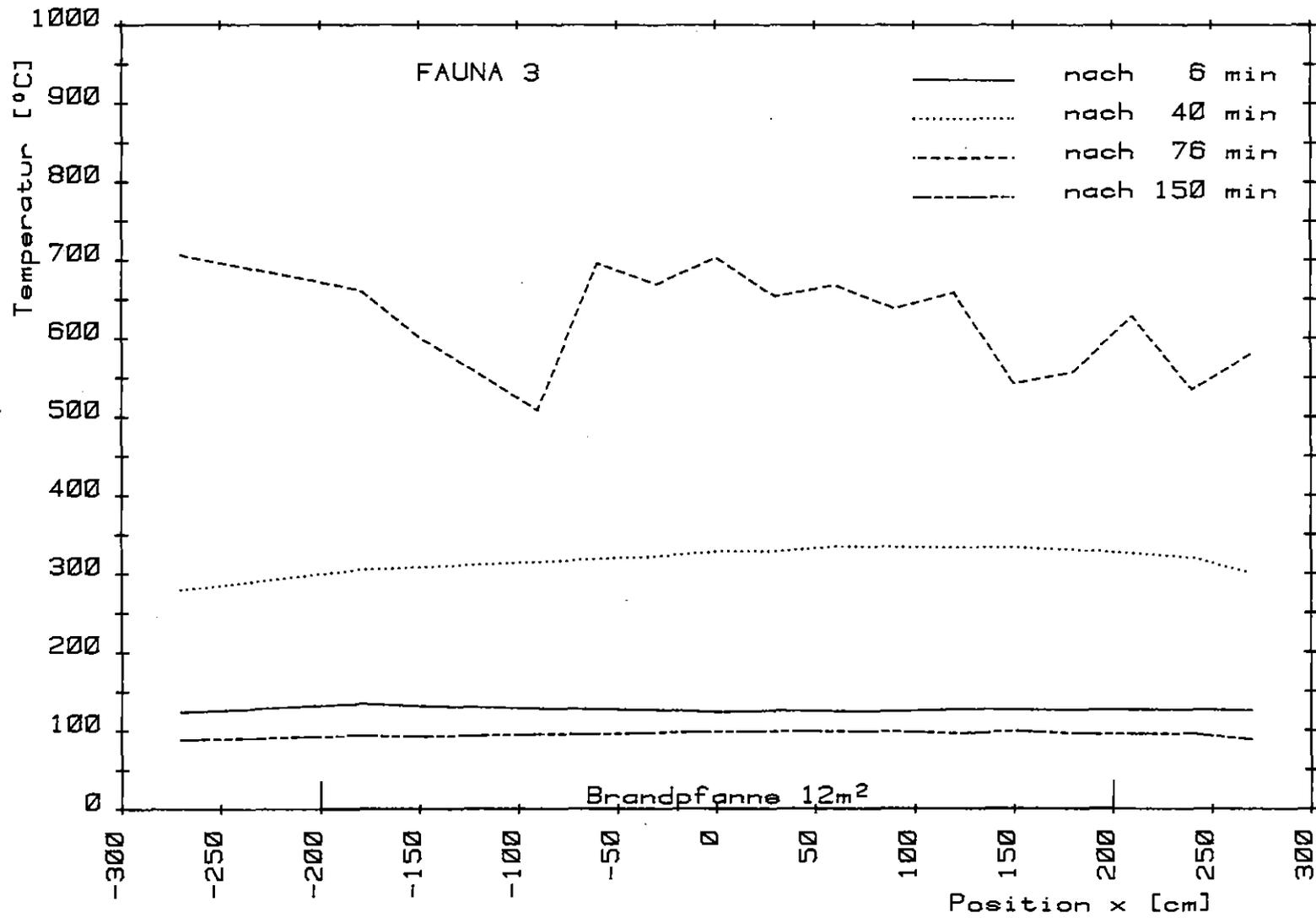


Abb. 16: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

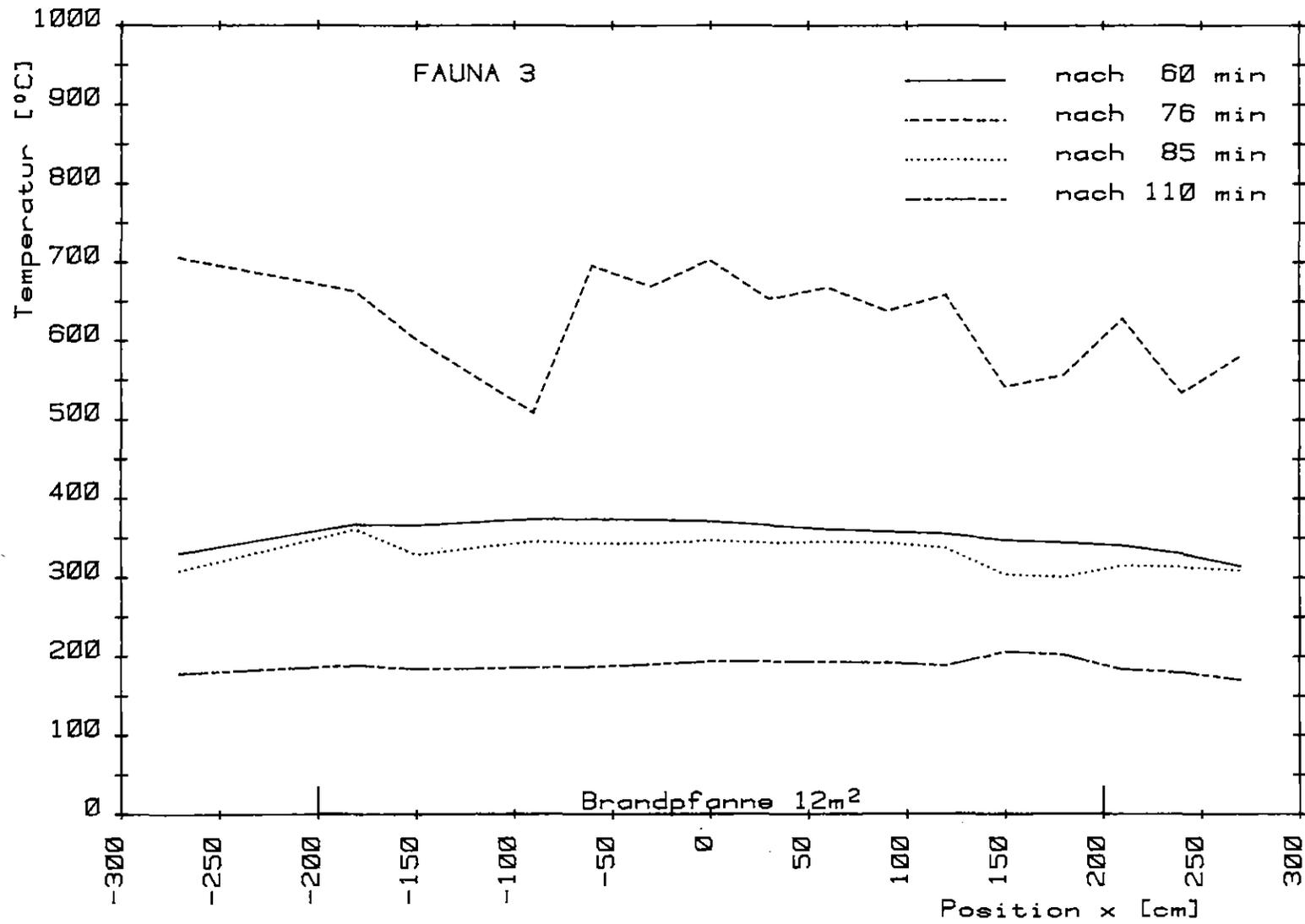


Abb. 17: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

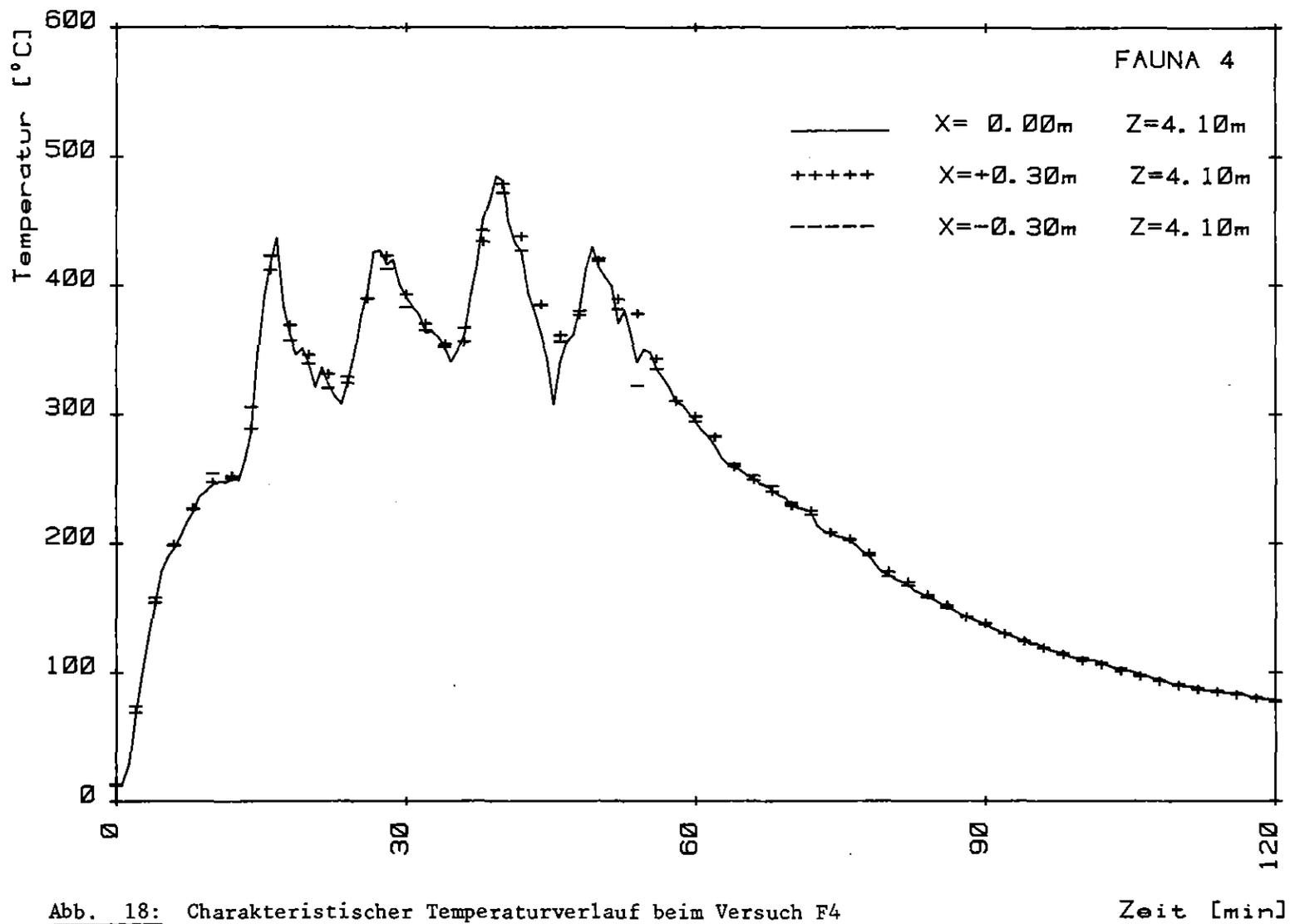


Abb. 18: Charakteristischer Temperaturverlauf beim Versuch F4

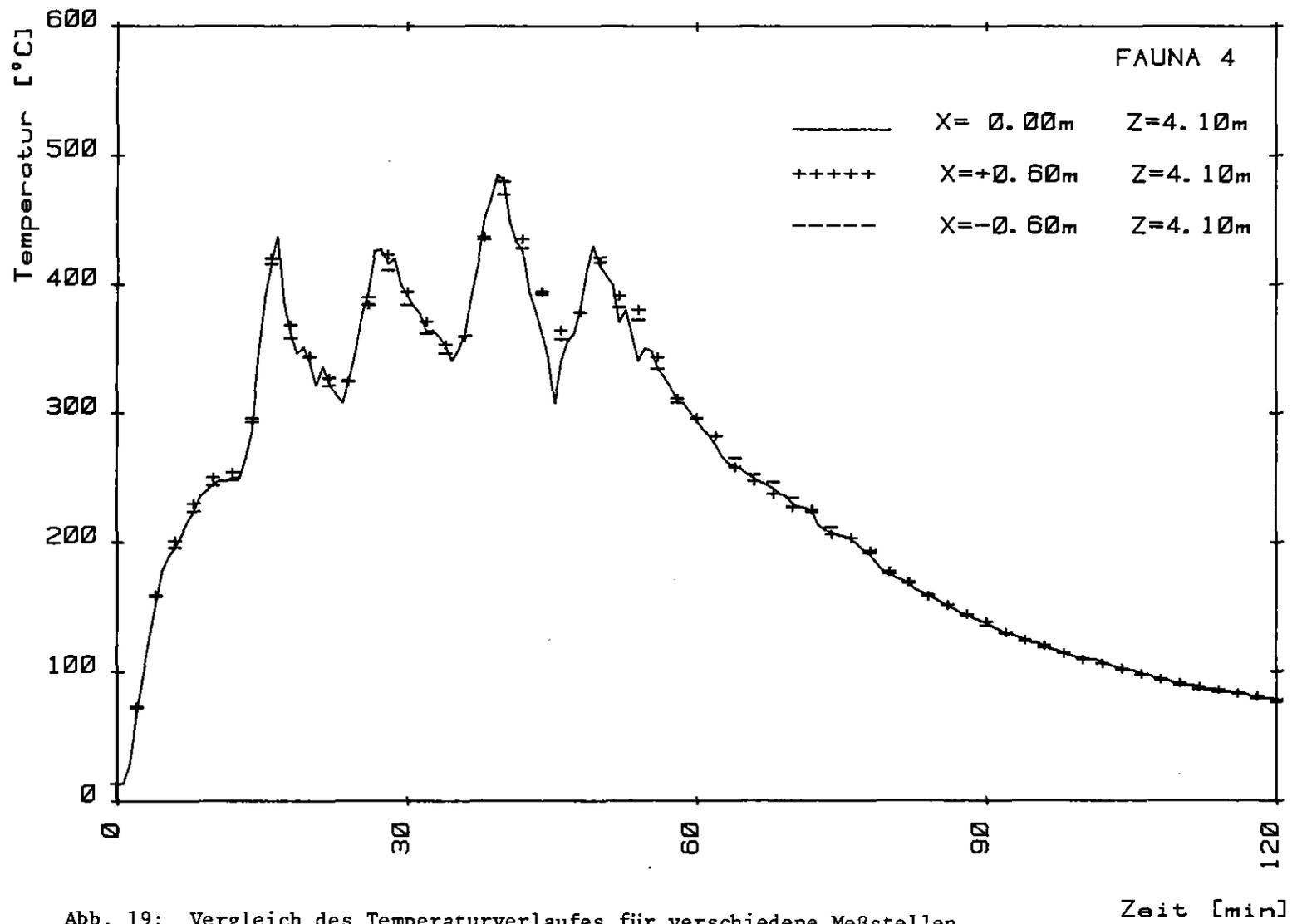


Abb. 19: Vergleich des Temperaturverlaufes für verschiedene Meßstellen

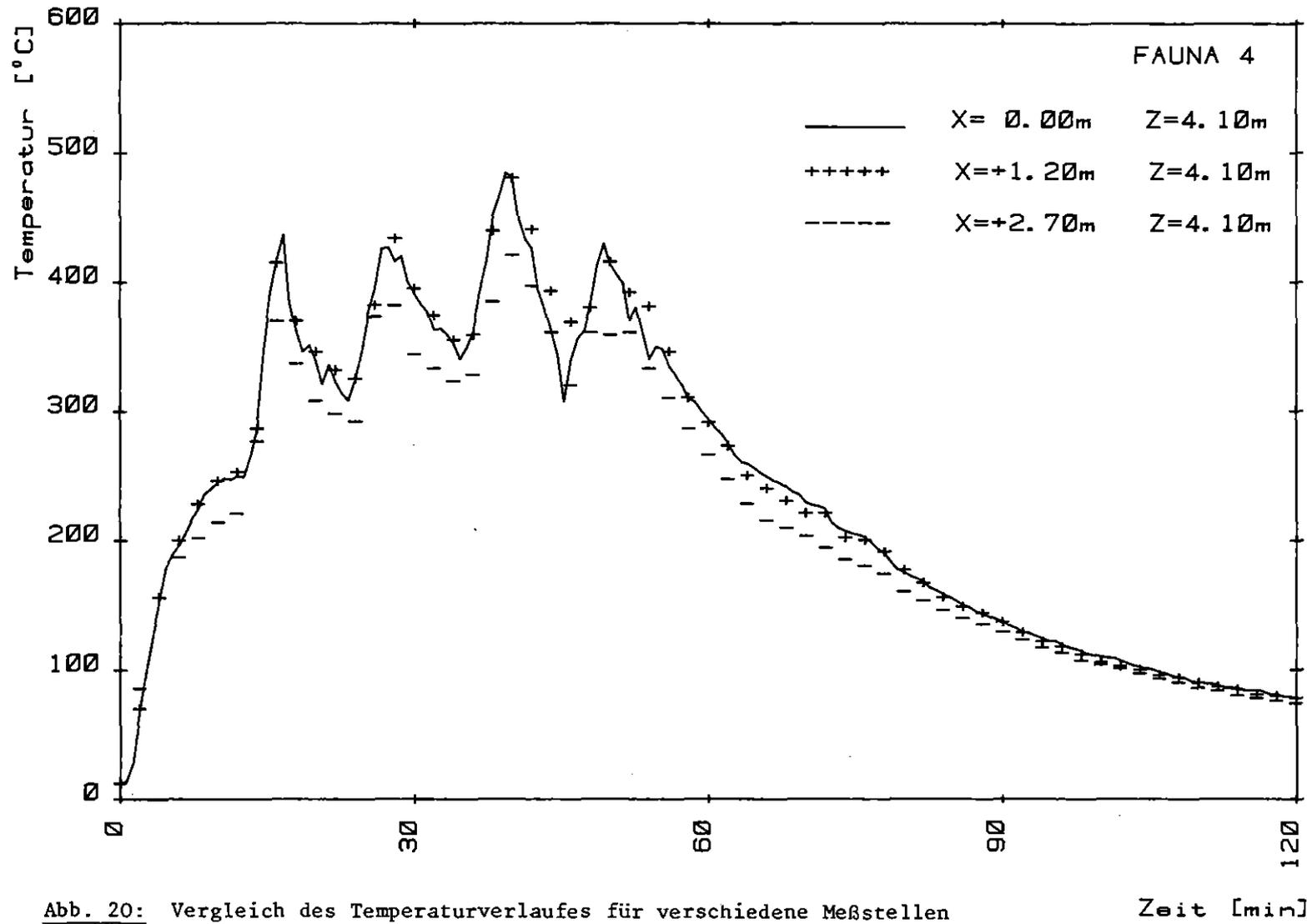


Abb. 20: Vergleich des Temperaturverlaufes für verschiedene Meßstellen

Zeit [min]

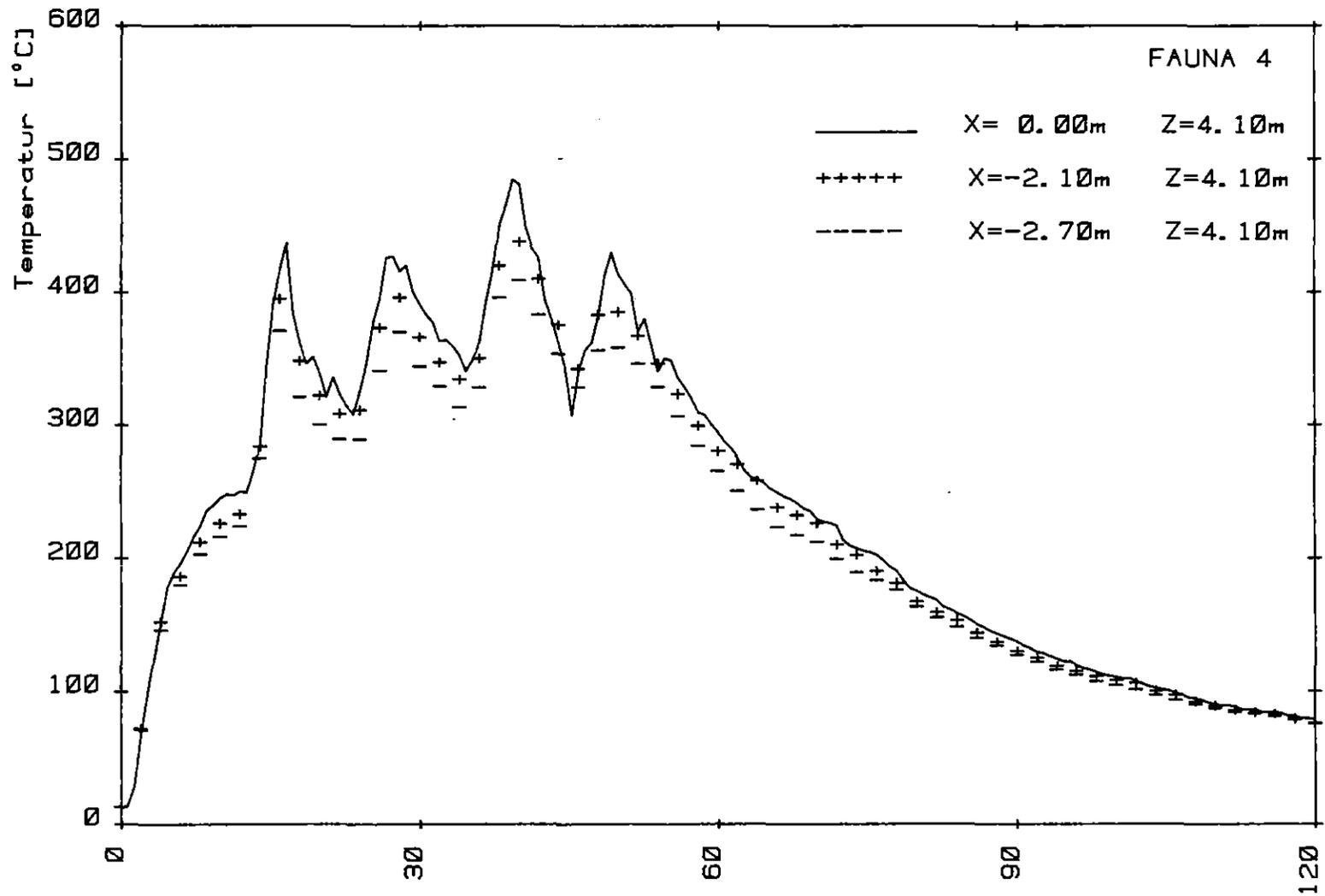


Abb. 21: Vergleich des Temperaturverlaufes für verschiedene Meßstellen

Zeit [min]

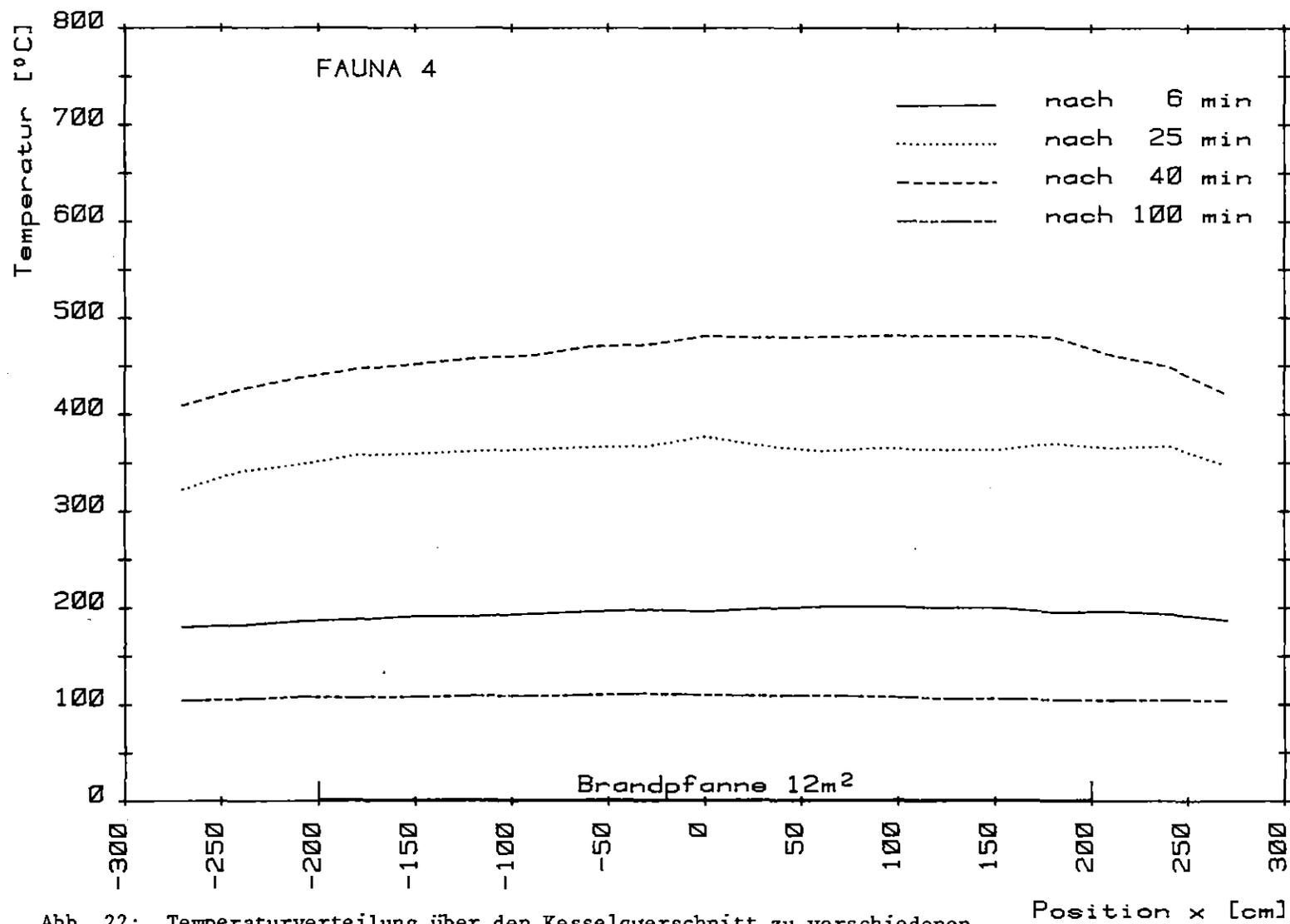


Abb. 22: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

Position x [cm]

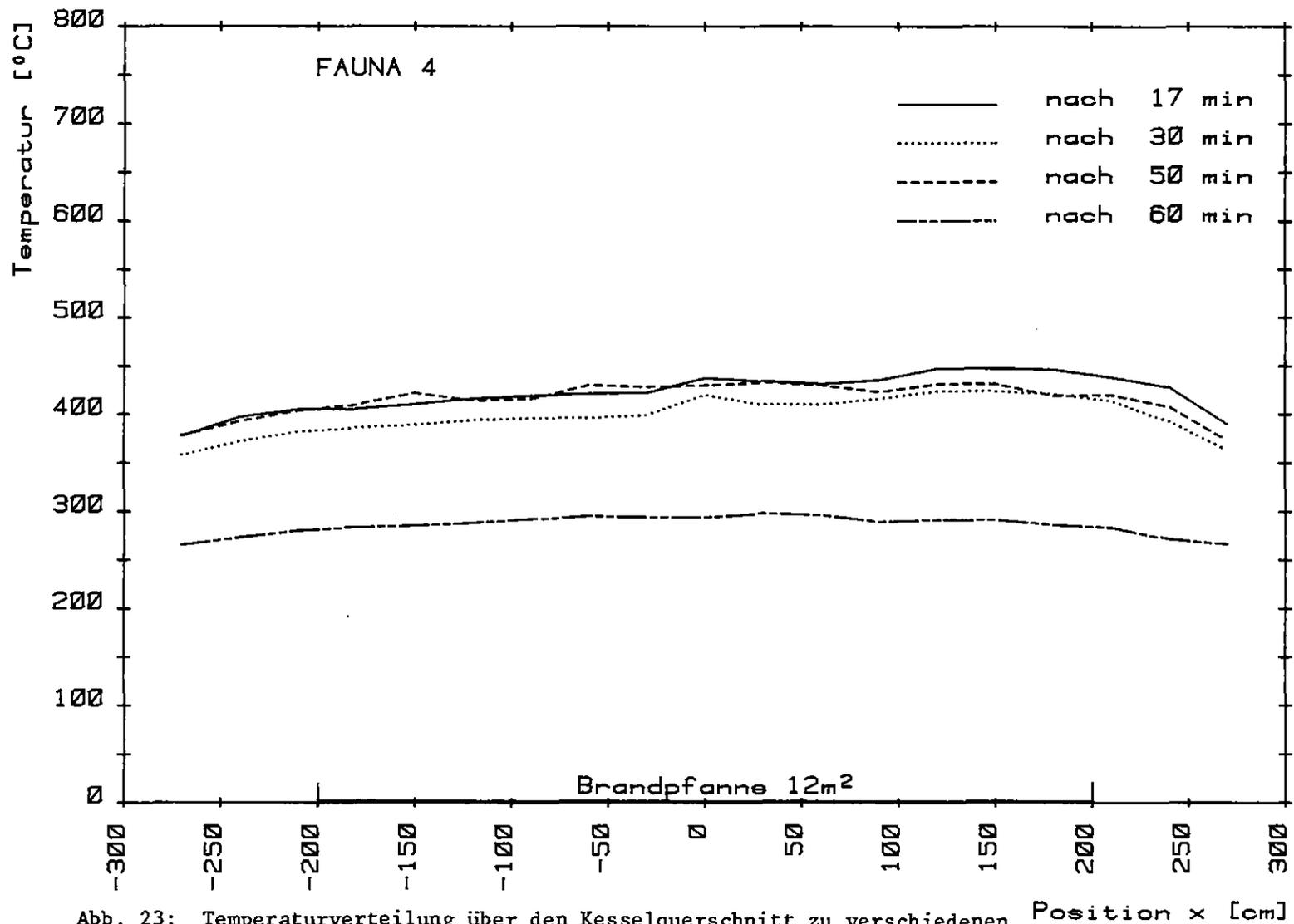


Abb. 23: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

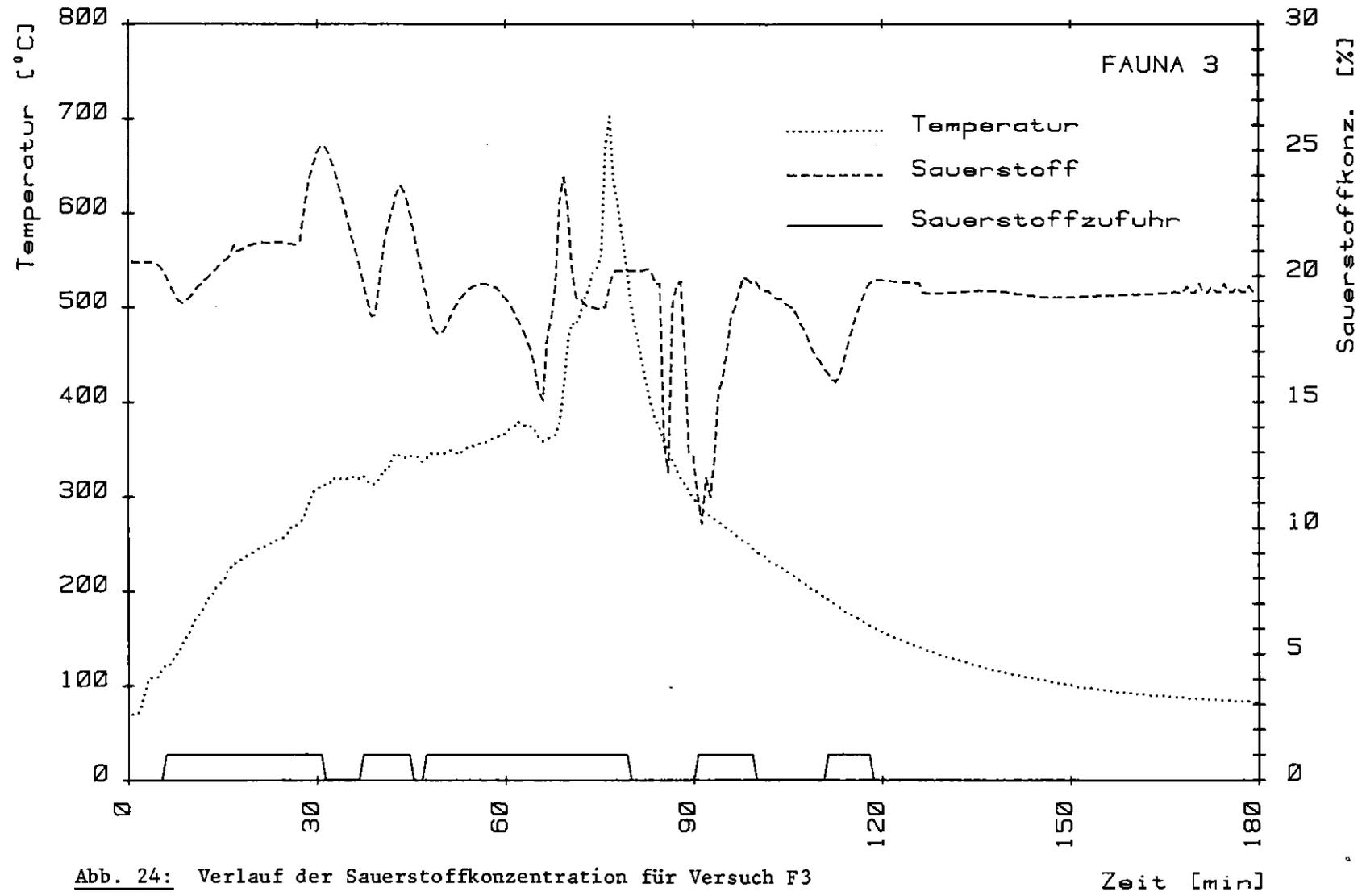


Abb. 24: Verlauf der Sauerstoffkonzentration für Versuch F3

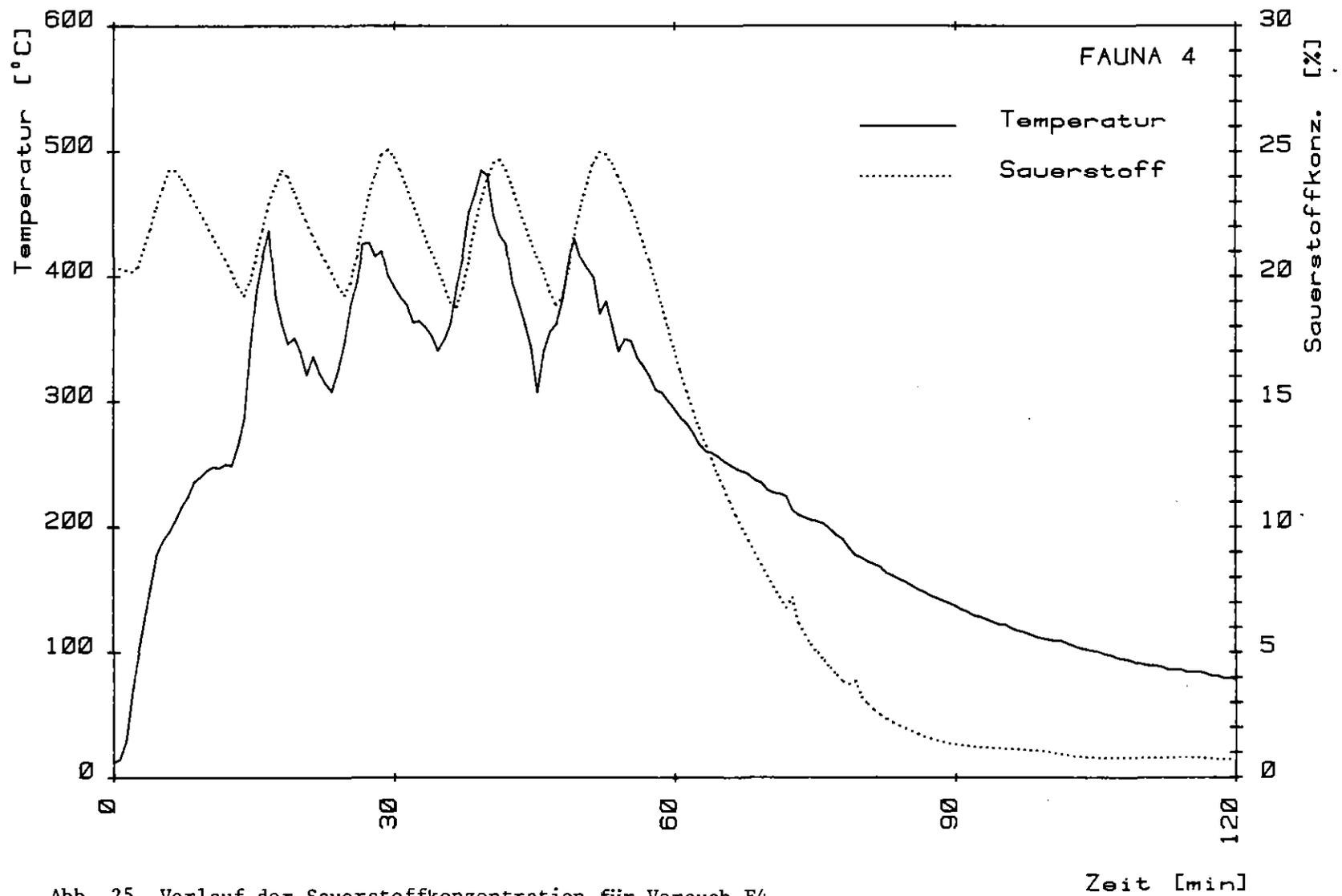
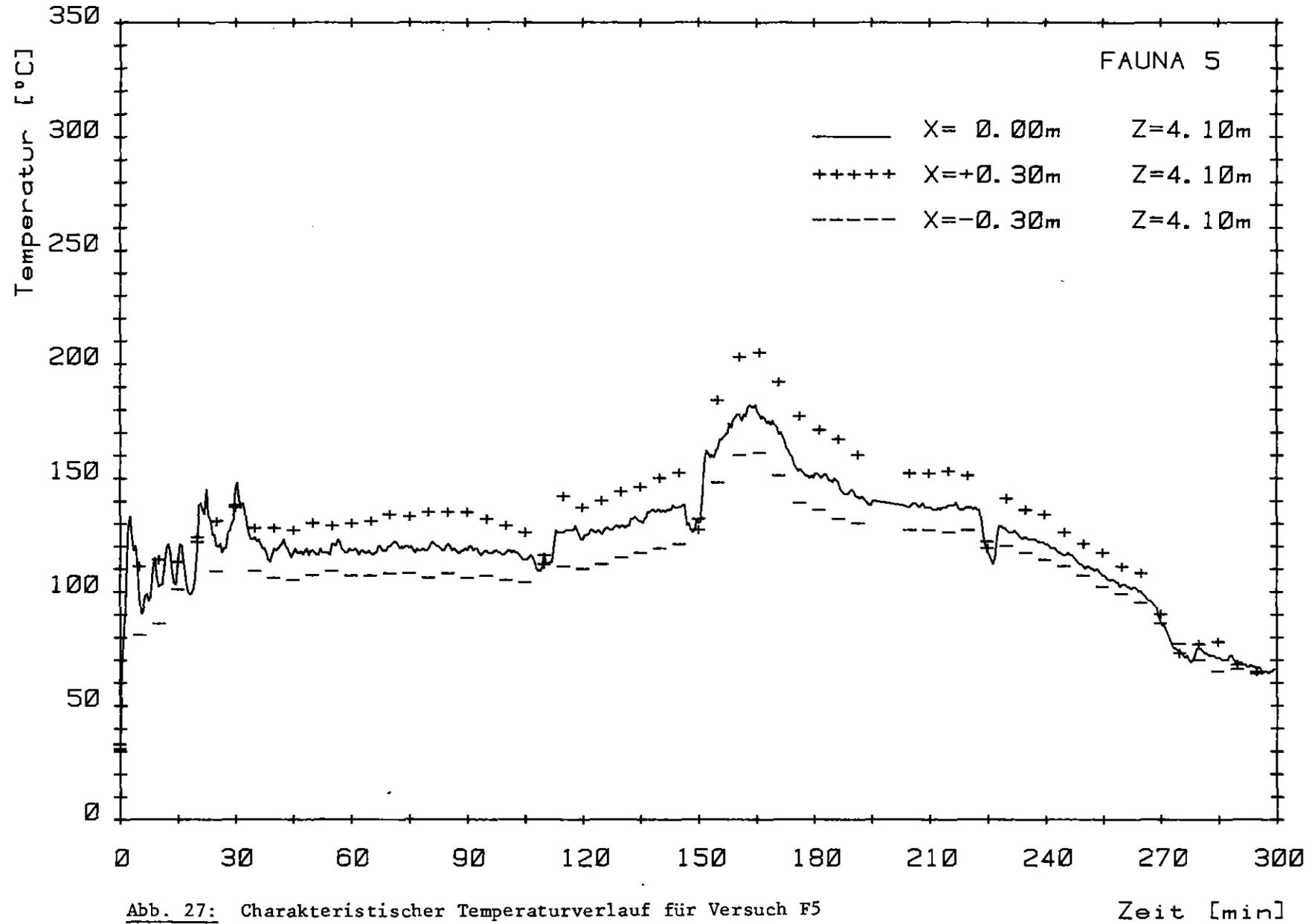


Abb. 25 Verlauf der Sauerstoffkonzentration für Versuch F4



Abb. 26: Korrosion an einem Edelstahlrohr



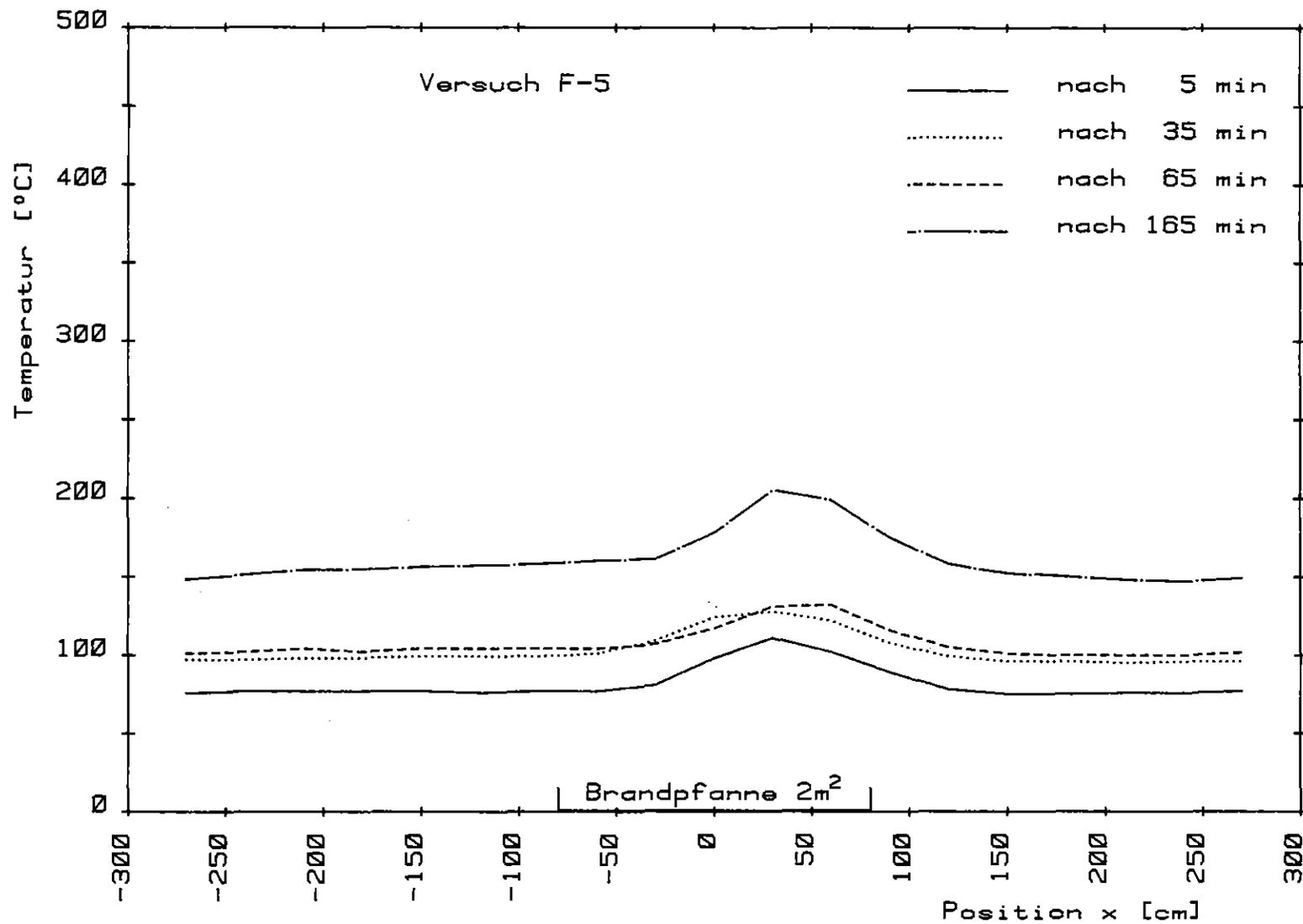


Abb. 28: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

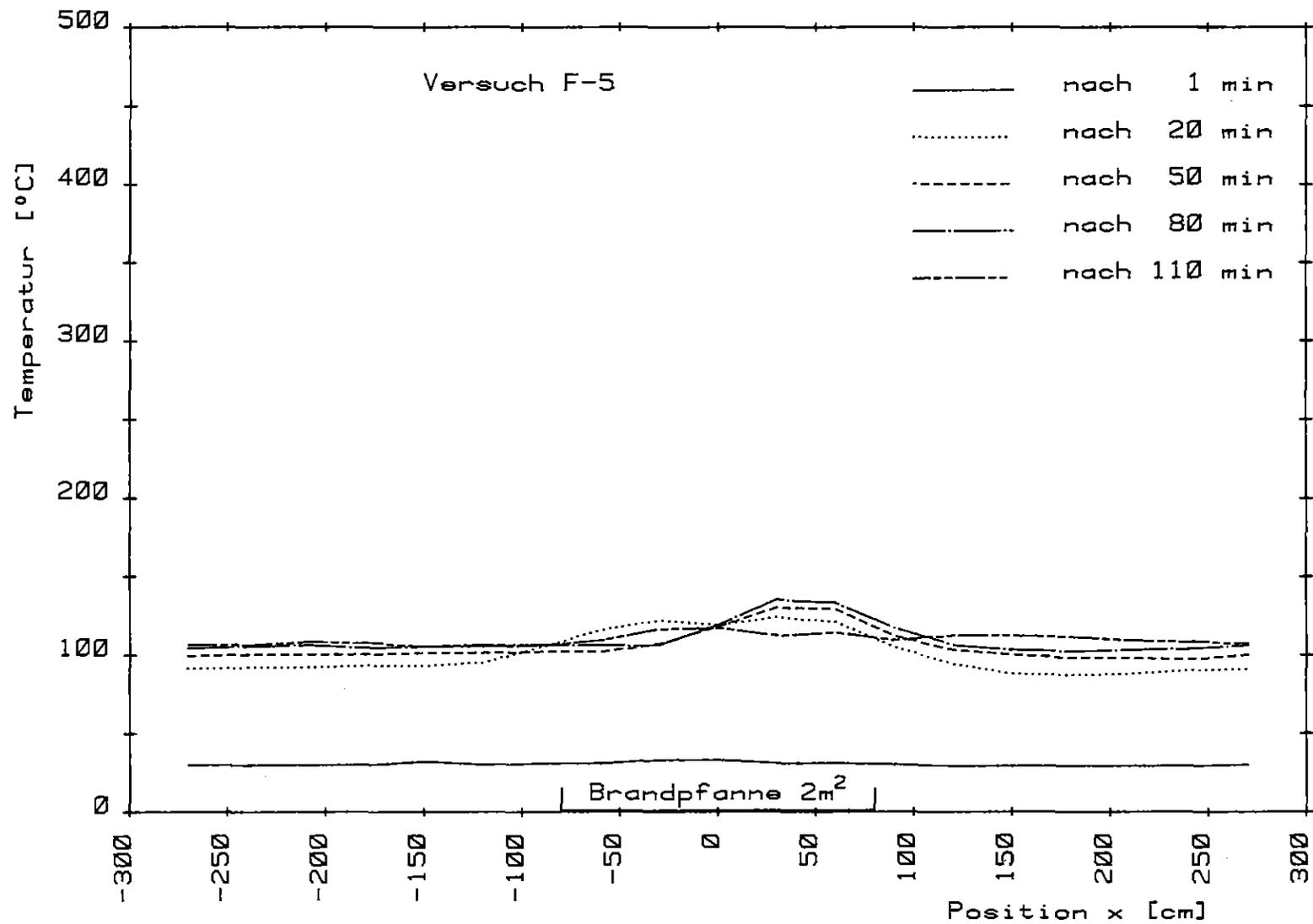


Abb. 29: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

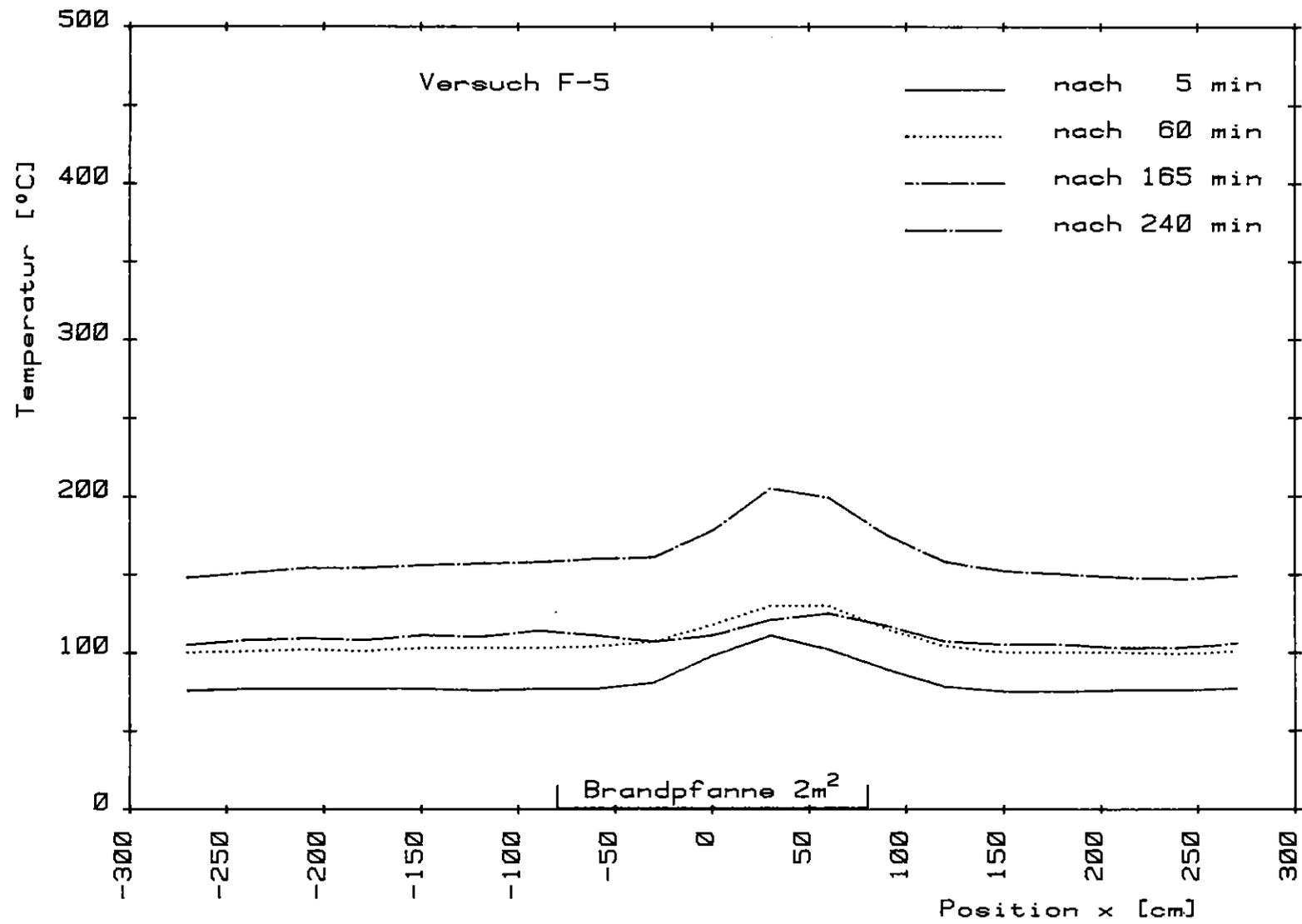


Abb. 30: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

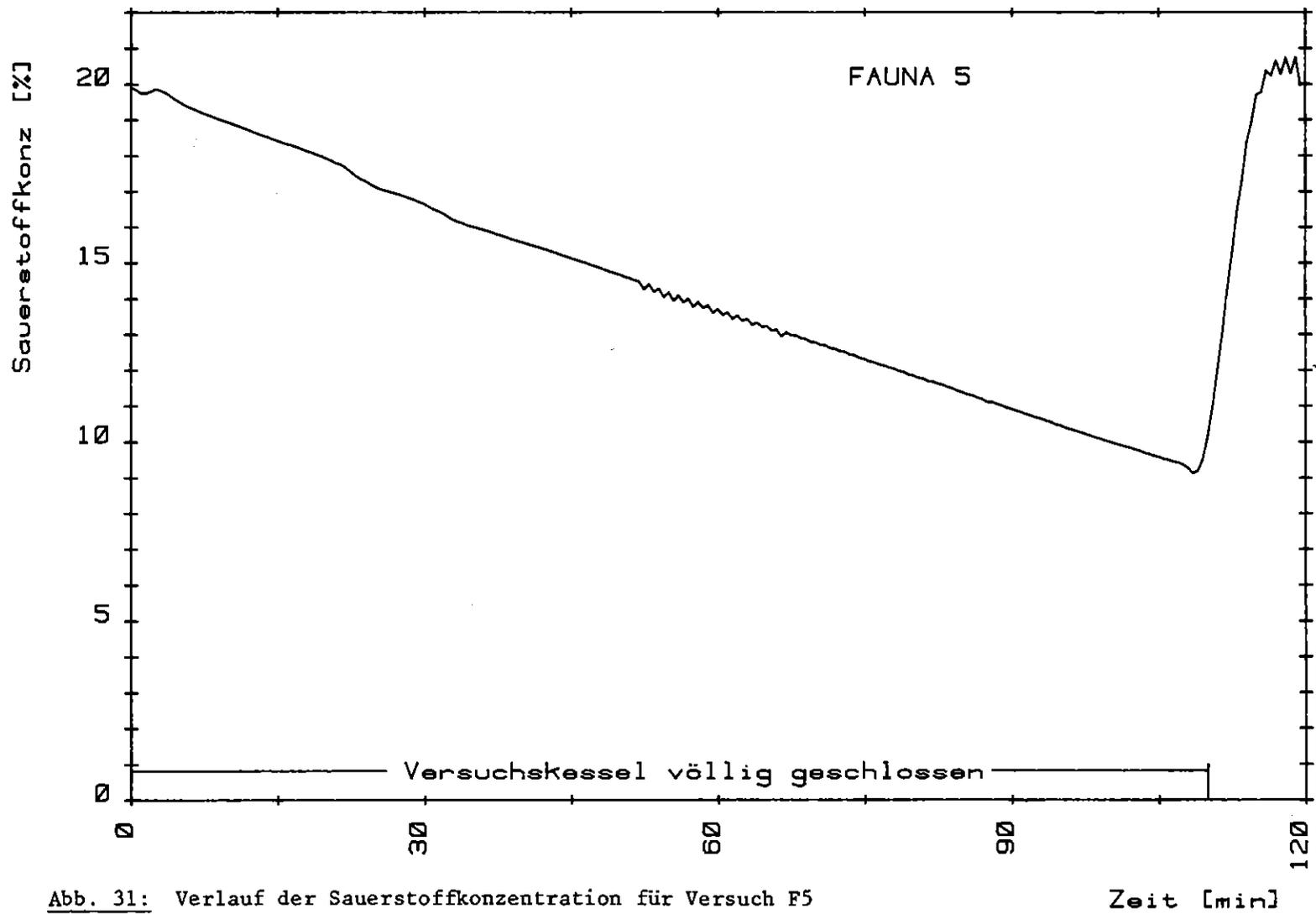


Abb. 31: Verlauf der Sauerstoffkonzentration für Versuch F5

Zeit [min]

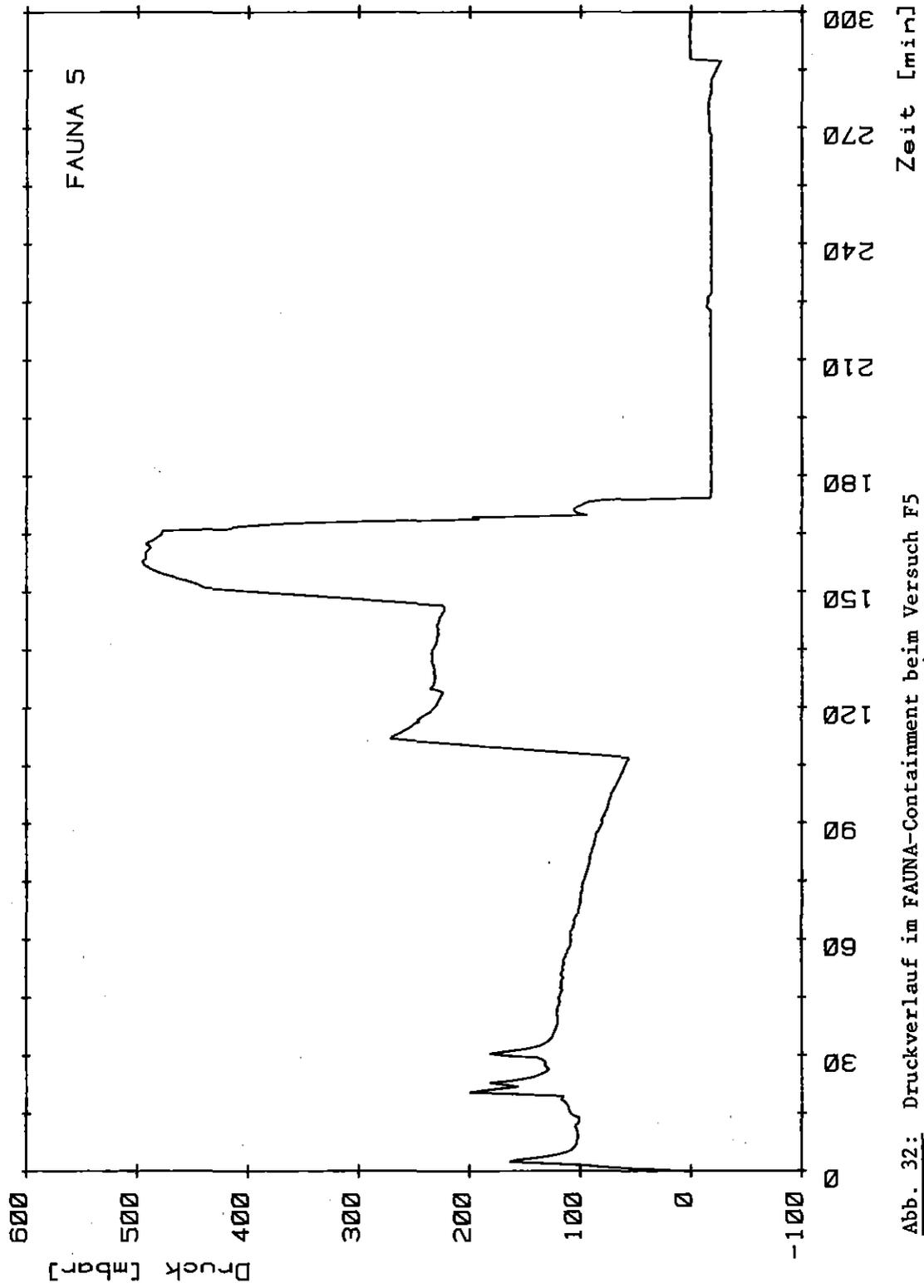


Abb. 32: Druckverlauf im FAUNA-Containment beim Versuch F5

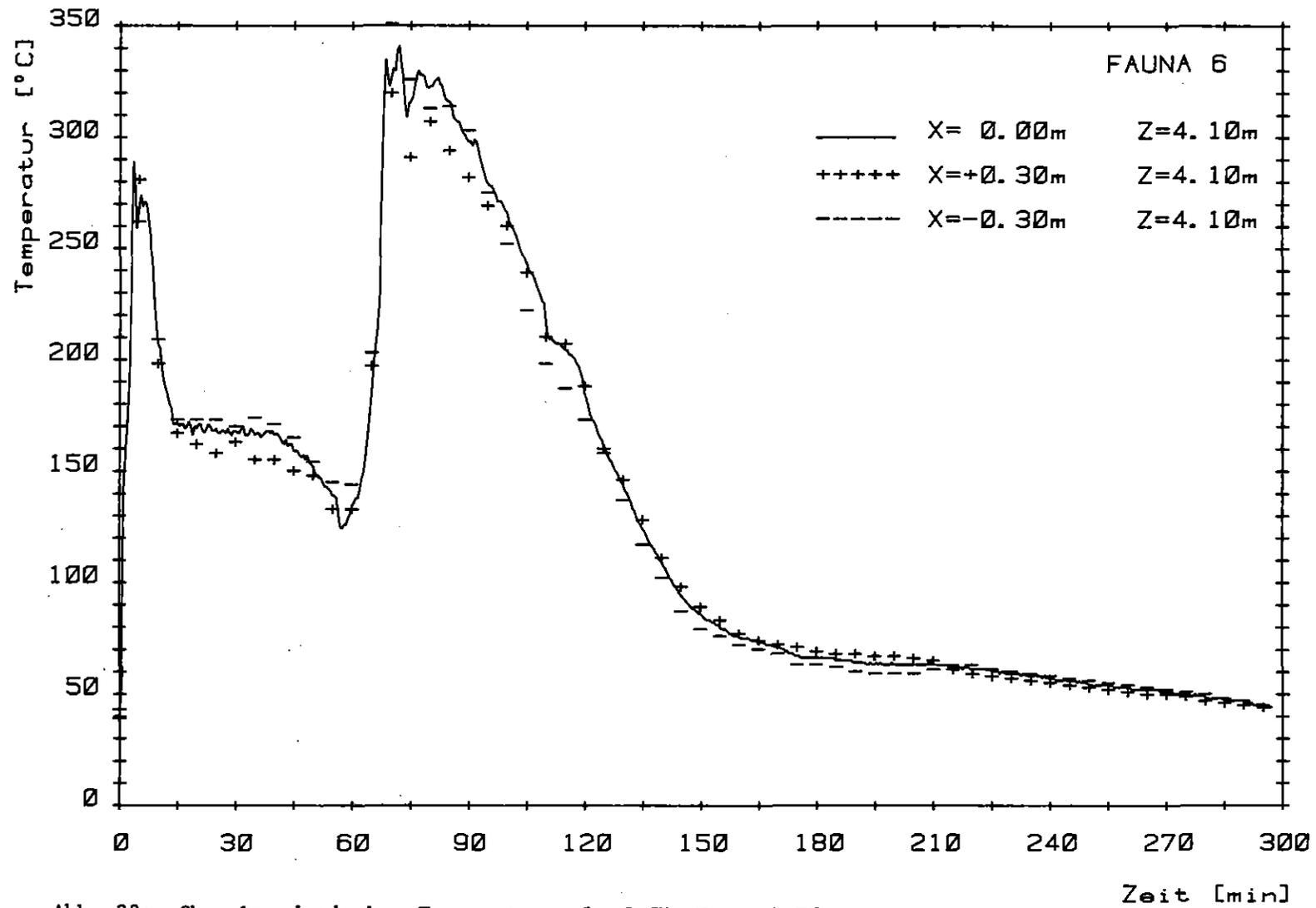


Abb. 33: Charakteristischer Temperaturverlauf für Versuch F6

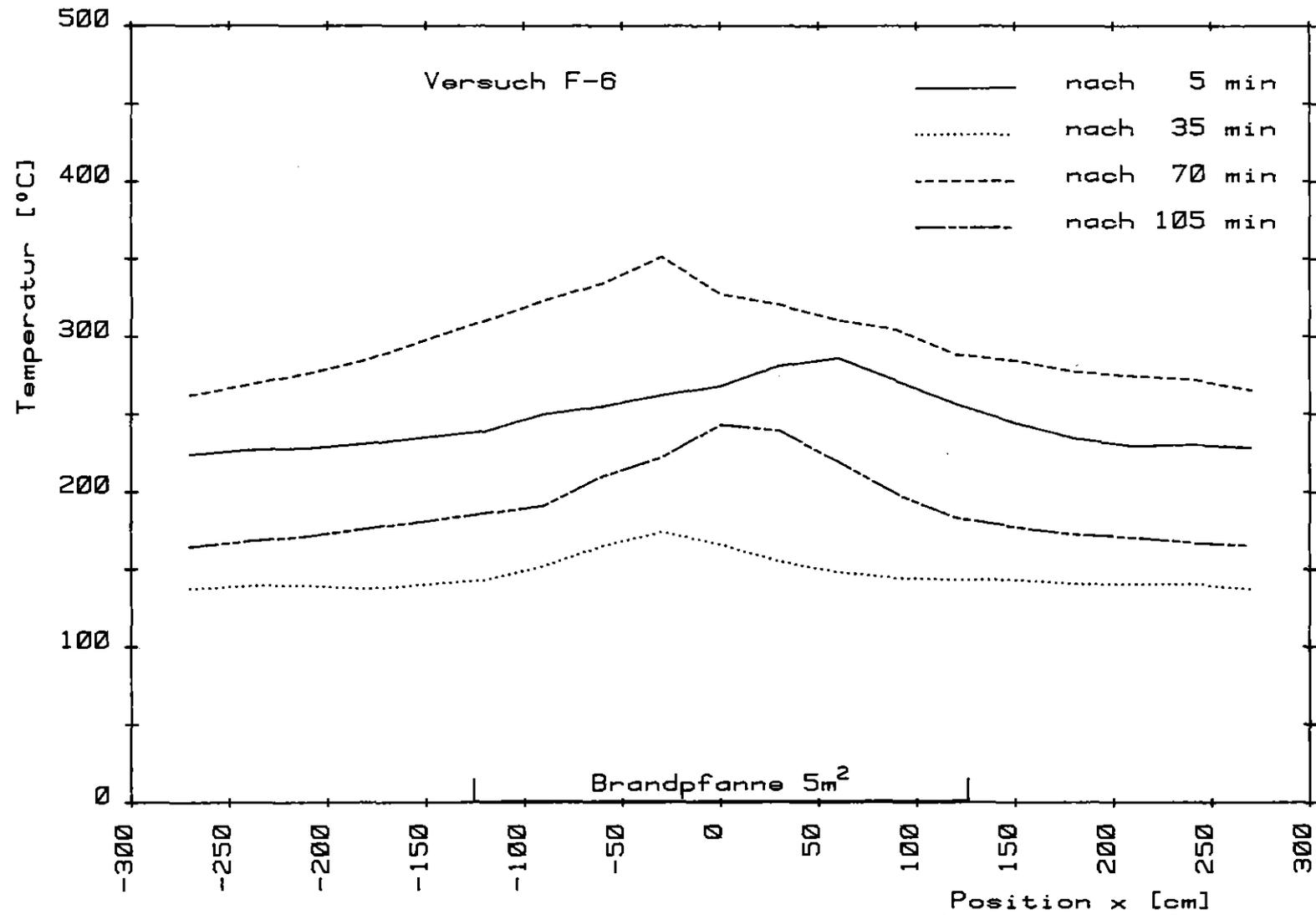


Abb. 34: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

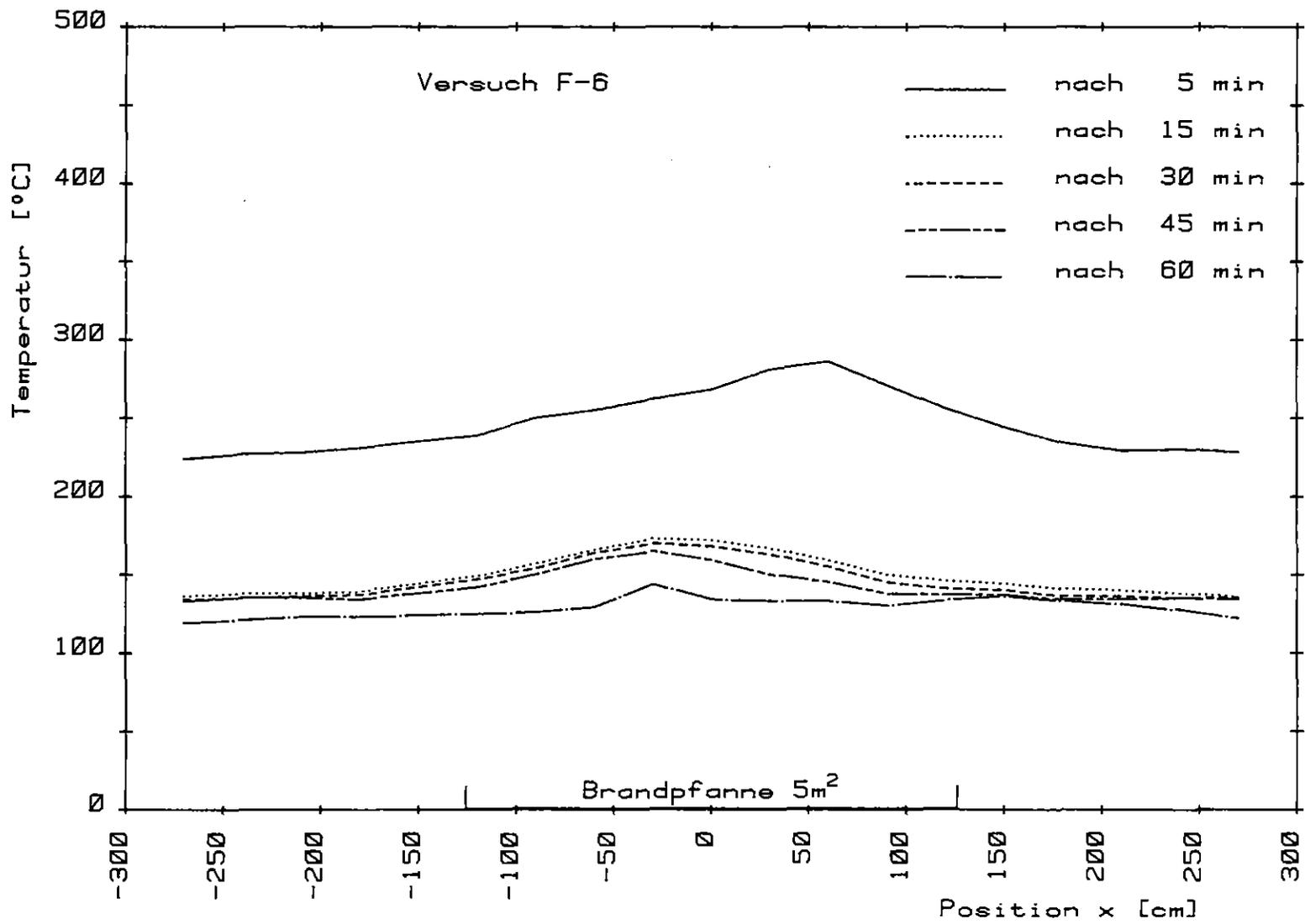


Abb. 35: Temperaturverteilung über den Kesselquerschnitt zu verschiedenen Versuchszeiten

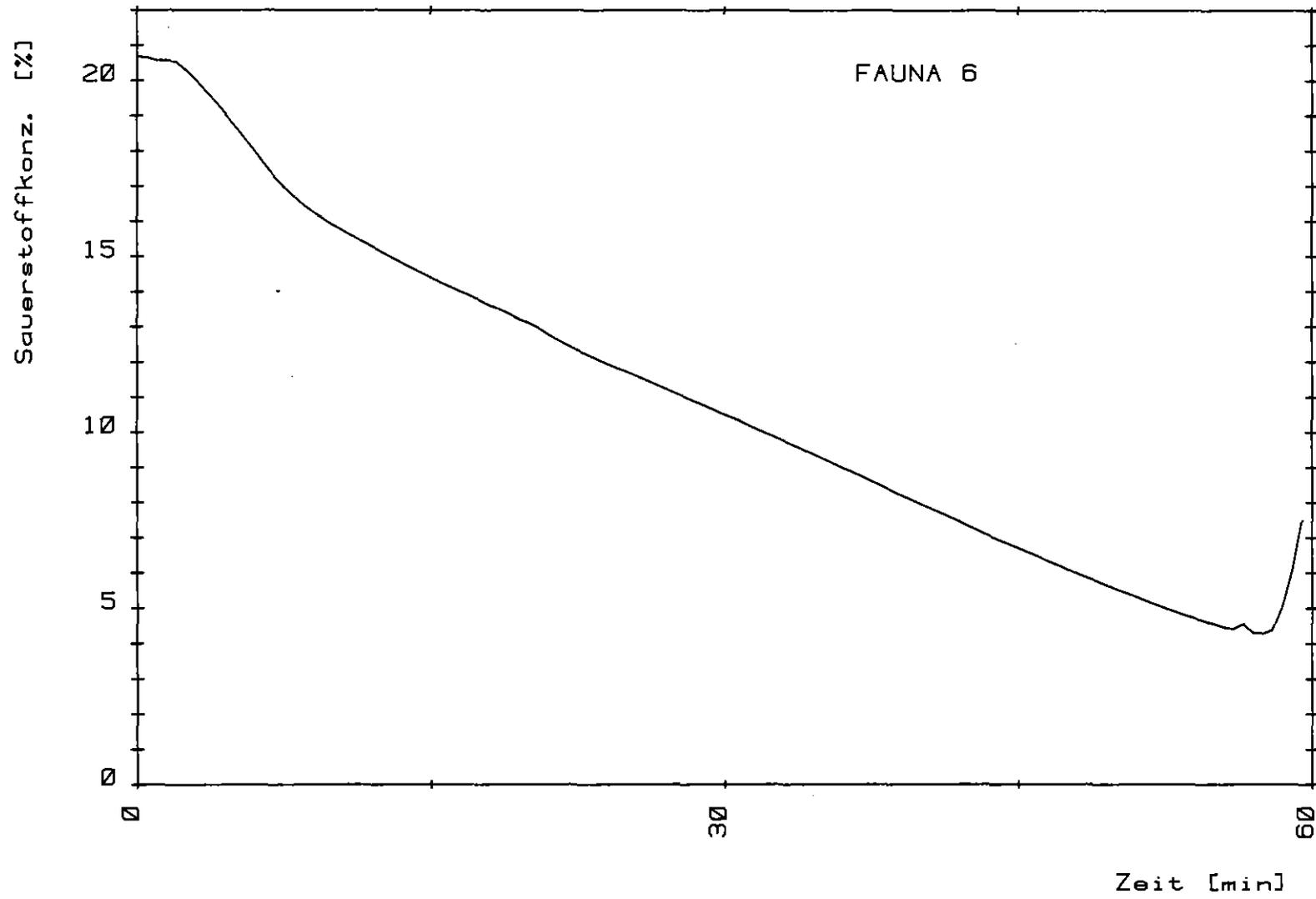


Abb. 36: Verlauf der Sauerstoffkonzentration für Versuch F6

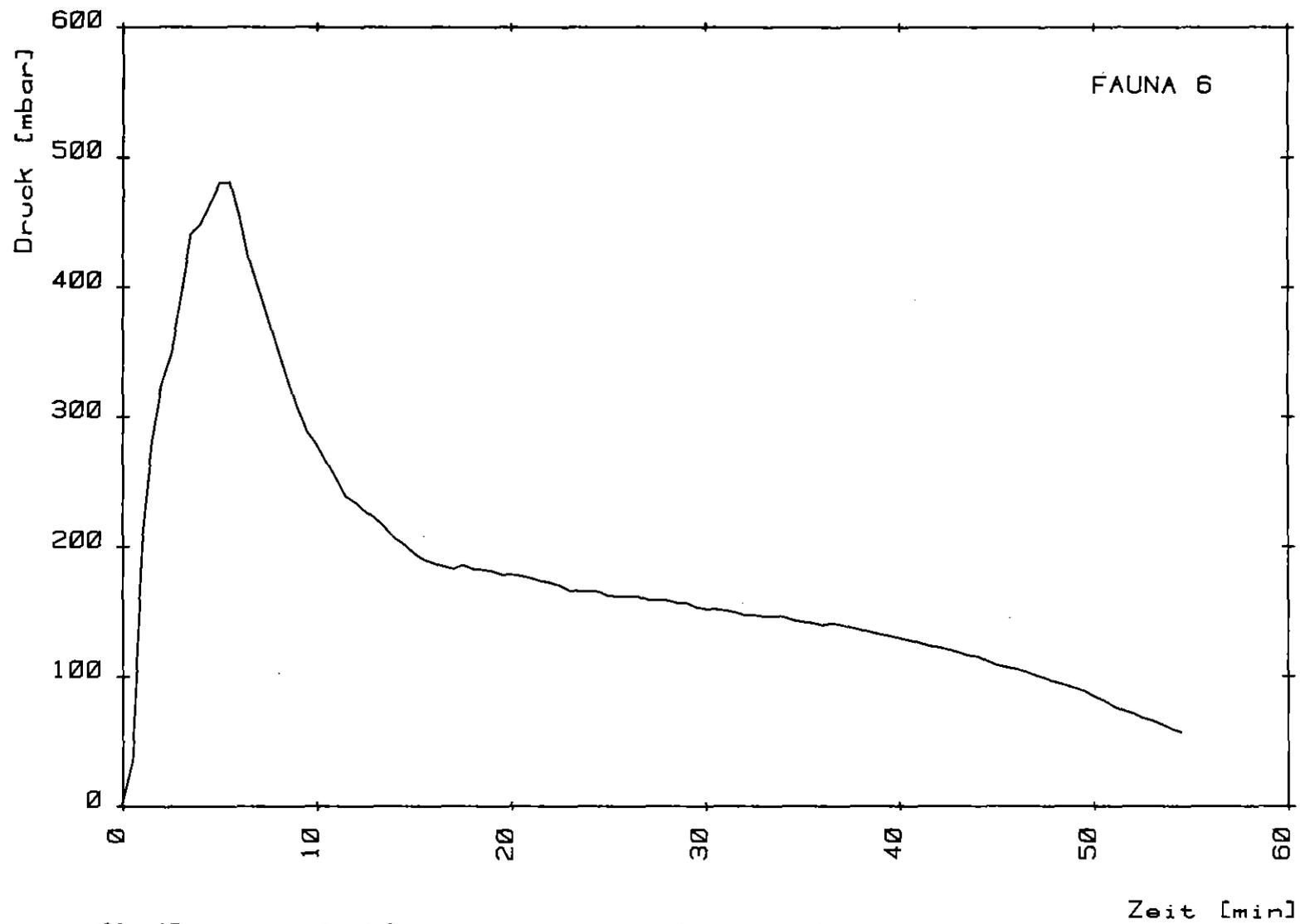


Abb. 37: Druckverlauf im FAUNA-Containment beim Versuch F6

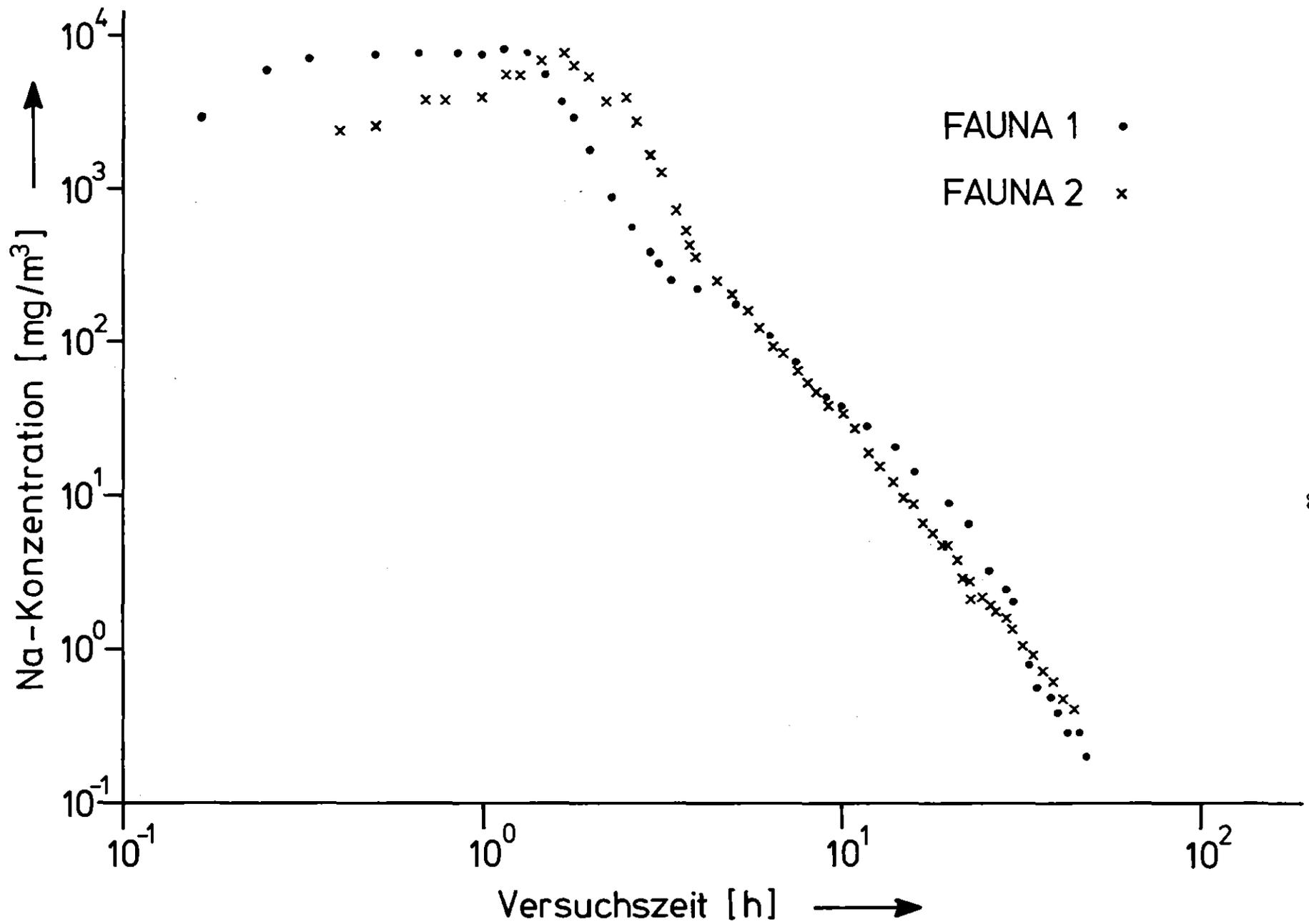


Abb. 38: Verlauf der luftgetragenen Natrium-Massenkonzentration für die Versuche F1 und F2

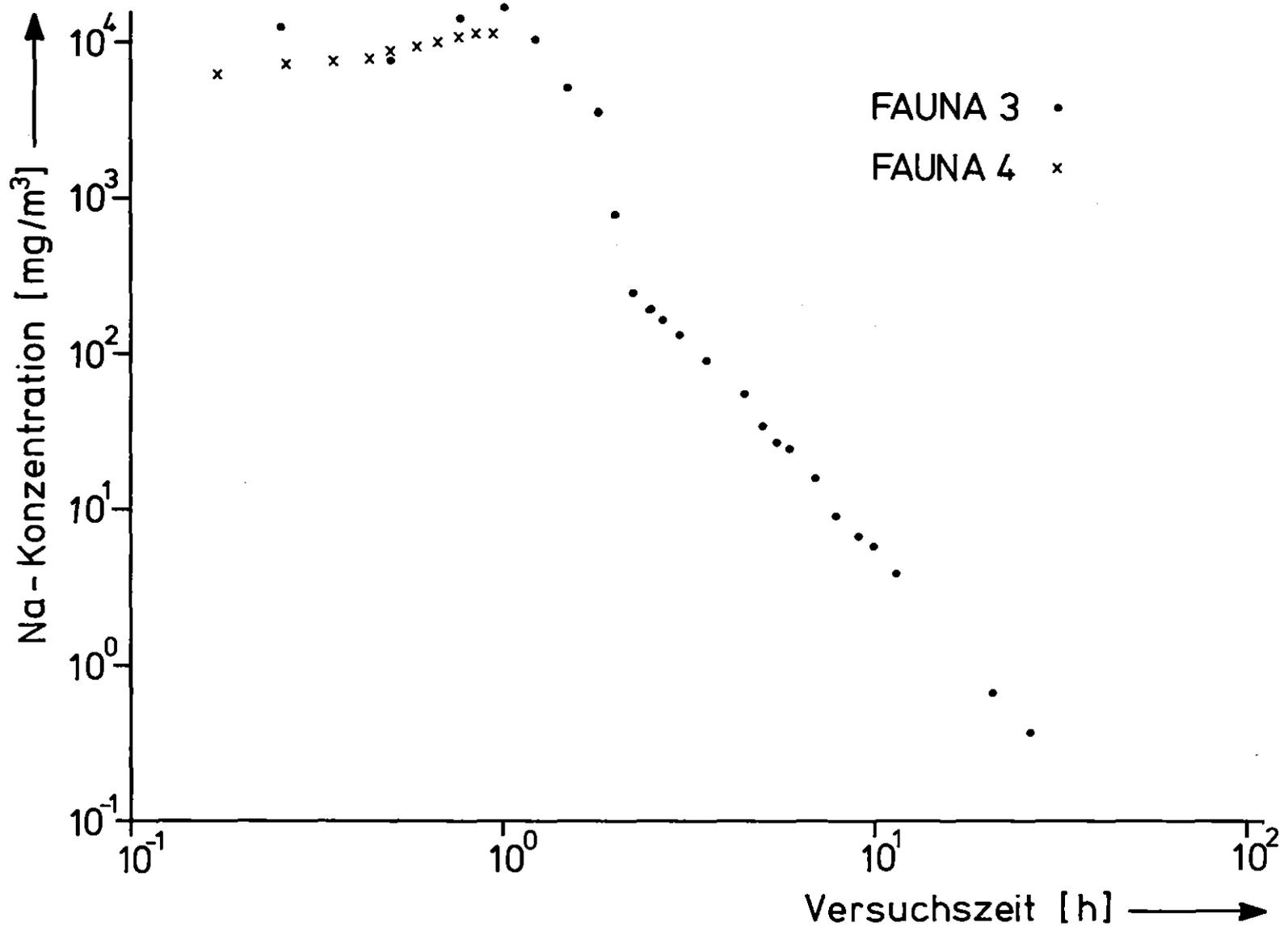


Abb. 39: Verlauf der luftgetragenen Natrium-Massenkonzentration für die Versuche F3 und F4

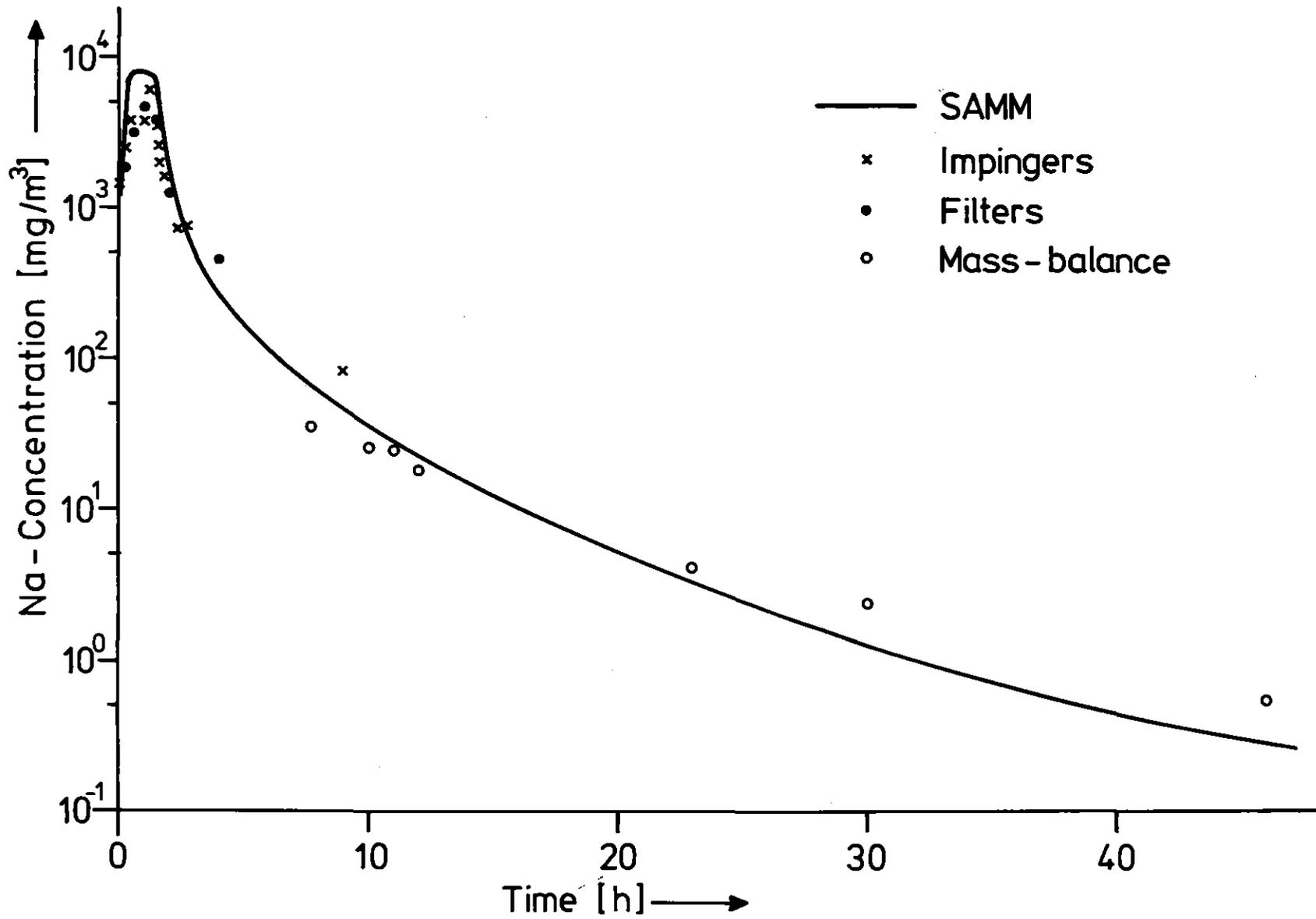


Abb. 40: Verlauf der luftgetragenen Natrium-Massenkonzentration: Vergleich verschiedener Meßmethoden

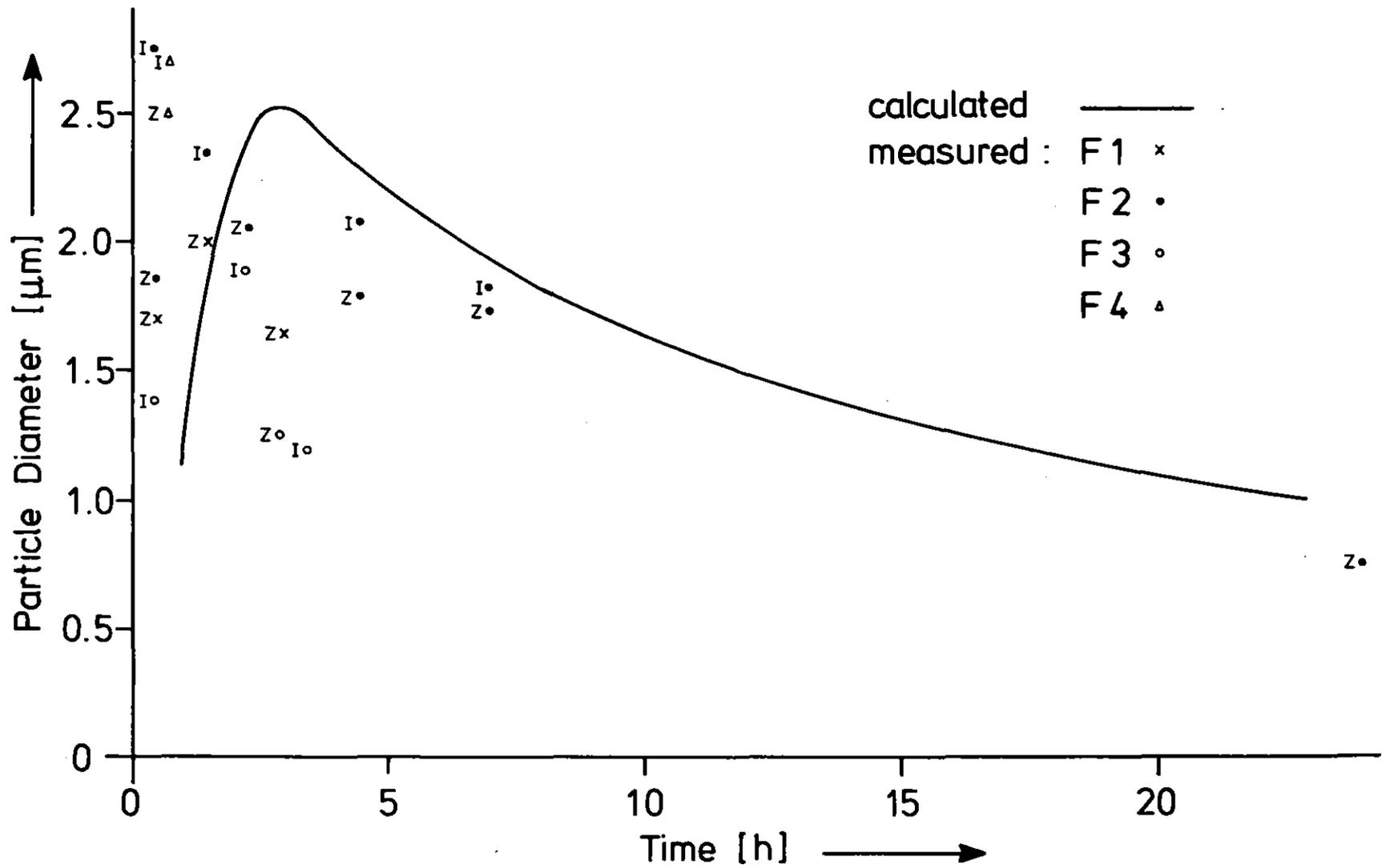


Abb. 41: Vergleich zwischen gerechneten und gemessenen Partikeldurchmesser

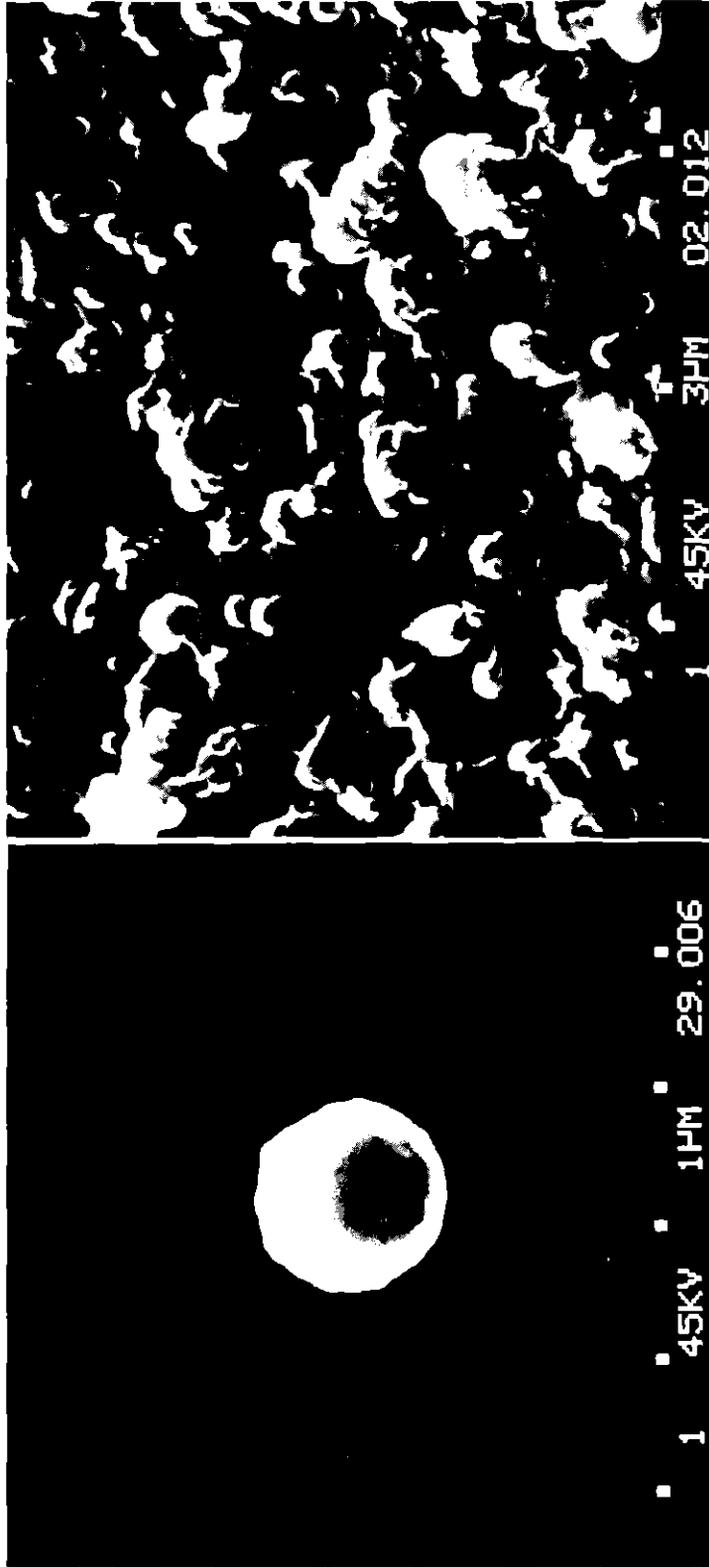


Abb. 42: Natriumbrandaerosol (Na_2CO_3)

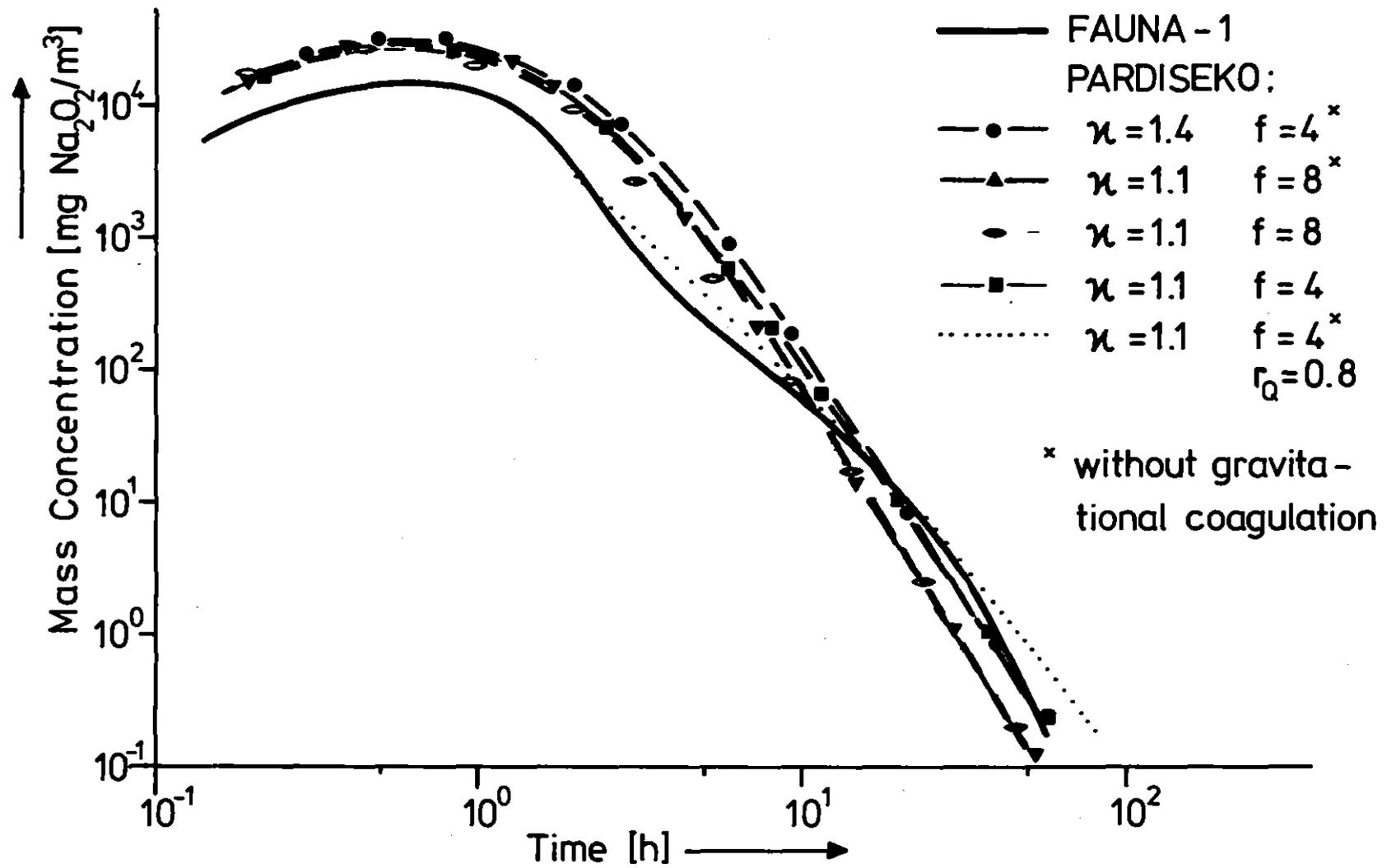


Abb. 43: Berechnung der Natrium-Massenkonzentration mit Hilfe des Codes PARDISEKO IIIb

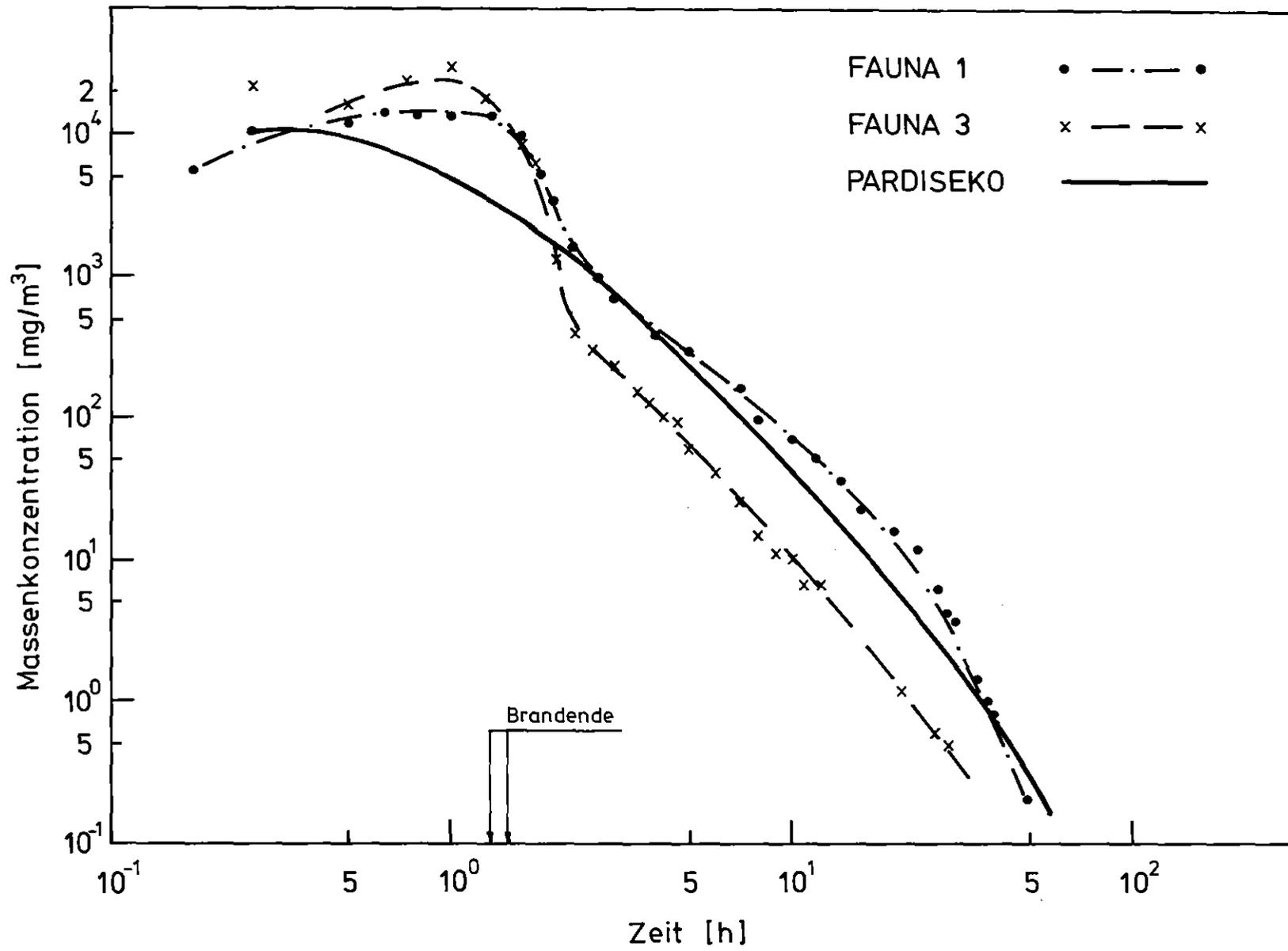


Abb. 44: Vergleich zwischen gemessener und gerechneter Massenkonzentration

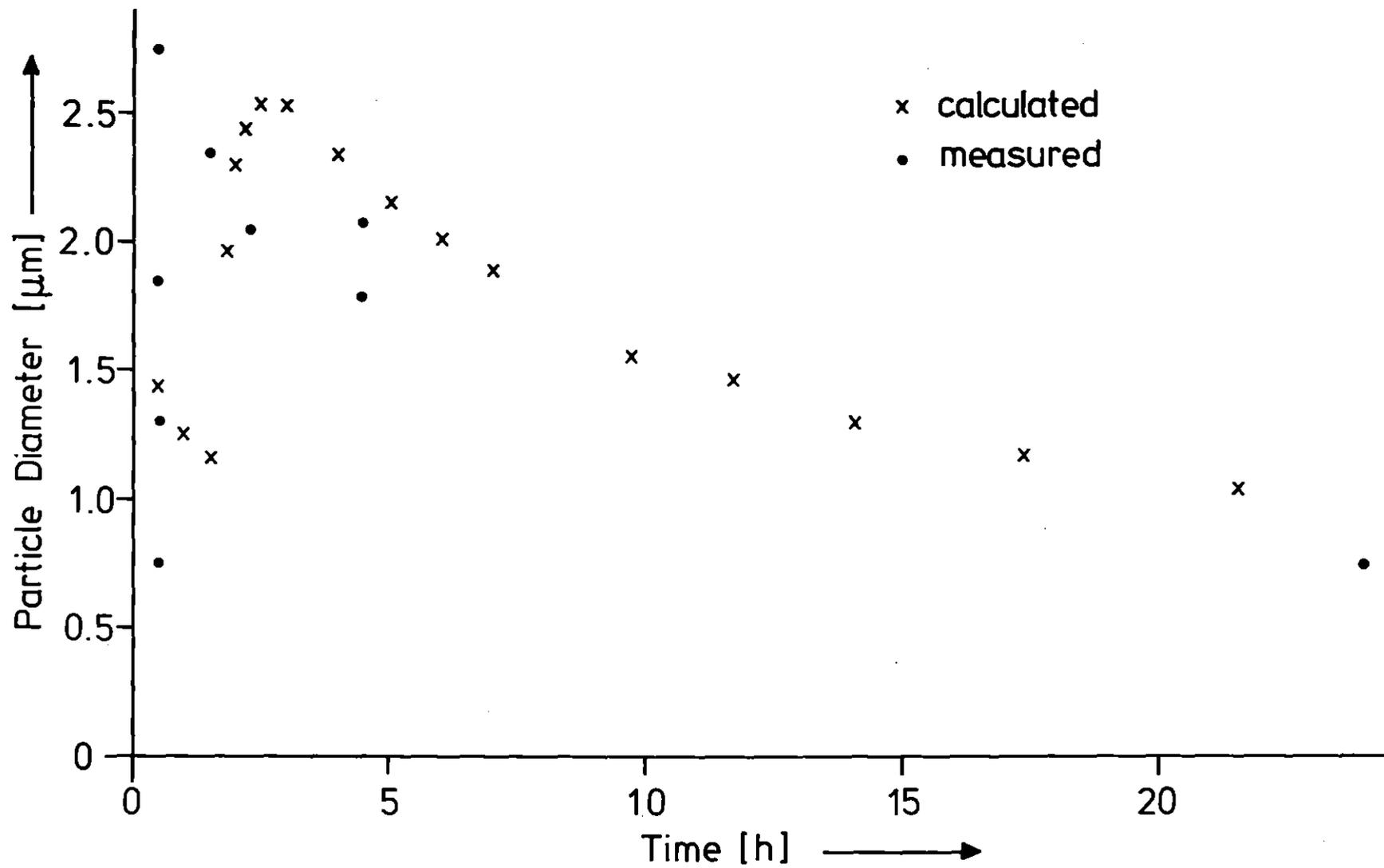


Abb. 45: Vergleich zwischen gemessenen und gerechneten Partikeldurchmesser