

Wasserstoff - Verbrennung im Verlauf auslegungsüberschreitender Störfälle in Kernkraftwerken

R.Beauvais, F.Mayinger, G.Strube

1. Einleitung

Im Verlauf eines hypothetischen Kernschmelzunfalls in einem Leichtwasserreaktor kann in größeren Mengen Wasserstoff durch Oxidation des Zirkoninventars mit dem vorhandenen Wasser und nach Versagen des Druckbehälters durch Beton-Schmelze-Wechselwirkung freigesetzt werden. Die Wasserstoffmenge ist ausreichend, daß sich in Verbindung mit der im Containment vorhandenen Luft und Wasserdampf ein brennbares Gemisch bildet. Daneben sind noch CO und CO₂ in größeren Mengen vorhanden. Untersuchungen, ob beim Abbrand dieses Wasserstoffs das Containment in seiner Integrität gefährdet werden kann, stellen derzeit einen wichtigen Sektor auf dem Gebiet der Containmentforschung dar.

2. Arten der Verbrennung

Vom Vorhandensein ausreichender Zündquellen um ein eventuell auftretendes brennbares Gemisch früher oder später zu zünden kann ausgegangen werden, zumal sich brennbare Wasserstoffgemische durch sehr niedrige Zündenergien auszeichnen. Allerdings sind vergleichsweise hohe Zündtemperaturen erforderlich.

Folgende grundsätzliche Reaktions- bzw. Verbrennungsformen lassen sich unterscheiden:

- Stille Oxidation

Bei hoher Gemischtemperatur (ca. 500°C) ohne Vorhandensein einer Zündquelle kann es zu einer langsamen Oxidation des Wasserstoffs ohne ausgeprägte Flamme kommen.

- Diffusionsflamme

Befindet sich nahe dem Freisetzungsort des Wasserstoffs

bei gleichzeitiger ausreichender Sauerstoffzufuhr eine Zündquelle, so brennt der gebildete Wasserstoff kontinuierlich in Form einer örtlich mehr oder weniger festen Diffusionsflamme ab. Von einer solchen Flamme gehen keine ausgeprägten Druckwellen aus. Der Druckanstieg aufgrund der Energiefreisetzung und der damit verbundenen Aufheizung der Containmentatmosphäre ist gering, da die freigesetzten Wärmemengen zum großen Teil durch die Containmentstrukturen abgeführt werden können.

- Abbrand unter vorgemischten Bedingungen

Ohne Vorhandensein einer Zündquelle oder bei Fehlen ausreichender Sauerstoffzufuhr in der Nähe des Freisetzungsortes kommt es zur Verteilung des gebildeten Wasserstoffs in größeren Bereichen der Containmentatmosphäre. Eine Zündung führt zu einem Abbrand unter vorgemischten Bedingungen. Dieser erfolgt in der Regel explosionsartig schnell. Dabei unterscheidet man zwischen zwei Verbrennungsmechanismen:

Deflagration

Bei der Deflagration breitet sich eine Flamme durch Wärme- und Stoffübertragungsvorgänge an der Flammfront aus, d.h. das vor der Flamme befindliche unverbrannte Gemisch wird hauptsächlich durch Wärmeleitung und Diffusion auf Reaktionstemperatur gebracht, bevor es selbst reagiert. Die Flammenfrontgeschwindigkeit ist abhängig vom Strömungszustand. Laminar beträgt sie wenige m/s. Turbulenz führt durch Vergrößerung der Flammenoberfläche zu einer wesentlichen Beschleunigung bis zu mehreren 100 m/s. Dabei kommt es zur Ausbildung einer Druckwelle vor der Flammfront, die beim sehr schnellen Deflagrationen eine bis zu 10-fache Drucküberhöhung gegenüber dem Ausgangsdruck aufweisen kann.

Detonation

Im Gegensatz zur Deflagration geschieht die Aufheizung

des unverbrannten Gemisches bei der Detonation durch eine starke Stoßwelle, hinter der das Gemisch Selbstzündungstemperatur erreicht und mit einer bestimmten Induktionszeit reagiert. Stoßwelle und Reaktionszone sind fest miteinander gekoppelt und laufen mit mehrfacher Schallgeschwindigkeit in das unverbrannte Gemisch. Die Detonationsgeschwindigkeit ist gemischspezifisch. Sie liegt für Wasserstoff-Luft-Gemische in der Größenordnung von 2 km/s.

3. Übergang Deflagration - Detonation

Zur deflagrativen Zündung der betrachteten Gemische reichen wie bereits oben erwähnt sehr geringe Energien aus. Andererseits sind zur direkten Initiierung einer Detonation starke Zündquellen erforderlich, die in sehr kurzer Zeit große Energiemengen freisetzen. Dies ist in der Praxis nur mit Sprengstoffen möglich. Solche starken Zündquellen sind im Containment nicht zu erwarten, so daß für sicherheitstechnische Betrachtungen nur die deflagrative Zündung relevant ist. Grundsätzlich kann sich jedoch eine zunächst langsam fortschreitende Deflagration unter dem Einfluß turbulenz erzeugender Strömungshindernisse stark beschleunigen und unter bestimmten Voraussetzungen sogar in eine Detonation übergehen. Wegen der damit verbundenen hohen Druckentwicklung richtet sich ein Hauptaugenmerk der Containmentforschung auf diese Vorgänge. Als turbulenz erzeugende Hindernisse wirken im Falle einer Verbrennung z.B. Einbauten in Räumen und besonders Überströmöffnungen zwischen zwei Räumen in Gestalt von Türen oder Klappen.

Qualitativ sind die grundsätzlichen Vorgänge bei der turbulenten Flammenbeschleunigung bekannt: Ausgehend von der Zündquelle breitet sich die Flammenfront in das brennbare Gemisch aus. Dabei bewirken die hinter der Flam-

menfront befindlichen heißen Schwaden eine Expansionsströmung, die zur Turbulenzerzeugung an Strömungshindernissen führt. Dadurch kommt es zu einer Auffaltung der Reaktionszone gleichbedeutend mit einer Vergrößerung der Flammenoberfläche. Folge ist ein verbesserter Wärmeübergang von der Reaktionszone in das davor liegende unverbrannte Gemisch und damit eine Beschleunigung der Flamme. Daraus resultiert wiederum eine Verstärkung der Expansionsströmung und somit eine weitere Erhöhung der Turbulenz mit weiterer Flammenbeschleunigung. Dieser positive Rückkopplungskreis zwischen Turbulenzerzeugung und Flammenbeschleunigung kann bis zum Übergang in eine Detonation (deflagration - detonation transition: DDT) führen soweit nicht Löscheffekte als Folge zu intensiver Mischvorgänge die Beschleunigung zum Stehen bringen. Die Möglichkeit eines DDT hängt zunächst von der Gemischzusammensetzung ab. Untersuchungen in Dreistoffgemischen aus Wasserstoff, Luft und Wasserdampf haben die im Diagramm nach Shapiro - Moffette skizzierten Grenzen ergeben (Abb. 1). Zusätzlich ist die Zündgrenze eingezeichnet. Nicht alle Gemische innerhalb der Detonationsgrenzen sind gleich detonationsgefährlich. Zu den Grenzen hin wird ein DDT eher unwahrscheinlich. Ein charakteristisches Maß ist die sogenannte Detonationszellbreite λ . Die Detonationszellen entstehen dadurch daß dem Hauptstoß kleinere Druckwellen überlagert sind, die kreuz und quer über den Hauptstoß laufen. Der Abstand dieser querlaufenden Druckwellen ist abhängig von der Gemischzusammensetzung und den Anfangsbedingungen. Sichtbar gemacht werden können ihre Spuren auf rußgeschwärzten Folien, die parallel zur Ausbreitungsrichtung angeordnet sind. Dort hinterlassen die Druckwellen ein Zellenmuster. Die Breite dieser Zellenmuster wird als Detonationszellbreite bezeichnet. Je kleiner sie ist, desto detonationsgefähr-

licher ist das Gemisch. Zur stabilen Fortpflanzung einer Detonation ist eine Kanalweite von mindestens λ erforderlich. Dieser Geometrieinfluß ist für Laborexperimente zu beachten. Für reale Geometrien stellt er aber kaum einen begrenzenden Faktor dar.

Sind von der Gemischzusammensetzung her die Voraussetzungen für einen DDT erfüllt, sagt dies allein noch nichts darüber aus, ob tatsächlich ein DDT stattfindet. Vielmehr spielt die Geometrie eine entscheidende Rolle bei der einem DDT vorausgehenden turbulenten Flammenbeschleunigung. Eine Modellierung der turbulenten Verbrennung ist wegen der Schwierigkeiten beim Verständnis turbulenter Strömungen an sich, ohne Reaktion, und der zusätzlichen Wechselwirkung zwischen Strömung und Reaktion derzeit nur für spezielle, eng abgegrenzte Anwendungsfälle möglich.

4. Forschungsarbeiten

Weil eine quantitative Vorhersagemöglichkeit turbulenter Verbrennungsvorgänge fehlt, ist man hier vorwiegend auf die Ergebnisse experimenteller Arbeiten angewiesen.

- Phänomenologische Untersuchungen

Verbrennungsexperimente vorwiegend mit trockenen Wasserstoff-Luft-Gemischen wurden in verschiedenen Größenmaßstäben durchgeführt. In Laborversuchen am Lehrstuhl A für Thermodynamik der TU München wurde der Einfluß unterschiedlicher Geometrien auf das Brennverhalten verschiedener Wasserstoff-Luft-Gemische untersucht. Als Versuchsstrecke diente ein 6 m langes, beidseitig geschlossenes Rohr mit einem Durchmesser von 66 mm (Abb. 2). Dieses wurde mit definierten Gemischen befüllt. Die Zündung erfolgte über eine Zündkerze an einem Rohrende. Mittels eines optoelektronischen Aufnehmersystems wurde ein Zeit-Weg-Diagramm

der Flammenausbreitung aufgenommen und daraus die örtliche Flammengeschwindigkeit bestimmt. Für die Versuche wurden verschiedene 3 m lange Hindernisstrecken beginnend an dem mit der Zündkerze bestückten Rohrende in das Rohr eingebaut. Sie bestanden aus blendenförmigen Hindernissen, die in gleichen Abständen hintereinander angeordnet waren. Hindernisstrecken mit Blockierraten (freie Querschnittsfläche zu Gesamtquerschnittsfläche des Rohres) von 0,3 und 0,7 und Hindernisabständen zwischen 35 und 500 mm bei H_2 -Konzentrationen von 10-28% wurden getestet. Zusätzlich wurde mit einer einzelnen Blende, 100 mm von der Zündkerze angeordnet, und im hindernisfreien Rohr als Referenz gemessen. Als Anfangszustand wurde für alle Versuche $80^\circ C$ und 1 bar eingestellt. Abb.3 zeigt beispielhaft im Explosionrohr ermittelte Flammengeschwindigkeitsverläufe.

Gemische unter 10% Wasserstoffanteil konnten nicht zuverlässig gezündet werden. Bei niedrigen Wasserstoffkonzentrationen von 10 - 13% treten in den Hindernisstrecken und auch nach einer einzelnen Blende verglichen mit dem hindernislosen Rohr sehr hohe Flammengeschwindigkeiten auf. Löscheffekte verhindern ein vollständiges Durchbrennen über die gesamte Rohrstrecke. In Hindernisstrecken mit kürzerem Blendenabstand erfolgt dabei eine schnellere Flammenbeschleunigung als bei großem Hindernisabstand; allerdings werden auch die Löscheffekte schneller wirksam.

Gemische höherer Wasserkonzentration brennen in jedem Fall über die gesamte Rohrstrecke durch. Detonationen wurden in Gemischen mit mehr als 20% H_2 beobachtet. Dieser Wert steht in Übereinstimmung mit Untersuchungen anderer Autoren, wonach stabile Detonationen in Rohren nur dann aufrecht erhalten werden können, wenn die Detonationszellgröße kleiner als der Rohrdurchmesser ist. Grundsätz-

lich sind jedoch alle Gemische, bei denen kritische Flammengeschwindigkeit erreicht werden kann, bei Vorhandensein ausreichender Querschnitte als detonationsgefährlich einzustufen. Bei großer Blockierate lassen kleine Blendenabstände ein Überschreiten der kritischen Flammengeschwindigkeit nicht zu. Hindernisse kleiner Blockierate hingegen haben bei kleinem Hindernisabstand die heftigsten beobachteten Verbrennungsabläufe zur Folge. Abb. 4 zeigt zusammenfassend die maximalen in den Hindernisstrecken gemessenen Flammengeschwindigkeiten als Funktion von Wasserstoffkonzentration und Hindernisabstand.

Die Blenden haben also folgende Wirkungen auf den Verbrennungsablauf im Rohr: Neben der beschleunigenden Wirkung durch Turbulenzerzeugung verhindern sehr eng stehende Hindernisse großer Blockierate offensichtlich den Aufbau einer Druckwelle vor der Flamme, die Bedingung für eine überkritische Flammenabsolutgeschwindigkeit ist. Bei allen Gemischen verursacht die Anordnung mit einer einzelnen Blende bereits eine hohe Flammenbeschleunigung trotz des sehr geringen Abstandes von nur 100 mm zur Zündquelle und der damit verbundenen sicher nur mäßigen Ausbildung einer Strahlströmung durch diese Blende vor Durchtritt der Flammfront.

Zusammenfassend ergibt sich aus den Versuchen: Die Zündwilligkeit von H_2 -Luft-Gemischen unter 10% H_2 -Anteil ist mit der verwendeten schwachen Zündquelle schlecht. Auf der anderen Seite kann in Gemischen mit 10% H_2 -Anteil und mehr durch turbulenz- und strahlaktive Promotoren ein sehr heftiger Verbrennungsablauf stattfinden. Die Anlaufwege zum Aufbau einer starken Druckwelle mit möglichem Übergang in eine Detonation sind sehr kurz, so daß die behindernde Wirkung von Verdämmungen auf die Bildung einer Druckwelle in den realen Geometrien eines Contain-

ments nicht relevant sind. Vergleiche mit Großraumversuchen anderer Institute (Battelle, Sandia USA) zeigen, daß mit der hier verwendeten kleinen Anlage Vorhersagen zum grundsätzlichen Verbrennungsverhalten in realen Geometrien sehr gut möglich sind.

Aufbauend auf diesen Erfahrungen werden derzeit im Rahmen eines BMFT- geförderten Forschungsvorhabens am Lehrstuhl A für Thermodynamik der TU München in der oben beschriebenen Versuchsanlage Untersuchungen des Einflusses erhöhter Anfangstemperaturen im Bereich bis 280°C und verschiedener Wasserdampfgehalte der Brenngasatmosphäre durchgeführt. Diese Versuche haben das Ziel, unter den in der Realität erwarteten Ausgangsbedingungen (Gemischzusammensetzung, Druck, Temperatur) Gemischbereiche abzugrenzen, für die grundsätzlich eine turbulente Flammenbeschleunigung mit Bildung einer starken Druckwelle oder sogar ein DDT möglich ist. Diese Ergebnisse finden Eingang in weiteren Untersuchungen an anderen Instituten, die die im größeren Maßstab in realitätsnäheren Geometrien auftretenden Beschleunigungseffekte überprüfen sollen.

- Grundlagenuntersuchungen zum DDT und zur turbulenten Flammenbeschleunigung

Um zu einem umfassenderen Verständnis der Vorgänge bei der turbulenten Flammenbeschleunigung zu kommen, sind Grundlagenuntersuchungen notwendig. Hierzu wurde am Lehrstuhl ein Modell für den DDT entwickelt. Derzeitige Arbeiten konzentrieren sich auf die als Voraussetzung für einen DDT notwendigen turbulente Flammenbeschleunigung. Im Rahmen mehrerer BMFT- Projekte werden die entscheidenden Wechselwirkungen zwischen Strömungs- und Verbrennungsvorgängen untersucht.

Da die im o.g. Explosionsrohr sehr schnell fortschreitende Flamme nur sehr schwer meßtechnisch zugänglich ist,

wird ein Teil der Untersuchungen an stationären Flammen in einem Rohrbrenner durchgeführt. Hier werden mit Hilfe der linearen Ramanspektroskopie Konzentrationsprofile in der Flammenfront aufgenommen, um die Struktur einer turbulenten Flamme zu vermessen und abhängig von Konzentration und Brenngeschwindigkeit die Flammendicke zu bestimmen. Abb.5 zeigt das Ergebnis erster Messungen in der Flammfront. Die H_2 -Konzentration ist über der Flammenlänge unter Variation von Anströmgeschwindigkeit und anfänglicher H_2 -Konzentration aufgetragen. Noch ist es nicht möglich die Ergebnisse mit anderen Untersuchungen zu korrelieren.

Ein zweiter Teil der experimentellen Arbeiten wird am Explosionsrohr unter instationären Bedingungen durchgeführt. Die von den heißen Schwaden hinter der Flamme verursachte Expansionsströmung wird mittels eines Laser-Doppler-Anemomet vermessen. Damit sollen die Zusammenhänge zwischen Turbulenz der Strömung und der Brenngeschwindigkeit untersucht werden. Abb.6 zeigt den zeitlichen Verlauf der Strömung in der Mitte des Explosionsrohres bei einem Verbrennungsexperiment. Zu erkennen ist die hochturbulente Strömung vor der Flamme und der Flammendurchtritt durch das Meßvolumen als plötzliche Geschwindigkeitsänderung als Folge des Dichtesprunges in der Reaktionszone.

5. Schlußbemerkung

Von einem für sicherheitstechnische Beurteilungen notwendigen umfassenden Verständnis turbulenter Verbrennungsvorgänge ist man noch sehr weit entfernt, so daß hier noch weiterer Forschungsbedarf besteht.

Um ausgehend von diesem Wissensstand größtmögliche Sicherheit zu garantieren, sind Konzepte in der Diskussion, die eine gesteuerte Zündung im Containment freigesetz-

ten Wasserstoffs zum Inhalt haben, bevor Konzentrationen erreicht werden, die als kritisch einzustufen sind. Diese Gemischgrenzen sind bekannt.

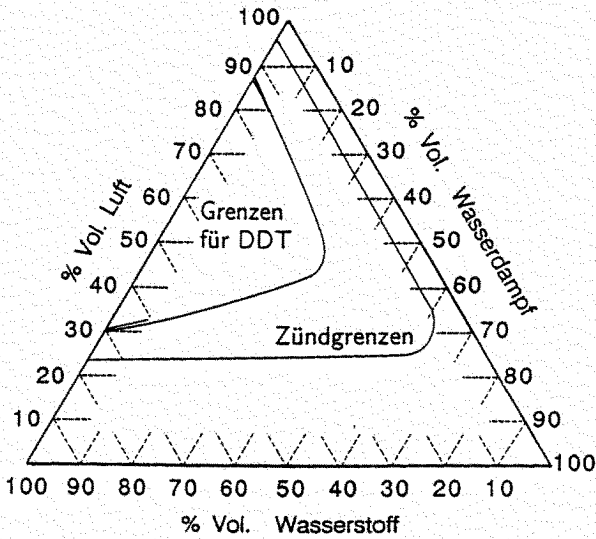


Abb. 1: Grenzen für Zündung und DDT von Wasserstoff-Luft-Wasserdampf-Gemischen im Dreistoffdiagramm nach Shapiro-Moffette

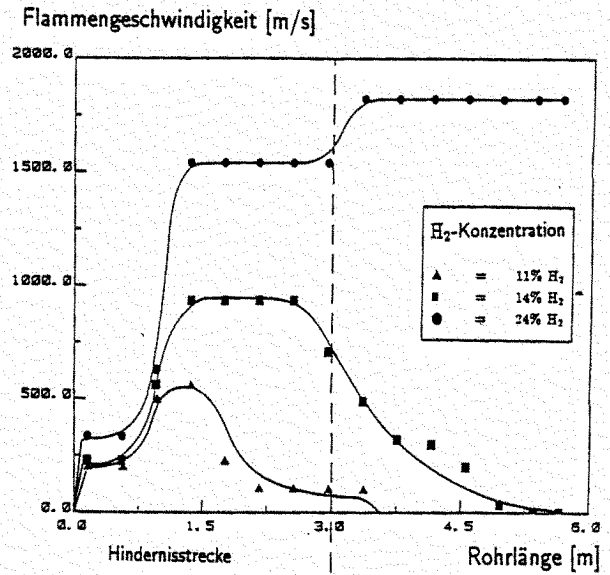


Abb. 3: Verlauf der Flammengeschwindigkeit im Explosionsrohr bei verschiedenen Anfangskonzentrationen, verwendete Hindernisstrecke: Blenden mit Blockierate 0,7 im Abstand von 500 mm

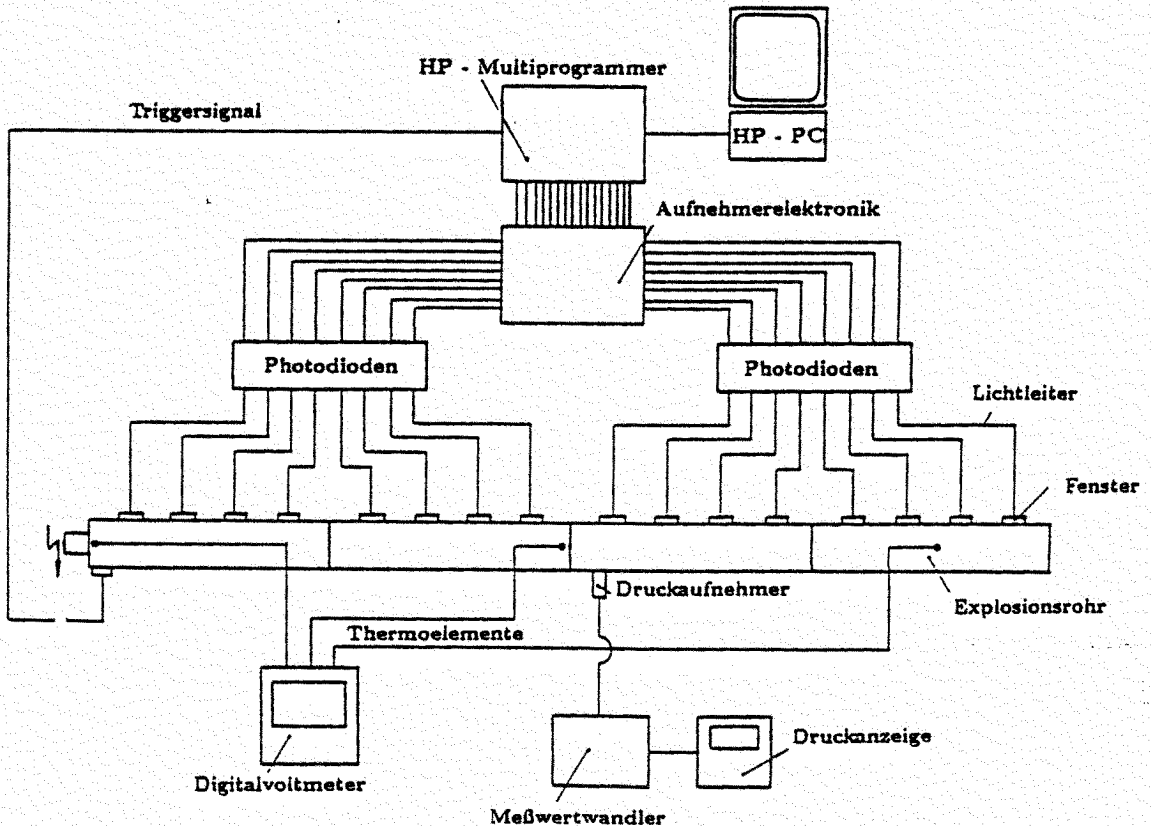


Abb. 2: Schema des Explosionsrohres mit Photodiodenmeßsystem zur Bestimmung örtlich gemittelter Flammengeschwindigkeiten

Flammengeschwindigkeit [m/s]

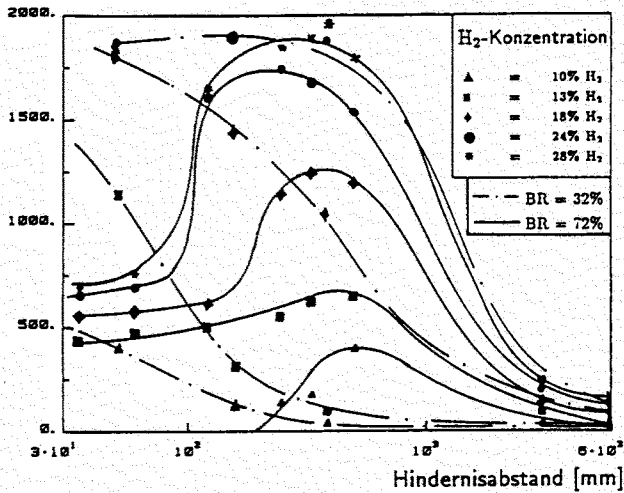


Abb. 4: maximale im Explosionsrohr erreichte Flammengeschwindigkeiten bei verschiedenen Hindernisstrecken und Gemischzusammensetzungen

9, 11, 13 m/s - 10.0% H_2

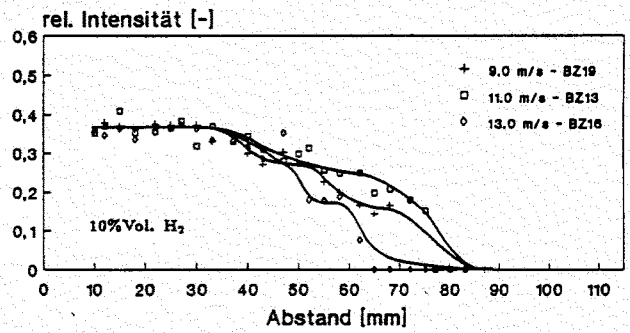


Abb. 5: H_2 -Konzentrationsverlauf entlang der Achse des stationären Brenners gemessen mit Raman-Spektroskopie-System

Geschwindigkeit [m/s]

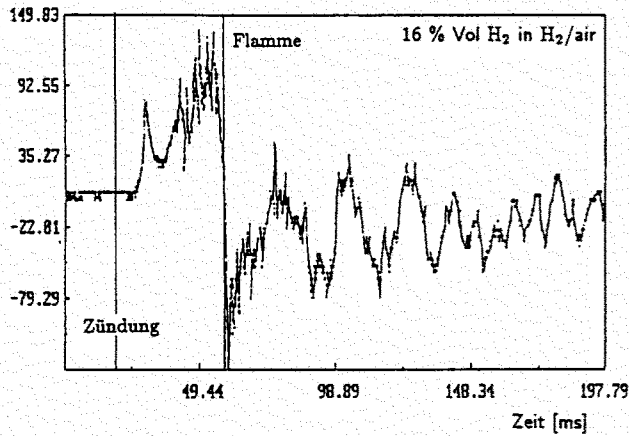


Abb. 6: Verlauf der Strömungsgeschwindigkeit während eines Verbrennungsversuchs, gemessen in der Mitte des Explosionsrohrs