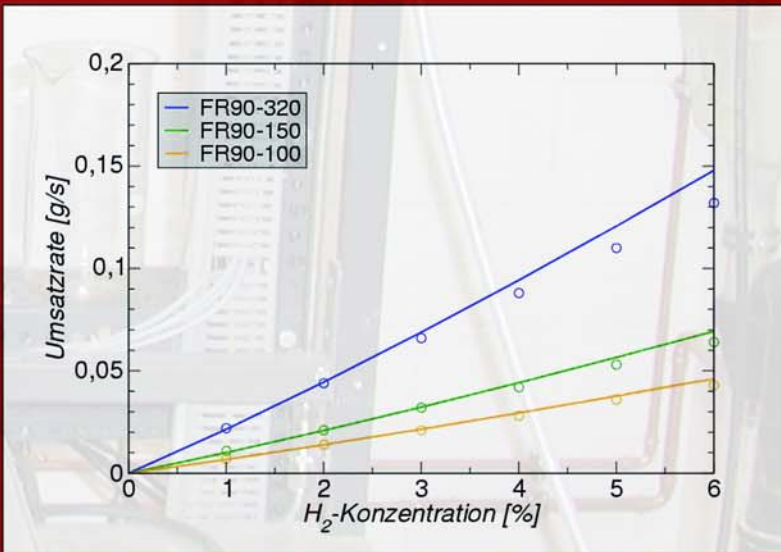


Modellierung der Prozesse in katalytischen Rekombinatoren

Jörg Böhm



Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energieforschung (IEF)
Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (IEF-6)

Modellierung der Prozesse in katalytischen Rekombinatoren

Jörg Böhm

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energietechnik / Energy Technology

Band / Volume 61

ISSN 1433-5522

ISBN 978-3-89336-473-2

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber Forschungszentrum Jülich GmbH
und Vertrieb: Zentralbibliothek, Verlag
 D-52425 Jülich
 Telefon (02461) 61-5368 · Telefax (02461) 61-6103
 e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de
 Internet: <http://www.fz-juelich.de/zb>

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2007

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energietechnik / Energy Technology Band / Volume 61

D 82 (Diss., Aachen, RWTH, 2006)

ISSN 1433-5522
ISBN 978-3-89336-473-2

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)
unter <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

Modellierung der Prozesse in katalytischen Rekombinatoren

von

Jörg Böhm

Kurzfassung:

Um ein hohes Maß an Sicherheit in kerntechnischen Anlagen zu erlangen, werden mögliche Störfallszenarien und deren Auswirkungen mit Hilfe numerischer Codes berechnet und analysiert. Die Entwicklung und Absicherung der in diesen Störfallcodes verwendeten numerischen Modelle sicherheitsrelevanter Anlagenteile stellt eine wichtige Aufgabe im Rahmen der nuklearen Sicherheitsforschung für schwere Störfälle dar.

Die massive Wasserstofffreisetzung im Verlauf eines Kernschmelzstörfalls ist ein in Störfallanalysen betrachtetes Szenario. Als wichtigste Maßnahme zur Beseitigung des Wasserstoffs und damit zur Vermeidung einer möglichen Detonation der Wasserstoff/Luft-Atmosphäre dienen katalytische Rekombinatoren, die in einer exothermen Reaktion den Wasserstoff mit dem Atmosphärensauerstoff zu Wasserdampf umsetzen.

Zur Modellierung des Betriebsverhaltens von Rekombinatoren in Hinblick auf die Umsetzung des Wasserstoffs und die daraus resultierende Temperaturentwicklung wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Rekombinatorsimulation REKO-Direkt entwickelt und anhand einer umfangreichen Versuchsdatenbank validiert. Erstmals ist es mit dem Programm möglich, das Betriebsverhalten eines Rekombinators im Rechenmodell so detailliert abzubilden, dass zukünftig wesentlich genauere Vorhersagen über den Verlauf von Störfällen mit Wasserstoffentstehung möglich werden. Insbesondere werden wichtige Aspekte wie die Abhängigkeit der Umsatzrate von der Gemischzusammensetzung, auch bei Anwesenheit von Wasserdampf oder bei Sauerstoffverarmung, im Modell erfasst. Die vieldiskutierte Problematik der Zündung des Gasgemischs an heißen Katalysatorblechen kann mit Hilfe des Programms zukünftig zuverlässiger bewertet werden, als dies mit den bisher angewandten Modellen möglich ist.

Modelling of processes in catalytic recombiners

from

Jörg Böhm

Abstract:

In order to achieve a high degree of safety in nuclear power plants and prevent possible accident scenarios, their consequences are calculated and analysed with numeric codes. One of the most important part of nuclear safety research of hazardous incidents are development and validation of these numeric models, which are implemented into accident codes.

The severe hydrogen release during a core meltdown is one of the considered scenario of performed accident analyses. One of the most important measure for the elimination of the hydrogen is catalytic recombiners. Converting the hydrogen with the atmospheric oxygen to water vapor in an exothermic reaction will prevent possible detonation of the hydrogen/air atmosphere.

Within the dissertation the recombiner simulation REKO-DIREKT was developed and validated by an extensive experimental database. The performance of recombiners with regard to the conversion of the hydrogen and the temperature development is modelled. The REKO-DIREKT program is unique and has made significant revolution in research of hydrogen safety. For the first time it has been possible to show the performance of the recombiner so great in detail by using REKO-DIREKT. In the future engineers of nuclear power plants will have opportunity to have precise forecasts about the process of the possible accidents with hydrogen release. Also with presence of water vapor or with oxygen depletion which are included in the model. The major discussion of the hydrogen ignition at hot catalyst steel plates can be evaluated in the future with REKO-DIREKT more reliably than the existing used models.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Stand der Technik	3
2.1	Katalytische Rekombinatoren	3
2.2	Numerische Modelle	6
2.3	Vorhandene Messdaten	9
3	Prozesse innerhalb eines Rekombinators	15
3.1	Wärmeleitung	16
3.2	Wärmestrahlung	17
3.3	Konvektion	22
3.4	Enthalpiestrom	27
3.5	Reaktionskinetik	27
3.6	Energiebilanz	30
4	Das Programm REKO-Direkt	33
4.1	Aufbau des Rechenmodells	33
4.2	Das Hauptprogramm	34
4.3	Eingabe- und Ausgabegrößen	35
4.3.1	Eingabegrößen	35
4.3.2	Ausgabegrößen	36
4.4	Kinetik	37
4.5	Kennzahlen	37
4.5.1	Konvektion	38
4.5.2	Wärmeübergangskoeffizient	41
4.5.3	Stoffübergang	41
4.5.4	Stoffübergangskoeffizient	43
4.5.5	Konzentrationsdifferenz	43
4.5.6	Strömungsgeschwindigkeit	43
4.6	Reaktion und Wärmequellen	44
4.7	Stoffwerte	46
4.7.1	Spezifische isobare Wärmekapazität	46
4.7.2	Dynamische Viskosität	48
4.7.3	Wärmeleitfähigkeit	49
4.7.4	Dichte	50

4.8	Wärmewiderstände	51
4.9	Löser	53
4.10	Wärmeströme	54
4.11	Einstrahlzahlen	56
4.12	Wärmestrahlung	57
5	Vergleichsrechnungen	61
5.1	Standardversuche	62
5.2	Berechnung unter Sauerstoffverarmung	71
5.3	Rechnungen mit Dampf	80
5.4	Wärmestrahlungsuntersuchungen	85
6	Anwendungsrechnungen	89
6.1	Berechnung der Umsatzrate	89
6.2	Parameterstudien	90
7	Zusammenfassung und Ausblick	95
8	Literaturverzeichnis	97
9	Nomenklatur	101
10	Anhang	107
10.1	Standardversuche mit $T_0 = 343\text{ K}$	107
10.2	Wärmestrahlungsuntersuchungen mit $T_0 = 343\text{ K}$	109
10.3	Teilbeschichtung	112

1 Einleitung

Im Rahmen von Sicherheitsanalysen werden bereits in der Planungsphase von kerntechnischen Anlagen umfangreiche Untersuchungen zu denkbaren Störfällen und Störfallauswirkungen durchgeführt. Aufgrund dieser Bemühungen wird für heutige kerntechnische Anlagen ein sehr hoher Sicherheitsstandard erreicht.

Ein wesentliches Ziel des Sicherheitskonzepts von Kernkraftwerken ist der Erhalt der Barrierefunktionen gegen den Austritt von Spaltprodukten. Bei der Betrachtung auslegungsüberschreitender schwerer Störfälle mit Kernschmelzen kommt dem Containment als letzter Barriere gegenüber der Umgebung eine besondere Bedeutung zu. Bei Untersuchungen dieser schweren Störfälle werden numerische Codes eingesetzt, die den Ablauf von Störfallszenarien simulieren und der Erarbeitung geeigneter Sicherheitsmaßnahmen bzw. zum Nachweis derer Wirksamkeit dienen. Beispiele für solche Codes sind ASTEC, eine Gemeinschaftsentwicklung der deutschen Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) und dem französischen Institut für Strahlenschutz und nukleare Sicherheit (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, IRSN), und MELCOR, entwickelt von Sandia National Laboratories in den USA. Wichtige Aufgabe im Rahmen der Codeentwicklung ist einerseits die experimentelle Absicherung von Teilaspekten und andererseits die geeignete numerische Umsetzung im Programm.

Ein wichtiges Phänomen im Zusammenhang mit schweren Störfällen in Leichtwasserreaktoren (LWR) stellt die massive Freisetzung und Ansammlung von Wasserstoff dar. Wasserstoff entsteht im Verlauf eines Kernschmelzunfalls im Wesentlichen als Folge der exothermen Reaktion von Zirkonium, das als Legierungsbestandteil der Hüllrohre für die Brennelemente dient, mit dem verdampften Kühlwasser. Die Bildung von 10.000 bis 20.000 Standardkubikmetern Wasserstoff in einem LWR sind denkbar [KUGE 03]. Im Falle einer Zündung des Gemisches aus Wasserstoff mit dem vorhandenen Luftsauerstoff kann die erzeugte Druckwelle verheerende Auswirkungen in der Anlage hervorrufen und die Barrierefunktion des Containments bedrohen.

Die mögliche Bildung von großen Mengen Wasserstoff im Verlauf eines schweren Störfalles in einem LWR führte weltweit zu Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Wasserstoffbeseitigung aus dem Containment eines Kernkraftwerks. Ein Ergebnis dieser Arbeiten ist die Entwicklung und der Bau von katalytischen Rekombinatoren. Diese Vorrichtungen sind mit katalytisch beschichteten Stahlblechen ausgestattet, an deren Oberflächen das Wasserstoffgas mit Hilfe des Luftsauerstoffs zu ungefährlichem Wasserdampf reagiert. Nach [ZHON 01] sind katalytische Rekombinatoren Sicherheitselemente, die das Risiko einer Detonation des Wasserstoffgases innerhalb des Containments verringern.

Über 25 Jahre nach dem Kernschmelzunfall von Three Mile Island im März 1979, wo es aufgrund der partiellen Kernschmelze zu Wasserstoffverpuffungen im Containment gekommen ist, ist eine Vielzahl an Containments europäischer LWR mit katalytischen Rekombinatoren ausgestattet. Allerdings zeigen zahlreiche Untersuchungen, dass aufgrund der großen umzusetzenden Wasserstoffmengen und der starken Wärmeentwicklung während

des exothermen Rekombinationsprozesses die Rekombinatoren überhitzen und zu einer Zündung der Containmentatmosphäre führen können. Deshalb sind weitere Bemühungen zu unternehmen, um die chemischen und wärmetechnischen Prozesse genauer zu verstehen und die bestehenden Rekombinatoren zu optimieren.

Die Bewertung des Verhaltens von Rekombinatoren in Störfallszenarien erfordert insbesondere die modellmäßige Beschreibung des Umsetzungsvermögens unter wechselnden Störfallbedingungen wie Temperatur-, Druck- und Gaszusammensetzungsänderungen sowie Bedingungen der umgebenden Thermohydraulik. Des Weiteren ist die Gemischzündung infolge heißer Katalysatorplatten und die Gehäusetemperatur zu betrachten, um den Einfluss auf die Thermohydraulik in der Umgebung bewerten zu können. Heutige Modelle berücksichtigen diese wichtigen Aspekte nur in sehr geringem Maße. Die meisten der experimentell ermittelten Daten zur Validierung dieser Modelle wurden von integralen Experimenten abgeleitet, die darauf abzielten, die allgemeine Leistungsfähigkeit eines Rekombinators unter realistischen Bedingungen abzuschätzen. Da es schwierig ist, numerische Modelle mittels instationärer Daten zu entwickeln, sind die heutigen Modelle katalytischer Rekombinatoren oft „Black-box“-Modelle mit begrenzter Berücksichtigung der Reaktionskinetik oder der Wärme- und Stofftransportprozesse [BACH 02]. Damit ist die Zuverlässigkeit der aus den Störfallsimulationen gewonnenen Erkenntnisse in Bezug auf die Wirksamkeit katalytischer Rekombinatoren nur gering.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung einer Rekombinatorsimulation, in der die wesentlichen Aspekte eines katalytischen Rekombinators berücksichtigt und physikalisch richtig abgebildet werden. Neben der Verbesserung der Belastbarkeit von Störfallrechnungen wird so auch ein vertieftes Verständnis der ablaufenden Prozesse in katalytischen Rekombinatoren erlangt. Die Validierung des Programms erfolgt anhand der umfangreichen Versuchsdatenbank, die die Ergebnisse der Experimente am Versuchsstand REKO-3 des Forschungszentrums Jülich beinhaltet. An diesem Prüfstand werden die Prozesse innerhalb des Rekombinators wie die Reaktionskinetik oder die Wärme- und Stoffübertragungsprozesse experimentell untersucht. Diese Daten dienen nun als Grundlage für die theoretische Analyse der Prozesse in Rekombinatoren.

2 Stand der Technik

Seit dem ersten Wasserstoffunfall im Reaktor Three Miles Island konzentrieren sich Forschungsarbeiten zum Wasserstoffproblem weltweit auf die Themenbereiche der Wasserstoffentstehung, der Wasserstoffverteilung im Containment, der Wasserstoffverbrennung und möglicher Folgen für die Integrität des Containments und der Wasserstoffbeseitigung. Für den letzten Punkt existieren im Wesentlichen drei Konzepte [ZHON 01]. Zum einen kann die Wasserstoff-Luft-Atmosphäre unmittelbar nach Erreichen der unteren Zündgrenze kontrolliert gezündet werden. Ein weiteres Konzept sieht die Inertisierung des Containments durch Einleiten von Inertgas vor, um das Gemisch aus dem zündfähigen Bereich zu führen. Bei Siedewasserreaktoren (SWR) besteht die Möglichkeit einer Vorinertisierung des Containments, um den Sauerstoffanteil in der Atmosphäre unter 5 Vol.-% zu halten. Das letzte zu nennende Konzept ist die Wasserstoffbeseitigung mittels katalytischer Rekombinatoren.

2.1 Katalytische Rekombinatoren

Zur Beseitigung der im Verlauf von Störfällen freigesetzten Wasserstoffmengen werden katalytische Rekombinatoren eingesetzt. In diesen Vorrichtungen wird Wasserstoff mit Luftsauerstoff mittels eines Katalysators bereits bei Raumtemperatur und auch außerhalb konventioneller Zündgrenzen zu Wasserdampf umgewandelt. Da hierfür keine externe Energieversorgung notwendig ist, arbeitet ein Rekombinator vollständig passiv. Diese Eigenschaft ist ein wichtiges Argument zur Verwendung von Rekombinatoren als Sicherheitsvorrichtungen innerhalb von Kernkraftwerken.

Kommerzielle katalytische Rekombinatoren werden von den folgenden Firmen angeboten [BACH 02]:

- Atomic Energy of Canada Limited (Kanada)
- Elektrowatt-Ekono AG (Deutschland)
- NIS Ingenieurgesellschaft mbH (Deutschland)
- Framatome-ANP (Frankreich, Deutschland)

In den vergangenen Jahrzehnten wurden weltweit Grundlagenforschung und Qualifikationstests für katalytische Rekombinatoren betrieben (Tabelle 2.1). Seit den späten 80er Jahren werden die Containments in zahlreichen Ländern mit Rekombinatoren nachgerüstet (Tabelle 2.2).

Die Beschreibung der Funktionsweise katalytischer Rekombinatoren erfolgt am Beispiel des Modells der Firma Framatome-ANP (Abbildung 2.1), da dieser Typ in Europa am weitesten verbreitet ist [BACH 02] und alle im Einsatz befindlichen Rekombinatoren auf demselben Prinzip beruhen. Die Hauptkomponenten eines Rekombinators sind dessen parallel angeordneten Katalysatorplatten, die von einem Blechgehäuse umschlossen sind. Durch die parallele Anordnung der Platten ergeben sich flache vertikale Strömungskanäle.

Tabelle 2.1: Übersicht zur Grundlagenforschung und zu Qualifikationstests katalytischer Rekombinatoren [ALLE 05]

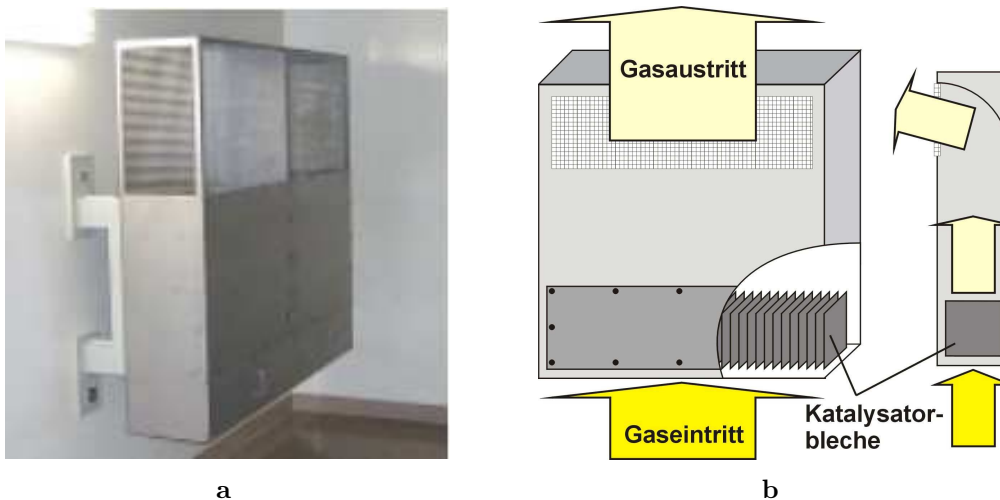
Deutschland	KFA Jülich	Grundlagenforschung	1984 – 1989
	HDR Anlage Großwelzheim	Funktionstests für freihängende Bleche	1990
	Karlstein-Laboratorium	• Grundsatzentwicklung, diverse Testreihen und Typprüfungen • Testreihe und Typprüfung einer neuen Baureihe	1989 – 1998 Juli 1998
	Battelle Modellcontainment	Leistungstests in Mehrraumgeometrie	1991
	Battelle Schleusenversuche	Vergiftungs- und Qualifikationsversuche	1990
	NIS-VAK	Optimierung, Qualifizierung an Testmodul	1997 – 1999
Kanada	AECL Whiteshell Laboratories	Grundlagen- und Qualifikationstest (konstruktive Gestaltung vergleichbar mit Siemens Rekombinatoren)	1983 – 1998
Frankreich	Cadarache	• EDF/KALI-Test Qualifikation für 900 MW PWR (Sprühverfahren incl. $NaOH$, H_3BO_3, etc.)	1995
		• IPSN-H2PAR-Tests Tests mit Kernschmelzs simulation incl. Katalysatorgiften, wie z.B. Te, Se, I, Cs etc.	1996 – 1998
		• EdF/CEA Deflagrationstest	1997 – 1998
		• EPRI/EdF-Test Qualifikation für US-ALWR	1995 – 1996
USA	Sandia Surtsey	NRC Tests, Qualifikationsversuche mit NIS PAR 11/22/44	1997 – 1998
Japan	KEP/Mitsubishi/Toshiba	Qualifikationstests	1999

An der Unterseite des Gehäuses befindet sich der Gaseinlass, bei dem das kalte mit Wasserstoff angereicherte Gasgemisch eintritt und zu den Katalysatorplatten gelangt. Dabei strömt das Gas durch die flachen Kanäle und reagiert an den Oberflächen exotherm zu Wasserdampf. Aufgrund von freier Konvektion tritt das nun heiße wasserstoffarme Gas an der Oberseite des Gehäuses aus und gelangt in die Atmosphäre des Containments.

Da die Umsetzung des Wasserstoffs auch für hohe Konzentrationen bei den derzeit sich auf dem Markt befindlichen Rekombinatoren weitgehend nicht begrenzt wird, besteht die Möglichkeit einer unbeabsichtigten Zündung des Gasgemisches. Denn infolge der exothermen katalytischen Reaktion können sich je nach umgesetzter Wasserstoffmenge Temperaturen entwickeln, die weit über der konventionellen Zündgrenze von Wasserstoff liegen. Somit kann das sogenannte „Wasserstoffproblem“ noch nicht als abschließend untersucht

Tabelle 2.2: Einsatz bzw. Planung von katalytischen Rekombinatoren in Kernkraftwerken weltweit [BACH 02]

Land	Reaktortyp	Maßnahmen	Einbau seit
Belgien	DWR	PAR	1995
Deutschland	DWR LWR	PAR PAR + Inerte Atmosphäre	1999
Kanada	CANDU6	PAR + Mixing	2000
Finnland	VVER	PAR + Zünder	2002
Frankreich	DWR	PAR	
Niederlande	DWR	PAR	1997
Osteuropäische Länder (Bulgarien, Tschechien, Ungarn, Slowakei)	VVER DWR	PAR	1987
Schweiz	DWR	PAR	
Spanien	DWR	PAR	
USA	IP2 SURRY 1 DWR/LWR	PAR PAR PAR + Inerte Atmosphäre	1997

Abbildung 2.1: Rekombinator der Firma Framatome-ANP
(a) Foto aus [SIEM 92] und (b) Schemazeichnung

angesehen werden [ALLE 05]. Auch fundamentale Fragestellungen bezüglich der Reaktionskinetik, der Wärme- und Stofftransportvorgänge und des Einflusses von Katalysatortorgiften auf das Startverhalten sind derzeit noch nicht hinreichend geklärt. Außerdem arbeiten Rekombinatoren in der Anfangsphase der Wasserstofffreisetzung nur langsam [BREI 00]. Der Wasserstoff entsteht also anfangs schneller, als er rekombiniert werden kann. Erst nach Stunden sind Rekombinatoren in der Lage, die Wasserstoffkonzentration im Containment auf ein ungefährliches Maß zu reduzieren.

Aufgrund der erwähnten Einschränkungen kommerziell erhältlicher katalytischer Rekombinatoren wird am Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (ISR) des Forschungszentrums Jülich (FZJ) parallel zu Grundlagenuntersuchungen an bestehenden Rekombinatoren ein Konzept zum Design zündfreier modular aufgebauter Rekombinatoren entwickelt [TRAG 05]. Hierzu werden spezielle Katalysatorelemente mit aktivitätsangepassten Beschichtungen entwickelt, die eine Zündung des zu rekombinierenden Wasserstoff-Luft-Gemisches ausschließen sollen. Zusätzlich wird eine Vielzahl von Untersuchungen zur Reaktionskinetik und zum Wärme- und Stofftransport in Systemen heutiger Bauart durchgeführt [DRIN 05].

2.2 Numerische Modelle

Schwere Störfälle oder sogar Auslegungstörfälle mit Wasserstofffreisetzung können unter besonderen Umständen und bedingt durch die Geometrie der Containments zu Schichtenbildung und Ansammlungen von Wasserstoff in Teilen des Containments führen [HEIT 00]. Die Vorhersage solcher Phänomene, die Lokalisierung kritischer Gebäudeteile und die Beseitigung des Wasserstoffs sind von großer Bedeutung. Eine angemessene Verteilung katalytischer Rekombinatoren innerhalb des Containments soll hohe lokale Wasserstoffansammlungen und deren Zündung vermeiden. Damit eine solche angemessene Verteilung sichergestellt werden kann, ist es notwendig, Wasserstoffquellen, die Freisetzungsraten, die Verteilung und lokale Ansammlungen innerhalb des Containments zu identifizieren und deren Abbauraten durch Rekombinatoren zu ermitteln. Somit werden numerische Modelle benötigt, die die Leistungsfähigkeit eines Rekombinators errechnen und anhand dieser Daten eine optimale Anordnung vorhersagen können. Parallel zur Entwicklung von Sicherheitsvorrichtungen zur Wasserstoffbeseitigung wurden an verschiedenen Institutionen numerische Modelle zur Beschreibung des Verhaltens katalytischer Rekombinatoren entwickelt. Einige dieser Programme werden im Folgenden kurz vorgestellt.

Sehr einfache empirische Beziehungen wurden von den Herstellern katalytischer Rekombinatoren selbst entwickelt. Diese berechnen nur die Umsatzrate $\dot{r}$ mit Hilfe der Eingangsgrößen Wasserstoffkonzentration c_{H_2} am Gaseinlass und dem Umgebungsdruck p . Das Modell der Firma Atomic Energy of Canada Limited (AECL) berechnet die Umsatzrate mit folgender Beziehung [BACH 02]:

$$\dot{r}_{H_2} \left[\frac{kg}{h} \right] \cong \left(0,15196 \cdot c_{H_2} + 0,0126 \cdot c_{H_2}^2 \right) \cdot \left(\frac{298}{T} \right)^{1,10974} \cdot p^{0,57769} \quad (2.1)$$

Das Modell der Firma Framatome-ANP verwendet zur Berechnung der Umsatzrate neben den Eingangsgrößen noch einen empirischen Wirkungsgrad η und zwei vom Rekombinatortyp abhängige Faktoren k_1 und k_2 [MOVA 94]:

$$\dot{r} \left[\frac{g}{s} \right] \cong \eta \cdot c_{H_2} \cdot \left(k_1 \cdot \frac{p}{p_0} + k_2 \right) \tanh(c_{H_2} - 0,5) \text{ if } c_{H_2} < 8\% \quad (2.2)$$

Die Firma NIS entwickelte ebenfalls für ihren Rekombinatortyp ein einfaches Modell [SHER 97]:

$$\dot{r}\left[\frac{g}{s}\right] \cong 1,134 \cdot c_{H_2}^{1,307} \cdot \left(\frac{p}{RT}\right) \quad (2.3)$$

Ein eindimensionales Rekombinatormodell entwickelte Klein-Hessling [KLEI 00] von der GRS, das ein vertikales Temperaturprofil innerhalb des Rekombinators und des Gehäuses berechnet. Das Gas strömt als homogenes Fluid durch den Rekombinator. Dabei dient eine Arrhenius-Beziehung als Grundlage für die Berechnung der Reaktion. Der Wärmetransport findet durch Naturkonvektion und Strahlung statt. Dieses Modell wurde in den numerischen Code COCOSYS implementiert.

Avakian von der CEA in Frankreich entwickelte eine sehr einfache Rekombinatorberechnung, die von einer homogenen Plattentemperatur ausgeht [AVAK 02]. Dabei erfasst er nur instationäre Bedingungen mit einer Lewis-Zahl von 1-1,2 und einer Nußelt-Zahl von 2,1.

Aus Japan stammt das Modell von Tahara [BACH 02], Toshiba Corp., das die Wasserstoffabbaurate aufgrund von Diffusion bestimmt. Dabei ist die Abbaurate proportional zum Diffusionsmassenstrom, zur Katalysatoroberfläche und von der Strömungsgeschwindigkeit abhängig.

Ein vereinfachtes halbempirisches Modell stammt von Markandeya und Chakraborty von der GRS [MARK 93], das zur Abschätzung der Effektivität von Rekombinatoren bei der Minderung der Folgen durch Wasserstofffreisetzungen während eines Störfalls dient. Es ist für die Rekombinatorberechnung in den Containmentcode ASTEC implementiert. Das Modell erstellt und löst Massen- und Energiebilanzen in einem geschlossenen Reaktionsbehälter. Dabei muss das Wasserstoff-Luft-Gemisch homogen sein und mit einer festvorgegebenen Massendurchflussrate in den Behälter geleitet werden. Die durch die katalytische Reaktion entstandene Wärme wird zwischen der Rekombinatorplatte und der Umgebung aufgeteilt:

$$\Delta H_R \frac{dn_{H_2}}{dt} = m \cdot c_p \frac{dT_P}{dt} - (\dot{Q}_\alpha + \dot{Q}_\epsilon) \quad (2.4)$$

Dabei ist T_P die mittlere Temperatur der Katalysatorplatte, $\dot{Q}_\alpha$ der Konvektionsterm und $\dot{Q}_\epsilon$ der Strahlungsterm. Der Konvektionsterm wird mit der Standardwärmeübertragungsformel für vertikale Platten berechnet. Der Strahlungsterm ergibt sich aus dem Nettostrahlungsaustausch zwischen Katalysatorplatte und den Behälterwänden, die als konzentrische Kreise angenommen werden. Die Reaktionskinetik wird mit einer Arrhenius-Gleichung der folgenden Form berechnet:

$$\frac{dn_{H_2}}{dt} = K e^{-\frac{\Delta E}{RT}} (c_{H_2})^{k_1} (c_{O_2})^{k_2} A_P \quad (2.5)$$

mit den Arrhenius-Konstanten K und ΔE , den Exponenten k_1 und k_2 , die die Reaktion charakterisieren, den mittleren Konzentrationen für Wasserstoff und Sauerstoff c_{H_2}

und c_{O_2} und der Katalysatoroberfläche A_P . Die Arrhenius-Konstanten und die Exponenten sind sehr spezifische Größen, die vom Katalysator und der Gaszusammensetzung abhängen. So muss für jede Änderung der Randbedingungen die Arrhenius-Gleichung angepasst werden. Besonders zweifelhaft ist die Einführung einer empirischen Temperaturabhängigkeit der Aktivierungsenergie. Dadurch wird das Modell sehr unflexibel. Durch die starken Vereinfachungen und die Validierung anhand nur weniger Versuchsdaten nimmt die Zuverlässigkeit der Ergebnisse ab.

Ein weiteres Modell stammt von Bordini und Fineschi von der Universität Pisa ([BORD 03], [FINE 96]), das einen CFD-Code mit Finite-Differenzen-Methode zur Diskretisierung der Bilanzgleichungen verwendet. Dabei berechnet der Code eine zweidimensionale Strömungs- und Konzentrationsverteilung in der aktiven Zone des Rekombinators. Aufgrund von Symmetrieeigenschaften wird nur der halbe Strömungskanal modelliert. An jedem Punkt des Gittermodells wird eine Energiebilanz, eine Wasserstoff-Massenbilanz und eine Impulsbilanz aufgestellt und gelöst. Die Ergebnisse liefern die Gastemperatur, die Wasserstoffkonzentration sowie die Gasgeschwindigkeit und -dichte. Das Programm gibt keine Temperaturwerte auf den Oberflächen aus. Die Validierung fand anhand von Versuchen im 640 m³ umfassenden Battelle Model Containment statt. Innerhalb dieser Versuchsreihen wurden an den im Containment befindlichen Rekombinatoren die Fluidgeschwindigkeit am Einlass, die Gastemperatur am Einlass- und Austritt und die Wasserstoffkonzentration am Einlass und Austritt bestimmt. Der gesamte Code enthält kein Modell zur Berechnung der Reaktionskinetik an den Katalysatoroberflächen.

Das Modell von Heitsch von der GRS [HEIT 00] rechnet mit dem CFX-Code der Firma ANSYS, der zweidimensionale Navier-Stokes-Gleichungen löst. Dabei werden numerische Approximationen der Navier-Stokes-Gleichung verwendet, die in Interaktion mit den chemischen Reaktionen stehen. Es wird eine Platte in einem Gehäuse modelliert, wobei außerhalb des Gehäuses homogene Atmosphärenbedingungen herrschen. Für diesen Code wurde ein Oberflächenreaktionsmodell entwickelt, das auf einem Arrhenius-Ansatz für die Reaktionsrate basiert. Das gesamte Modell ist zweidimensional und berechnet eine laminare Strömung. Dabei wird die Diffusion von Wasserstoff, Sauerstoff und Wasserdampf im Trägermedium Stickstoff berücksichtigt. Des Weiteren berechnet der Code die Wärmeleitung im Fluid und auf den Blechen, den Strahlungsaustausch zwischen den Blechen und den Wärmeverlust nach außen. Die Wärmestrahlung wird dabei teilweise vom Dampf absorbiert, wobei die meisten Wärmestrahlungsverluste nicht berücksichtigt werden. Zur Validierung dieses Modells dienen zwei Messpunkte eines Integralexperiments im Battelle Model Containment, die die Temperatur an der Oberfläche, die Gastemperatur und den H_2 -Stoffmengenanteil beinhalten. Die Ergebnisse des Modells bestehen aus der H_2 -Stoffmengenverteilung und der Verteilung der Reaktionsrate. Die berechneten Plattentemperaturen liegen höher als im Experiment, da keine Wärmestrahlungsverluste berücksichtigt werden. Dieses Modell stellt das anspruchsvollste Rekombinatormodell dar. Der wesentliche Nachteil besteht jedoch im integrierten Kinetikmodell, das die katalytische Reaktion nur als Oberflächenreaktion betrachtet.

Einige der genannten Modelle sind aufgrund der unvollständigen Berücksichtigung wichtiger physikalischer Größen wie zum Beispiel der Plattentemperatur nicht geeignet, wichtige

Fragen wie zum Beispiel die nach dem Erreichen der Zündtemperatur des Gasgemisches zu beantworten. Ein weiterer wesentlicher Kritikpunkt sind die jeweils implementierten Kinetikmodelle, die sich fast ausschließlich auf die Verwendung eines Arrhenius-Ansatzes beschränken. Da der geschwindigkeitsbestimmende Schritt bei der katalytischen Reaktion in Rekombinatoren die Diffusion ist ([REIN 99], [DRIN 05]), besitzen auf Oberflächenreaktion basierende Ansätze ein hohes Unsicherheitspotential. Das Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung eines Rekombinatormodells, in dem die wesentlichen Aspekte berücksichtigt und physikalisch richtig abgebildet werden.

2.3 Vorhandene Messdaten

Im Jahr 1983 wurden mit Grundlagen- und Qualifikationstest an Rekombinatoren begonnen [ALLE 05]. Seit dieser Zeit sind zahlreiche Untersuchungen durchgeführt worden, die aber aufgrund von Vertraulichkeit nicht frei verfügbar gemacht wurden. Die frei zugänglichen Versuchsdaten wurden mit Hilfe von Integralexperimenten ermittelt, die der Qualifizierung von Rekombinatoren dienen. Hauptsächlich wurden dabei instationäre Zustände erreicht, die für die Codevalidierung nicht geeignet sind.

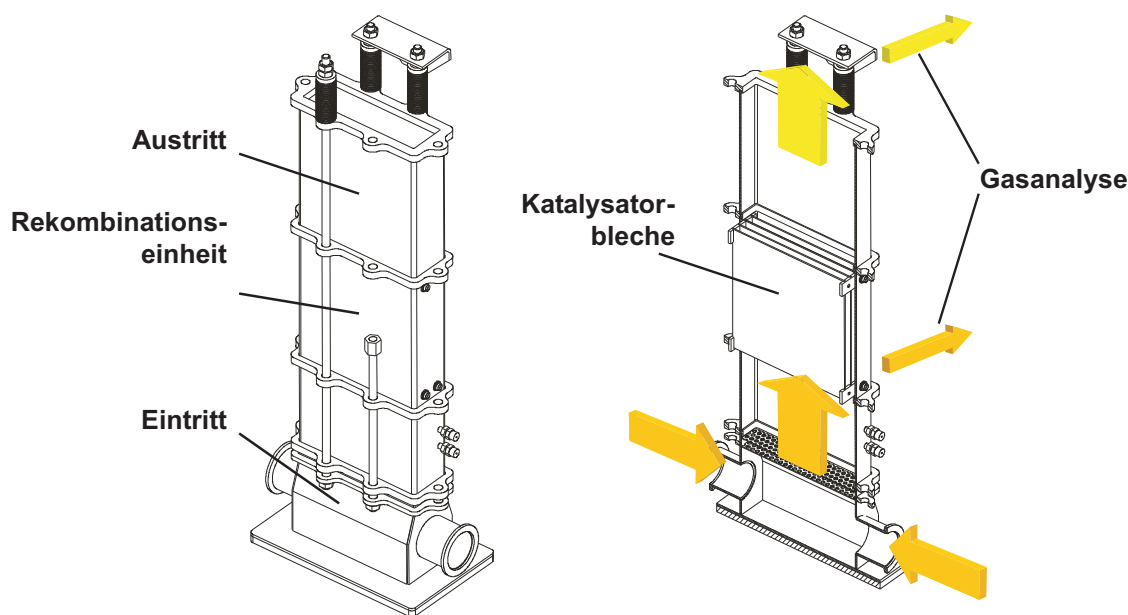


Abbildung 2.2: Schemazeichnung des Prüfstands REKO-3 des Instituts für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums Jülich

Seit 1996 führt das Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums Jülich experimentelle Arbeiten zu Rekombinatoren durch. Unter anderem wurde der Prüfstand REKO-3 errichtet, der es ermöglicht, stationäre Daten eines Rekombinatorsegments unter verschiedenen Umgebungsbedingungen zu bestimmen (Abbildung 2.2). Der Versuchsstand erlaubt die Untersuchung von Katalysatorelementen innerhalb eines vertikalen Strömungskanaals unter definierten Bedingungen wie Gaszusammenset-

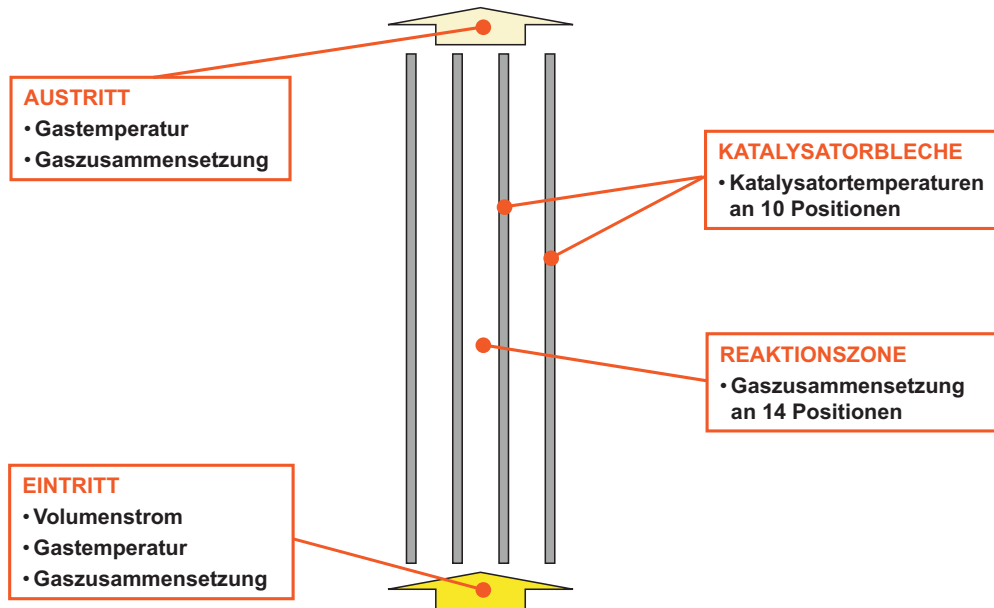


Abbildung 2.3: Anordnung der Katalysatorplatten und der Messstellen in REKO-3

zung, Strömungsgeschwindigkeit und Gaseintrittstemperatur. Die Katalysatorplatten bestehend aus mit Washcoat/Platin beschichtetem Edelstahlsubstrat sind parallel angeordnet, sodass sie senkrechte Strömungskanäle bilden (Abbildung 2.3). Diese Anordnung gleicht dem Ausschnitt aus einem Plattenrekombinator von Framatome-ANP. Innerhalb dieser Anordnung wird die Plattentemperaturverteilung sowie der Wasserstoffabbau in Strömungsrichtung gemessen. Im Allgemeinen wurden die Experimente mit drei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten ($0,25 \text{ m/s}$, $0,5 \text{ m/s}$ und $0,8 \text{ m/s}$), drei verschiedenen Eintrittstemperaturen des Gases (298 K , 343 K und 383 K) und für Wasserstoffkonzentrationen von $0,5 \text{ Vol.-%}$ bis 4 Vol.-% durchgeführt [DRIN 05]. Mit Hilfe dieser Standardversuche lassen sich unterschiedliche Bedingungen realisieren, wie sie während eines möglichen Störfalles auftreten können. Die verschiedenen Versuchsbedingungen der für eine codevalidierung zur Verfügung stehenden Messreihen sind in Tabelle 2.3 aufgelistet. Die Tabelle enthält die Gaseintrittstemperatur T_0 , die Strömungsgeschwindigkeit des Gases am Gaseintritt v_0 , die Eintrittswasserstoffkonzentration des Gasgemischs y_{H_2} und einen Hinweis darauf, ob Temperaturmessungen an den Katalysatorplatten und im Gas (T_{mess}) sowie Konzentrationsmessungen im Gas (y_{mess}) durchgeführt wurden.

Da während eines Störfalles aufgrund der großen Kühlwassermengen und hohen Temperaturen im Reaktor auch Wasserdampf in der Atmosphäre vorhanden ist, wurden auch zu diesem Fall Versuche durchgeführt. Bei diesen Experimenten enthielt die Atmosphäre neben Luft und Wasserstoff auch einen Wasserdampfanteil (y_{Dampf}) von 20% und bei einer weiteren Messreihe 60%. Die Versuche mit 60% Dampf konnten anlagenbedingt nur mit einer langsamen Strömungsgeschwindigkeit durchgeführt werden. Die Auflistung der Dampfversuche enthält die Tabelle 2.4.

Ein mögliches Störfallszenario stellt die Abreicherung des Luftsauerstoffs durch Oxida-

Tabelle 2.3: Standardversuche

T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}	T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}
298	0,25	1	+	+	343	0,5	0,5	+	○
		1,5	+	○			1	+	○
		2	+	+			1,5	+	○
		3	+	+			2	+	○
		4	+	+			3	+	○
		4,5	+	○			4	+	○
		5	+	+	343	0,8	0,5	+	○
298	0,4	4	+	○			1	+	○
							1,5	+	○
298	0,5	1	+	+			2	+	○
		1,5	+	○			3	+	○
		2	+	+			4	+	○
		3	+	+	383	0,25	1	+	+
		3,5	+	○			2	+	+
298	0,8	4	+	+			3	+	+
		0,5	+	○			4	+	+
		1	+	+			5	+	+
		1,5	+	○	383	0,5	1	+	+
		2	+	+			2	+	+
		3	+	+			3	+	+
		3,5	+	○			4	+	+
343	0,25	4	+	+	383	0,8	1	+	+
		1	+	○			2	+	+
		1,5	+	○			3	+	+
		2	+	○			4	+	+
		3	+	○					
		4	+	○					
		5	+	○					
		5,5	+	○					

tion und auch durch die Rekombination dar. Dabei sind Gemischzusammensetzungen dankbar, in denen nicht genug Sauerstoff zur vollständigen Umsetzung des Wasserstoffs vorhanden ist. Auch unter diesen Bedingungen wurde experimentell das Verhalten des Rekombinators ermittelt. Diese Art der Versuche ermöglichen das Stofftransportmodell der Rekombinatorsimulation zu validieren. Bei diesen Versuchen wurde der Sauerstoffanteil (y_{O_2}) in der Atmosphäre auf 8% bis 1% reduziert. Die verschiedenen Versuchsparameter sind in Tabelle 2.5 aufgelistet.

Neben den Umgebungsbedingungen wurden auch die Anordnung des Katalysators variiert. Zur Bewertung des Wärmestrahlungseinflusses wurde eine unbeschichtete Platte zwischen die Katalysatorplatten eingefügt. Ein Maß für die Wärmestrahlung ergab sich aus der Temperaturerniedrigung der Katalysator- und der Temperaturerhöhung der unbeschichteten Platte. Die Versuchsbedingungen zu dieser Testreihe sind in Tabelle 2.6 zusammengefasst.

Weitere Versuche zur Begrenzung der katalytischen Reaktion wurden durchgeführt, indem Teilstücke der Platte nicht katalytisch beschichtet waren. Bei einer Versuchsanordnung

Tabelle 2.4: Versuche mit Wasserdampf im Gas

T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	y_{Dampf} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}	T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	y_{Dampf} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}
383	0,25	1	20	+	+	383	0,8	1	20	+	+
		2	20	+	+			2	20	+	+
		3	20	+	+			3	20	+	+
		4	20	+	+			4	20	+	+
		5	20	+	+						
383	0,5	1	20	+	+	383	0,25	1	60	+	+
		2	20	+	+			2	60	+	+
		3	20	+	+			3	60	+	+
		4	20	+	+			4	60	+	+
		5	20	+	+			5	60	+	+

Tabelle 2.5: Versuche unter Sauerstoffverarmung

T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	y_{O_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}	T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	y_{O_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}
298	0,25	6	8	+	+	298	0,25	4	5	+	+
			7	+	+				4	+	+
			6	+	+				3	+	+
			5	+	+				2	+	+
			4	+	+				1	+	+
			3	+	+	298	0,25	2	5	+	+
			2	+	+				4	+	+
			1	+	+				3	+	+
									2	+	+
									1	+	+

enthält der untere Plattenabschnitt bis zu einer Höhe von 29 mm keine Beschichtung (Tabelle 2.7). Eine weitere Versuchsanordnung bestand aus einer Streifenbeschichtung. Dabei entfiel die Beschichtung aller Platten in den Bereichen von 0 bis 30 mm, von 58 mm bis 86 mm und von 115 mm bis 143 mm (Tabelle 2.8).

Mit Hilfe dieser umfangreichen Datenbank lässt sich ein Programm zur Rekombinator-simulation unter sehr unterschiedlichen Bedingungen validieren. Aufgrund der verschiedenen Katalysatorbeschichtungen, Gaszusammensetzungen und Umgebungsbedingungen lassen sich die Modelle für den Wärmeübergang, die Wärmestrahlung, den Stoffübergang und die Reaktionskinetik der Simulation detailliert überprüfen.

Tabelle 2.6: Versuche zur Wärmestrahlung

T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}	T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}
298	0,25	1	+	○	343	0,25	1	+	○
		2	+	○			2	+	○
		3	+	○			3	+	○
		4	+	○			4	+	○
		5	+	○			5	+	○
298	0,5	1	+	○	343	0,5	1	+	○
		2	+	○			2	+	○
		3	+	○			3	+	○
		4	+	○			4	+	○
298	0,8	1	+	○			5	+	○
		2	+	○	343	0,8	1	+	○
		3	+	○			2	+	○
		4	+	○			3	+	○
							4	+	○

Tabelle 2.7: Versuche mit Teilbeschichtung

T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}	T_0 [K]	v_0 [m/s]	y_{H_2} [Vol.-%]	T_{mess}	y_{mess}
298	0,25	1	+	○	343	0,25	1	+	○
		1,5	+	○			1,5	+	○
		2	+	○			2	+	○
		3	+	○			3	+	○
		4	+	○			4	+	○
298	0,5	0,5	+	○	343	0,5	1	+	○
		1	+	○			1,5	+	○
		1,5	+	○			2	+	○
		2	+	○			3	+	○
		3	+	○			4	+	○
		4	+	○	343	0,8	1	+	○
298	0,8	1	+	○			1,5	+	○
		1,5	+	○			2	+	○
		2	+	○			3	+	○
		3	+	○			4	+	○
		4	+	○					

3 Prozesse innerhalb eines Rekombinators

Numerische Modelle erfassen im Allgemeinen die wesentlichen Parameter von natürlichen Phänomenen und bilden sie in einem berechenbaren Gleichungssystem ab. Dabei ist der erste Schritt die Formulierung des Modells, indem die Komplexität der physikalischen Realität verringert wird [ARIS 95]. Die Wirklichkeit wird also beschreibbar und verstehbar gemacht. Ein geschlossener Satz von mathematischen Gleichungen beschreibt und formuliert das Modell. Da aufgrund der hohen Komplexität und der Vielzahl an Parametern das Modell nur mit numerischen Verfahren ausgewertet werden kann, wird auch von einem ComputermodeLL gesprochen. Der zweite Entwicklungsschritt ist die Untersuchung des Modells, bei der allein das Modell Gegenstand der Untersuchung ist und nicht die darzustellende Realität. Es wird eine angemessene Methodik gewählt, mit der das Modell syntaktisch und semantisch fehlerfrei arbeitet. Durch die richtige Methodik lässt sich ein Modell wesentlich vereinfachen. Auch wenn die Realität dreidimensional ist, reicht für eine hinreichend genaue Beschreibung oft schon ein zweidimensionales Gitter. Zur Vereinfachung führt auch die Beschränkung der Modellierung auf einen kleinen Ausschnitt der Realität, indem von diesem Ausschnitt ausgehend die Berechnungen auf die Gesamtheit hochskaliert werden, ohne dabei zu sehr an Genauigkeit zu verlieren. Der letzte Schritt besteht aus der Validierung des Modells. Dabei werden die Berechnungen und Ergebnisse des Modells mit bekannten Versuchsergebnissen verglichen. Wird das Modell als valide angenommen, kann es als Hilfsmittel für weitere Entwicklungen verwendet werden und wird somit zur Simulation.

Ziel dieses Kapitels ist die Identifizierung der in einem katalytischen Rekombinator stattfindenden Prozesse. Katalytische Rekombinatoren befinden sich als Sicherheitskomponente innerhalb des Containments von Leichtwasserreaktoren. Ihre Aufgabe ist die Beseitigung von Wasserstoff, der während eines Störfalls entsteht. Dabei gelangt der Wasserstoff in die Umgebungsluft des Containments. Das Wasserstoff-Luft-Gemisch wird von dem Rekombinator angesaugt. Die Wasserstoff- und Sauerstoffmoleküle diffundieren zu den Katalysatorplatten und reagieren miteinander. Durch diese katalytisch unterstützte Reaktion wird Energie in Form von Wärme frei. Die Reaktionsrate wird durch die *Reaktionskinetik* bestimmt. Der größte Teil, der an der Plattenoberfläche entstandenen Wärme, wird aufgrund von *Konvektion* durch das strömende Gas abgeführt. Durch *Wärmeleitung* gelangt ein Teil der Wärme in die angrenzenden Plattenbereiche derselben Platte. *Wärmestrahlung* überträgt einen Teil der Wärme an die gegenüberliegende Platte, an das Gehäuse und in die Umgebung. Das Gas nimmt durch den Wärmeübergang Wärme auf und seine Enthalpie steigt. Der Massenstrom befördert die Enthalpie als *Enthalpiestrom*, der den Rekombinator durch den Gasaustritt wieder verlässt. Diese Vorgänge wiederholen sich solange, bis kein Wasserstoff mehr den Rekombinator erreicht. Die Größenordnung der entstandenen Wärme und deren Aufteilung in die einzelnen Prozesse wird durch eine Energiebilanz an einem Flächenstück einer katalytischen Platte und des Strömungskanals ermittelt (Abbildung 3.1).

Die wesentlichen im Modell abzubildenden Prozesse betreffen also die chemische Reaktion an der Oberfläche der Katalysatorbleche sowie die Verteilung der Reaktionswärme im Katalysatorblech, in das Reaktionsgas sowie in die umgebenden Strukturen. Das Hauptziel

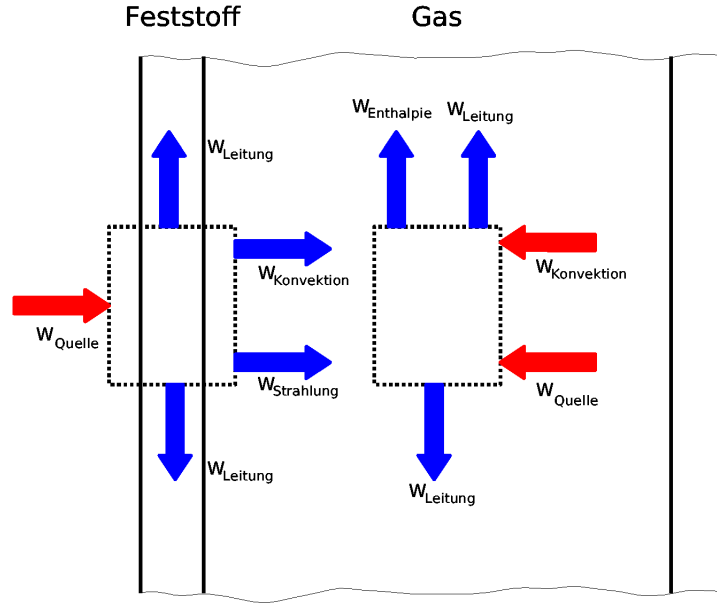


Abbildung 3.1: Energiebilanz an einem Plattenelement und einer Gaszelle

der Modellierung ist es, das Temperaturfeld des Rekombinators zu ermitteln.

3.1 Wärmeleitung

Bei der Wärmeleitung wird die Wärme durch die Wechselwirkung von Atomen und Molekülen übertragen. Dabei findet kein Transport der Atome oder Moleküle statt, sondern Wechselwirkungen zwischen energiereicheren Atomen mit deren Nachbaratomen, die den Energietransport verursachen. Ist ΔT die Temperaturdifferenz entlang eines kleinen Segments der Länge Δx und ΔQ die Wärmemenge die durch dieses Segment innerhalb der Zeit Δt geleitet wird, dann ist das Verhältnis von $\Delta Q/\Delta t$ der Wärmestrom $\dot{Q}$. Der Wärmestrom ist proportional zum Temperaturgradient und zur Querschnittsfläche und wird durch das Fourier'sche Gesetz beschrieben [RENN 03]. Das Fourier'sche Gesetz ist eine gerichtete Größe und der Wärmestrom somit ein Vektor. Die allgemeine Gleichung für den Wärmestrom lautet:

$$\vec{q}'' = -\lambda \vec{\nabla} T = -\lambda \left(\vec{i} \frac{\partial T}{\partial x} + \vec{j} \frac{\partial T}{\partial y} + \vec{k} \frac{\partial T}{\partial z} \right) \quad (3.1)$$

mit der Wärmeleitfähigkeit λ [$W m^{-1} K^{-1}$].

Ist die Temperaturverteilung bekannt, kann der Wärmestrom an jedem Punkt im Medium oder auf der Oberfläche durch das Fourier'sche Gesetz berechnet werden. Zuerst wird ein infinitesimal kleines Volumenelement $dx \cdot dy \cdot dz$ betrachtet und für einen sehr kleinen Zeitraum formuliert. Anschließend werden die für das Volumenelement relevanten Energieprozesse betrachtet. Gibt es Temperaturgradienten, dann gibt es Wärmeübertragung

durch Wärmeleitung auf jeder Volumenoberfläche.

Aufgrund der einfachen Geometrie eines Plattenrekombinators lässt sich die partielle Differentialgleichung zu einer gewöhnlichen Differentialgleichung, für die eine exakte Lösung existiert, reduzieren. Dabei wird die Wärmeleitung stationär und eindimensional betrachtet und die Wärmeleitfähigkeit λ als konstant angenommen. Das Resultat der Vereinfachungen ist die folgende gewöhnliche Differentialgleichung zweiter Ordnung:

$$\frac{d^2T}{dx^2} = 0 \quad (3.2)$$

Die exakte Lösung dieser Gleichung lautet:

$$T(x) = Ax + B \quad (3.3)$$

Mit den Randbedingungen $T(x=0) = T_1$ und $T(x=s) = T_2$ ergibt sich die Lösung

$$T(x) = \frac{T_2 - T_1}{s}x + T_1 \quad (3.4)$$

Mit Hilfe des Fourier'schen Gesetzes kann der Wärmestrom berechnet werden:

$$\dot{Q} = -\lambda A \frac{T_1 - T_2}{s} \quad (3.5)$$

3.2 Wärmestrahlung

Wärmestrahlung ist Energie, die von Körpern mit endlicher Temperatur in Form von elektromagnetischen Wellen ausgesendet wird. Der Energiefluss pro Flächeneinheit wird durch die Strahlungsenergie bestimmt. Die Obergrenze der Strahlungsenergie wird durch das Stefan-Boltzmann-Gesetz beschrieben. Für schwarze Körper, die alle ankommende Strahlung absorbieren, gilt [PLAN 59]:

$$\dot{q}_s'' = \sigma T^4 \quad (3.6)$$

mit $\sigma = 5,669 \cdot 10^{-8} W m^{-2} K^{-4}$ als Stefan-Boltzmann-Konstante.

Beim Strahlungsaustausch zwischen technischen Oberflächen muss die Abweichung von den Emissionseigenschaften des idealen schwarzen Körpers durch einen Korrekturfaktor berücksichtigt werden. Ausserdem muss berücksichtigt werden, dass die von einem Körper ausgesandte Strahlung aufgrund der gegenseitigen Anordnung nicht vollständig auf dem anderen Körper auftrifft.

$$\dot{q}_\varepsilon'' = \varepsilon \sigma T^4 \quad (3.7)$$

Der Emissionsgrad ε ist das Verhältnis der von einem Körper emittierten Strahlung, bezogen auf die eines schwarzen Körpers gleicher Temperatur.

$$\varepsilon = \frac{\dot{q}_\varepsilon''}{\dot{q}_s''} \quad (3.8)$$

Ein Hauptproblem beim Strahlungsaustausch zwischen nicht-schwarzen Oberflächen ist die Reflexion. Wärmestrahlung erfährt an sämtlichen Oberflächen Reflexion mit teilweiser Absorption. Um eine Berechnung der Wärmestrahlung durchführen zu können, müssen eine Reihe von Annahmen getroffen werden:

- Jedes Flächenstück wird durch eine gleichmäßige Abstrahlungsstärke (Radiosität) und Einstrahlung charakterisiert.
- Jedes Flächenstück ist lichtundurchlässig und hat die Eigenschaften eines grauen Körpers.
- Das Gas zwischen den Flächen nimmt keine Strahlung auf oder gibt sie ab.

Bezogen auf einen Rekombinator ist die Problemstellung, die Berechnung des Nettostrahlungsaustauschs $\dot{Q}_i$ zwischen den Platten, wenn deren Temperaturen bekannt sind. Der Term $\dot{Q}_i$ ist der Nettowärmestrom mit der die Strahlung die Oberfläche i verlässt. Sie gibt den Nettoeffekt des Strahlungsaustauschs, der an einer Oberfläche stattfindet, wieder (Abbildung 3.2).

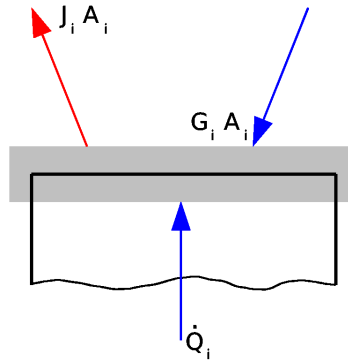


Abbildung 3.2: Die Strahlungsnettorate einer Oberfläche

Für den Strahlungsaustausch zwischen zwei strahlungsundurchlässigen unendlich ausgedehnten parallelen Platten ist der Term $\dot{Q}_1$ der Nettowärmestrom, mit dem die Strahlung die Oberfläche 1 und $\dot{Q}_2$ der Wärmestrom, mit dem die Strahlung die Oberfläche 2 (Abbildung 3.3), verlässt. Diese Energie müsste zur Oberfläche übertragen werden, um sie bei konstanter Temperatur zu halten. Sie ist gleich der Differenz zwischen der Radiosität J_i und der Einstrahlung G_i :

$$\dot{Q}_i = A_i (J_i - G_i) \quad (3.9)$$

Die Abbildung 3.4 zeigt die Definition der Radiosität einer Oberfläche. Sie ist die Summe der Wärmestromdichte E_i und dem Produkt aus Reflexionsvermögen ρ_i und der Einstrahlung G_i .

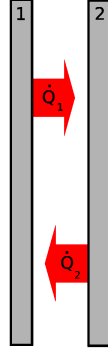


Abbildung 3.3: Strahlungsaustausch zwischen zwei Platten

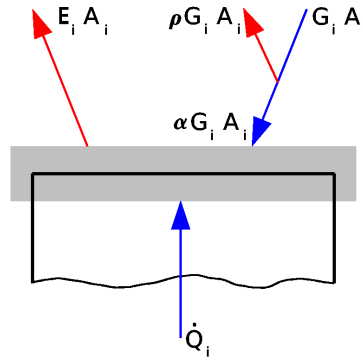


Abbildung 3.4: Die Radiosität einer Oberfläche

$$J_i = E_i + \rho_i G_i \quad (3.10)$$

mit E_i als Wärmestromdichte [$W m^{-2}$] und ρ_i dem Reflexionsvermögen $[-]$. Damit berechnet sich der Nettowärmestrom aus der Wärmestromdichte und der absorbierten Einstrahlung:

$$\dot{Q}_i = A_i (E_i - \alpha_i G_i) \quad (3.11)$$

Unter Berücksichtigung von $\rho_i + \alpha_i = 1$ und $\alpha_i = \varepsilon_i$ für undurchsichtige diffuse graue Oberflächen kann die Oberflächenstrahlung mit Hilfe der Wärmestromdichte für schwarze Körper $E_{s,i}$ wie folgt ausgedrückt werden:

$$J_i = \varepsilon_i E_{s,i} + (1 - \varepsilon_i) G_i \quad (3.12)$$

Daraus ergibt sich für den Nettostrahlungsaustausch:

$$\dot{Q}_i = \frac{(E_{s,i} - J_i) \varepsilon_i A_i}{1 - \varepsilon_i} \quad (3.13)$$

Um den Nettowärmestrahlungsaustausch berechnen zu können, der unter verschiedenen Winkeln auf eine Masche trifft, wird die Einstrahlzahl F eingeführt. Die Einstrahlzahl für den Strahlungsaustausch zweier Oberflächen ist definiert als der Anteil der Strahlung von der ersten Oberfläche, der auf die zweite Oberfläche einfällt [BROC 97]. Für zwei parallele Platten, die durch eine senkrecht verlaufende Mittellinie verbunden ist, gilt nach [INCR 02] (Abbildung 3.5):

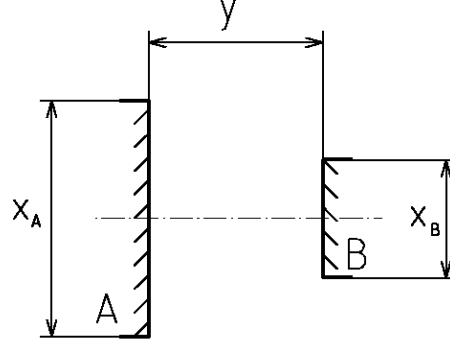


Abbildung 3.5: Einstrahlzahl

$$F_{A-B} = \frac{\left[\left(\frac{x_A}{y} + \frac{x_B}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}} - \left[\left(\frac{x_B}{y} - \frac{x_A}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}}}{2 \frac{x_A}{y}} \quad (3.14)$$

Der Index $A-B$ bedeutet, dass die Einstrahlzahl den Wärmestrahlungsstrom von Element A nach Element B beschreibt. Enthält der Index der Einstrahlzahl nur einen Zahlenwert $1, 2, \dots, n$, so beschreibt dieser die Einstrahlzahl für den Wärmestrahlungsstrom von einem Element auf $1, 2, \dots, n$ Elemente gleicher Größe. Somit berechnet sich die Einstrahlzahl für einen Wärmestrahlungsstrom von der linken Masche 1 auf die rechte Masche 1 mit $x_{1l} = x_{1r} = x_1$ (Abbildung 3.6):

$$F_{1l-1r} = F_1 = \frac{\left[\left(\frac{x_1}{y} + \frac{x_1}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}} - \left[\left(\frac{x_1}{y} - \frac{x_1}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}}}{2 \frac{x_1}{y}} \quad (3.15)$$

Für den Wärmestrahlungsstrom von der linken Masche 1 auf die rechte Masche 2 gilt (Abbildung 3.6):

$$F_{1l-2r} = \frac{1}{2} (F_3 - F_1) \quad (3.16)$$

Dabei ist F_3 die Einstrahlzahl von einer Masche auf drei Maschen:

$$F_3 = \frac{\left[\left(\frac{x}{y} + \frac{3x}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}} - \left[\left(\frac{3x}{y} - \frac{x}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}}}{2 \frac{x}{y}} \quad (3.17)$$

Für die Einstrahlzahl von einer Masche auf n Maschen gilt:

$$F_n = \frac{\left[\left(\frac{x}{y} + \frac{nx}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}} - \left[\left(\frac{nx}{y} - \frac{x}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}}}{2 \frac{x}{y}} \quad (3.18)$$

Daraus ergibt sich allgemein für die Einstrahlzahl von Masche m auf Masche n :

$$F_{m-n} = \frac{1}{2} \left(F_{2(n-m)+1} - F_{2(n-m)-1} \right) \quad (3.19)$$

Dabei gelten die Regeln:

$$F_{m-m} = F_1 \quad (3.20)$$

$$F_{n-m} = F_{m-n} \quad (3.21)$$

Um mit Gleichung 3.13 rechnen zu können, muss die Oberflächenradiosität J_i bekannt sein. Damit dieser Wert bestimmt werden kann, ist der Strahlungsaustausch zwischen zwei Oberflächen zu betrachten. Die Einstrahlung der Oberfläche i kann aus den Radiositäten sämtlicher Oberflächen nach [SIEG 02] bestimmt werden:

$$A_i G_i = \sum_{j=1}^n F_{j-i} A_j J_j = \sum_{j=1}^n F_{i-j} A_i J_j \quad (3.22)$$

Nun lässt sich der Nettostrahlungsaustausch wie folgt berechnen:

$$\dot{Q}_i = A_i \left(J_i - \sum_{j=1}^n F_{i-j} J_j \right) \quad (3.23)$$

Mit Hilfe der Summenformel für Einstrahlzahlen $\sum_{j=1}^n F_{i-j} = 1$ ergibt sich:

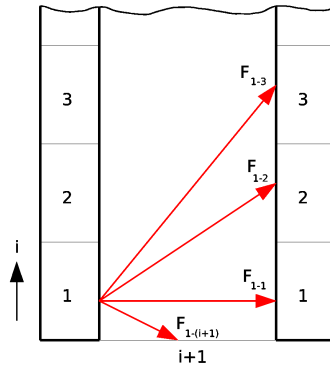


Abbildung 3.6: Einstrahlzahlen der Masche 1

$$\dot{Q}_i = A_i \left(\sum_{j=1}^n F_{i-j} J_i - \sum_{j=1}^n F_{i-j} J_j \right) = \sum_{j=1}^n A_i F_{i-j} (J_i - J_j) = \sum_{j=1}^n \dot{Q}_{ij} \quad (3.24)$$

Das Ergebnis ist der Nettostrahlungsaustausch von der Oberfläche i zu der Summe der Komponenten des Strahlungsaustauschs mit den anderen Oberflächen. Die Formeln 3.13 und 3.24 werden miteinander verknüpft zu der Berechnungsformel:

$$\frac{(E_{s,i} - J_i) \varepsilon_i A_i}{1 - \varepsilon_i} = \sum_{j=1}^n (J_i - J_j) A_i F_{i-j} \quad (3.25)$$

Mit Gleichung 3.25 können Strahlungsaustauschprobleme berechnet werden, wenn die Temperaturen aller Oberflächen bekannt sind. Das resultierende Gleichungssystem besteht aus n linearen algebraischen Gleichungen und ist für n Unbekannte Radiositäten $J_1, J_2, \dots, J_n$ zu lösen. Mit der Kenntnis von J_i kann mit Gleichung 3.13 der Nettostrahlungsaustausch $\dot{Q}_i$ zu jeder Oberfläche mit bekanntem T_i berechnet werden.

Für jede Oberfläche kann das vorhergehende Problem mit Hilfe des Eliminationsverfahrens nach Gauss gelöst werden. Für jede der n Oberflächen kann Gleichung 3.25 so umgestellt werden, dass es das folgende Gleichungssystem ergibt:

$$\begin{bmatrix} a_{11} J_1 + \dots + a_{1i} J_i + \dots + a_{1n} J_n = C_1 \\ \dots \\ a_{i1} J_1 + \dots + a_{ii} J_i + \dots + a_{in} J_n = C_i \\ \dots \\ a_{n1} J_1 + \dots + a_{ni} J_i + \dots + a_{nn} J_n = C_n \end{bmatrix}$$

3.3 Konvektion

Konvektion ist der Teil der Wärmeübertragung, bei dem die Wärme vom Feststoff an das strömende Gas bzw. vom strömenden Gas an den Feststoff übertragen wird. Sie wird bestimmt durch die Grenzschicht, die Schicht zwischen Gas und Feststoff, in der sich die physikalischen Parameter von denen des Feststoffs und dem Gas unterscheiden. Die wesentlichen Parameter sind die Temperatur und die Zusammensetzung der Stoffe sowie die Strömungsgeschwindigkeit. Jeder dieser Parameter bildet eine eigene Grenzschicht. Während in dem Feststoff eine reine Wärmeleitung mit linearem Temperaturverlauf stattfindet, verläuft der Wärmetransport im Gas innerhalb einer thermischen Grenzschicht. Bedingt durch die lokale Strömungsgeschwindigkeit, die direkt an der Wand gleich Null sein muss, liegt in Wandnähe zunächst ebenfalls eine Wärmeleitung im Fluid vor, die kontinuierlich durch Mischungsvorgänge überlagert wird, sodass der lineare Temperaturverlauf in Wandnähe in einen nichtlinearen Verlauf übergeht, und zwar unabhängig davon, in welcher Richtung die Wärme strömt.

Die Bewegung eines Fluids, in dem Geschwindigkeits-, Temperatur- und Konzentrationsgradienten nebeneinander existieren, muss mehreren fundamentalen Naturgesetzen entsprechen. An jedem Punkt im Fluid gelten Massen-, Energie- und Stoffmengenerhaltung

sowie das zweite Newton'sche Gesetz der Bewegung. Wird dieses Gesetz auf ein Kontrollvolumen innerhalb eines strömenden Mediums angewendet, muss die Nettorate der Masse, die in das Kontrollvolumen einströmt und die das Kontrollvolumen verlässt, gleich null sein. Die Kontinuitätsgleichung für konstante Dichte und Inkompressibilität des Medium ist die partielle Differentialgleichung [SCHL 79]:

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} = 0 \quad (3.26)$$

mit $\partial v_i / \partial i$ als den Geschwindigkeitsgradienten der Masseteilchen. Das zweite Newton'sche Gesetz der Bewegung, angewendet auf ein strömendes Fluid, besagt, dass die Summe aller Kräfte, die auf das Kontrollvolumen wirken, gleich der Nettorate des Impulses sein muss. Es wirken zwei Arten von Kräften in einem Fluid: Volumenkräfte, die proportional zum Volumen sind und Oberflächenkräfte, die proportional zur Fläche sind. Gewichtskräfte, Zentrifugalkräfte, magnetische und elektrische Kräfte zählen zu der gesamten Volumenkraft. Die Oberflächenkräfte werden durch den statischen Druck des Mediums und durch die Beanspruchung aufgrund der Viskosität des Mediums hervorgerufen. Die Kräftebilanz, angewendet auf ein inkompressibles Medium, führt zu den folgenden Differentialgleichungen [SCHL 79]:

$$\rho \left(v_x \frac{\partial v_x}{\partial x} + v_y \frac{\partial v_x}{\partial y} \right) = -\frac{\partial p}{\partial x} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \right) + F_x \quad (3.27)$$

$$\rho \left(v_x \frac{\partial v_y}{\partial x} + v_y \frac{\partial v_y}{\partial y} \right) = -\frac{\partial p}{\partial y} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_y}{\partial y^2} \right) + F_y \quad (3.28)$$

mit v_x und v_y als den Geschwindigkeitskomponenten [$m s^{-1}$] der Massenteilchen, ρ als Dichte des Mediums [$kg m^{-3}$], η als Viskosität des Mediums [$kg s^{-1} m^{-1}$] und F_x und F_y als gesamte Volumenkraftkomponenten auf ein Volumenelement [$N m^{-3}$]. Um das Gesetz der Energieerhaltung auf ein Kontrollvolumen, in dem ein viskoses Fluid mit Wärmeübertragung strömt, anzuwenden, sind erst die auftretenden Prozesse zu beschreiben. Die potentielle Energie wird als von den Volumenkräften verrichtete Arbeit behandelt. Die Wärmeenergie und die kinetische Energie wird mit dem strömenden Fluid übertragen, das in das Kontrollvolumen eintritt. Die gesamte Energiebilanz, die auch molekulare Prozesse berücksichtigt, führt zu der partiellen Differentialgleichung [SCHL 79]:

$$\rho c_p \left(v_x \frac{\partial T}{\partial x} + v_y \frac{\partial T}{\partial y} \right) = \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial y} \right) + \left(v_x \frac{\partial p}{\partial x} + v_y \frac{\partial p}{\partial y} \right) + \mu \Phi + \dot{q} \quad (3.29)$$

mit c_p als spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck [$J kg^{-1} K^{-1}$], $\partial T / \partial i$ als Temperaturgradient, λ als Wärmeleitfähigkeit [$W m^{-1} K^{-1}$], p als Druck im Medium [Pa] und Φ als viskose Dissipationsfunktion [s^{-2}]. Besteht das strömende Medium aus einem binären Gemisch, bilden sich Stoffmengengradienten im Fluid aus. Die Erhaltung der Stoffmenge muss in jedem Punkt gewährleistet sein. In einem Kontrollvolumen werden neben Oberflächenreaktionen und Diffusion auch die chemischen Reaktionen betrachtet und bilanziert. Die Aufstellung der Stoffmengenbilanz führt zu der folgenden partiellen Differentialgleichung [SCHL 79]:

$$v_x \frac{\partial c_A}{\partial x} + v_y \frac{\partial c_A}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{AB} \frac{\partial c_A}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_{AB} \frac{\partial c_A}{\partial y} \right) + \dot{n}_A \quad (3.30)$$

mit $\partial c_A / \partial i$ als Stoffmengengradient, D_{AB} binärer Diffusionskoeffizient [$m^2 s^{-1}$] und $\dot{n}_A$ als Stoffmengenrate [$mol s^{-1} m^{-3}$]. Durch Kombination der vier Bilanzgleichungen (Gleichungen 3.26 bis 3.30) kann die Konvektion innerhalb eines Rekombinators berechnet werden. Da für dieses allgemeine System aus partiellen Differentialgleichungen keine exakten Lösungen existieren und auch nicht alle auftretenden Größen bestimmt oder nur hinreichend genau abgeschätzt werden können, ist ein zweiter Lösungsansatz zu verfolgen. Aufgrund vieler in der Vergangenheit durchgeführter Experimente verfügt die Literatur über eine Vielzahl empirisch ermittelter Zusammenhänge. Da der Aufbau eines Plattenrekombinators mit seinen rechteckigen Strömungskanälen sehr einfach ist, kann auf diese empirischen Ansätze mit einem hohen Maß an Genauigkeit zurückgegriffen werden. Hat ein Körper die Temperatur T_1 , der an eine Umgebung mit der Temperatur T_2 grenzt, so geht von ihm ein Wärmestrom

$$\dot{q}_K'' = \alpha (T_1 - T_2) \quad (3.31)$$

mit α als Wärmeübergangszahl [$W m^{-2} K^{-1}$], an die Umgebung über.

Aufgrund der Zähigkeit realer Fluide entstehen an überströmten Oberflächen Reibungs- oder Schubspannungen. Betrachtet man die Strömung zwischen zwei Platten, so treten infolge der Zähigkeit Geschwindigkeitsunterschiede senkrecht zur Wand auf. Das Gas wird abgebremst, bis es an der Platte zur Ruhe kommt. Zähigkeitsbedingt lässt sich in einer zur Wand parallelen Ebene eine Schubspannung τ mit dem Newton'schen Schubspannungsansatz berechnen:

$$\tau = \eta \frac{dv}{dy} = \nu \rho \frac{dv}{dy} \quad (3.32)$$

mit η als dynamische Zähigkeit oder Viskosität [$Pa s$] und ν als kinematische Zähigkeit [$m^2 s^{-1}$] und ρ als Gasdichte [$kg m^{-3}$]. η ist ein Stoffwert, der von der Zusammensetzung und dem thermodynamischen Zustand des Fluids, nicht aber von seiner Bewegung abhängt.

Von Reynolds [REYN 83] wurde gezeigt, dass zwei grundsätzlich verschiedene Strömungsformen existieren: eine laminare und eine turbulente. Bei der laminaren Strömung laufen die einzelnen Stromlinien geordnet nebeneinander her. Bei der turbulenten Strömung sind die einzelnen Stromlinien in unregelmäßiger Weise miteinander verflochten. Dieser Vermischungsvorgang, der vor allem quer zur Strömungsrichtung erfolgt, erhöht den Reibungswiderstand und den Wärmeaustausch turbulent umströmter Platten gegenüber der laminaren Strömung ganz wesentlich. Reynolds stellte fest, dass eine laminare Strömung bei einem bestimmten kritischen Wert

$$Re = \frac{v \cdot d_h}{\nu} = \frac{4 \cdot A \cdot v \cdot \rho}{U \cdot \eta} \quad (3.33)$$

in den turbulenten Strömungszustand umschlägt. Mit $d_h = \frac{4 \cdot A}{U}$ als hydraulischen Durchmesser [m] (A : Strömungsquerschnitt, U : Umfang des Strömungskanals). Eine Abschätzung der Reynolds-Zahl gibt Aufschluss über die Strömung innerhalb eines Rekombinators:

$$Re = \frac{v \cdot d_h \cdot \rho}{\eta} = \frac{0,8 \text{ m s}^{-1} \cdot 0,016 \text{ m} \cdot 1 \text{ kg m}^{-3}}{2 \cdot 10^{-5} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}} = 1280 \quad (3.34)$$

Die Reynolds-Zahl liegt unterhalb der kritischen Reynolds-Zahl ($Re_{krit} \approx 2300 \dots 10^5$), und die Strömung innerhalb eines Rekombinators kann somit als laminar angenommen werden.

Werden die Erhaltungsgleichungen in die dimensionslose Form gebracht, so ergeben sich die relevanten Kennzahlen für den Wärmeübergang bei Zwangskonvektion. Die Prandtl-Zahl ist das Verhältnis von kinematischer Zähigkeit und Temperaturleitfähigkeit:

$$Pr = \frac{\nu}{a} = \frac{\eta \cdot c_p}{\lambda} \quad (3.35)$$

und ist als das Verhältnis von diffusivem Impuls- zu diffusivem Wärmetransport in reibungsbehafteten Fluiden zu verstehen [POLI 05]. Für den betrachteten Fall wird die Bewegungsgleichung durch die Größe der Reynolds-Zahl, die Energiegleichung durch das Produkt $Re \cdot Pr$ und die Stofftransportgleichung durch das Produkt $Re \cdot Sc$ in deren Lösungen bestimmt.

Aufgrund der Zähigkeit des Fluids kommt der konvektive Transport an der Wand zum Erliegen. Folglich muss direkt an der Platte gelten, dass

$$\dot{q}_{Wand}'' = -\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \quad (3.36)$$

ist. Trotzdem reicht es nicht aus, dieses Ergebnis mit Gleichung 3.31 zu verbinden, um den Wärmeübergangskoeffizienten zu bestimmen, nur indem die Wärmeleitung im Fluid berücksichtigt wird. Denn schon in geringem Abstand von der Wand ist die Geschwindigkeit des Fluids von Null verschieden und deshalb wird das Temperaturprofil, das sich an der Wand einstellt, wesentlich vom konvektiven Wärmetransport beeinflusst. Der Wärmeübergangskoeffizient α hängt von der Dicke δ der Grenzschicht ab [POLI 05]:

$$\alpha \sim \frac{\lambda}{\delta} \quad (3.37)$$

Der Wärmeübergangskoeffizient lässt sich immer noch nicht berechnen, da die Grenzschichtdicke nicht unmittelbar bekannt ist, sondern durch Analyse der reibungsbehafteten Strömung in Wandnähe bestimmt werden muss. Dies ist jedoch nicht trivial, da die Verteilung der Geschwindigkeit in der Grenzschicht unter dem Einfluss von Trägheit und Reibung bestimmt werden muss. Außerdem ist das Problem des konduktiv-konvektiven Wärmetransportes zu lösen. Doch kann der konvektive Wärmeübergang mit Hilfe einer ingenieurmäßigen Methode hinreichend genau berechnet werden. Dieser Lösungsansatz basiert auf der nach Wilhelm Nußelt benannten Kennzahl Nu , definiert als ein dimensionsloser Wärmeübergangskoeffizient:

$$Nu = \frac{\alpha \cdot L}{\lambda} \quad (3.38)$$

mit L als charakteristischer Länge $[m]$. Die charakteristische Länge entspricht der Ausdehnung der überströmten Fläche. Die Nußelt-Zahl kann für die Geometrie des Plattenrekombinators mittels Korrelationen bestimmt werden. Für Zwangskonvektion gilt nach [VDI 97]:

$$Nu = f(Re, Pr) \quad (3.39)$$

Die Nußelt-Zahl ist abhängig von den dimensionslosen Kennzahlen von Reynolds und Prandtl, da der Wärmeübergang bei Zwangskonvektion vollständig durch die beiden Kennzahlen charakterisiert wird. Die Abhängigkeit der Nußelt-Zahl ist von der Form [VDI 97]:

$$Nu = K Re^a Pr^b \quad (3.40)$$

Zur Bestimmung der Konstante K und den Parametern a und b sind drei Bereiche zu berücksichtigen:

1. Die Strömung ist hydrodynamisch und thermisch ausgebildet,
2. es herrscht thermischer Anlauf mit hydrodynamisch ausgebildeter Strömung
3. und es herrscht hydrodynamischer und thermischer Anlauf.

Für jeden dieser drei Fälle existiert eine mathematische Rechenmethode zur Bestimmung der Nußelt-Zahl. Die allgemeinen Formen der Nußelt-Beziehungen für laminare Strömung lauten:

$$Nu_1 = K_1 \quad (3.41)$$

$$Nu_2 = K_2 \left(Re Pr \frac{d_h}{L} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.42)$$

$$Nu_3 = K_3 \left(Re \frac{d_h}{L} \right)^{\frac{1}{2}} Pr^{\frac{1}{3}} \quad (3.43)$$

Die für den jeweiligen Bereich gültigen Konstanten K_1 , K_2 und K_3 sind sowohl vom betrachteten Geometriefall als auch von den Randbedingungen „konstante Wandtemperatur“ oder „konstante Wärmestromdichte“ abhängig.

Zur Berechnung der Nußelt-Zahl Nu wird der größte Wert aus den drei Nußelt-Zahlen Nu_1 , Nu_2 und Nu_3 gebildet und verwendet. Mit Hilfe Nu kann der Wärmeübergangskoeffizient α bestimmt werden:

$$\alpha = Nu \frac{\lambda}{d_h} \quad (3.44)$$

3.4 Enthalpiestrom

Wenn die Temperatur des Fluids steigt, dann nimmt auch seine Enthalpie zu. Das Verhältnis zwischen beiden Zunahmen hängt von den genauen Bedingungen des Prozesses ab. Die Bedingung mit der größten praktischen Bedeutung ist der konstante Druck. Beim Auftragen der Enthalpie gegen die Temperatur erhält man dann eine Kurve, deren Steigung die Wärmekapazität bei konstanten Druck C_p ist:

$$C_p = \left(\frac{\partial H}{\partial T} \right)_p \quad (3.45)$$

Diese Gleichung ist die Bestimmungsgleichung für die Temperaturerhöhung infolge einer Enthalpieänderung.

Der Massenstrom $\dot{m}$ transportiert entsprechend seiner spezifischen Wärme und seiner Temperatur Enthalpie. Diese konvektiven Enthalpieströme können an jeder Position entlang eines Spaltes x durch Integration $\int_A dA$ über die Querschnittsfläche des Spaltes bestimmt werden:

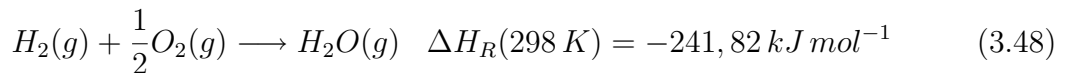
$$\dot{H}(x) = \int_A \rho \cdot H \cdot x \, dA = \dot{m}(x) \cdot c_p \cdot T_m(x) \quad (3.46)$$

mit $\dot{m}$ als Massestrom [$kg \, s^{-1}$] und c_p als spezifische Wärmekapazität des Fluids bei konstantem Druck [$J \, kg^{-1} \, K^{-1}$]. Die adiabate Mischtemperatur $T_m(x)$ ist eine über den Spaltquerschnitt energetisch gemittelte Temperatur. Werden nun zwei Punkte des Systems betrachtet, kann die Enthalpiestromdifferenz nach folgender Methode berechnet werden:

$$\Delta \dot{H} = \dot{m} \cdot c_p \cdot (T_1 - T_2) \quad (3.47)$$

3.5 Reaktionskinetik

Die Wasserstoffrekombination ist eine Reaktion mit einer hohen Aktivierungsenergie. Es führen bei normalen Temperaturen nur sehr wenige Stöße zwischen Wasserstoff- und Sauerstoffmolekülen zur Reaktion. Der Katalysator auf den Rekombinatorplatten verringert die Aktivierungsenergie der Reaktion, indem er einen alternativen Reaktionsweg eröffnet. Die Reaktionsgleichung lautet:



mit ΔH_R als Standardreaktionsenthalpie. Es ist die Enthalpie der Umwandlung von Ausgangsstoffen im Standardzustand in Produkte im Standardzustand [ATKI 01]. Dieser Standardwert bezieht sich auf die vollständige Umsetzung von $1 \, mol \, H_2$ mit $0,5 \, mol$ Sauerstoff unter Bildung von $1 \, mol \, H_2O$ bei $0,1 \, MPa$ ($1 \, bar$). Mit Hilfe der Standardreaktionsenthalpie und der Reaktionsrate lässt sich die Reaktionsenergie berechnen:

$$\dot{Q}_R = \dot{r} \Delta H_R \quad (3.49)$$

mit $\dot{r}$ als Reaktionsrate [mol s^{-1}] und $\Delta H_R = 241,82 \text{ kJ mol}^{-1}$.

Beim Stoffübergang werden eine oder mehrere Komponenten eines Gemisches fluider oder fester Stoffe innerhalb einer Phase oder über Phasengrenzflächen hinweg transportiert. In einem Rekombinator erfolgt der Stofftransport, indem in Luft befindliche Wasserstoffmoleküle sich zur Katalysatoroberfläche hinbewegen, diese sich mit dem Luftsauerstoff zu Wasserdampf verbinden und sich der Wasserdampf wieder mit der Luft vermischt (Diffusion, Adsorption, Desorption). Jeder dieser Prozesse läuft mit einer unterschiedlichen Geschwindigkeit ab. Unter den gegebenen Bedingungen verläuft die Wasserstoffrekombination an den Katalysatorblechen diffusionskontrolliert [REIN 99]. Das heißt, die Diffusion ist der langsamste Mechanismus und ist somit der die Reaktionsgeschwindigkeit bestimmende Schritt. In einem Wasserstoffrekombinator sind die Stofftransportvorgänge in der Grenzschicht erheblich langsamer als die Prozesse an der Oberfläche. Damit geht eine nur geringe Abhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit von der Oberflächen- bzw. Gastemperatur einher, und die wesentlichen Einflussgrößen auf die Reaktionsgeschwindigkeit sind der Partialdruck der begrenzenden Eduktkomponenten sowie die Reynolds- und Schmidt-Zahl. Die Modellierung der Reaktionskinetik basiert nicht auf einem ansonsten für chemische Reaktionen üblichen Arrhenius-Ansatz, sondern auf einem Stofftransportansatz.

Leitung und Konvektion bei der Wärmeübertragung entsprechen Diffusion und Konvektion beim Stofftransport. Die Analogien zur Wärmeleitung und zum Wärmeübergang sind im Fall des Stoff- bzw. Wärmeüberganges sehr ausgeprägt, während beim diffusiven Stofftransport Phänomene auftreten können, die bei der thermischen Diffusion keine Entsprechung finden. Die Beschreibung der Stoffdiffusion in strömenden Medien mit Überlagerung von Diffusion und Konvektion ist nicht trivial, da der Mechanismus der Diffusion von Gasen äußerst kompliziert ist, denn es müssen wiederum global Stoffbilanzen berücksichtigt werden und allgemeine Theorien sind nicht verfügbar. In der Literatur gibt es Berechnungsmethoden, die nur in begrenzten Druck- und Temperaturintervallen funktionieren [SKEL 74], [RIED 66]. Resultierende Beziehungen für den Diffusionskoeffizient eines binären Gemisches werden aus [VDI 97] entnommen:

$$D_{i,j} = \frac{\frac{T^{1,75}}{10^7} \sqrt{\frac{M_i + M_j}{M_i M_j}}}{\frac{p}{1,013} \left[(\sum \nu_i)^{\frac{1}{3}} + (\sum \nu_j)^{\frac{1}{3}} \right]^2} \quad (3.50)$$

Die Diffusionsvolumina für die einzelnen Gase sind: $\nu_{H_2} = 7,07$, $\nu_{O_2} = 16,6$, $\nu_{N_2} = 17,9$ und $\nu_{H_2O} = 12,7$. Für die Berechnung des Diffusionskoeffizienten für Mehrkomponentengemische gilt nach [KOST 87]:

$$D_{im} = \frac{1 - y_i}{\sum_{j \neq i} \frac{y_j}{D_{ij}}} \quad (3.51)$$

Die Schmidt-Zahl beschreibt das Verhältnis zwischen Impuls-Transport durch Diffusion von Wirbelstärke zu Spezies-Transport durch Diffusion:

$$Sc_i = \frac{\nu}{D_{im}} \quad (3.52)$$

Wegen des analogen Aufbaus der Gleichung für den Impulsaustausch (Newton), für die Wärmeleitung (Fourier) und für die Stoffdiffusion (Fick) haben die Erhaltungsgleichungen bei gleichen Randbedingungen ähnliche Lösungen. Deswegen können die empirischen Gleichungen der Wärmeübertragung für die Stoffübertragung übernommen werden. Der Vergleich mit Gleichung 3.35 zeigt, dass die Schmidt-Zahl die der Prandtl-Zahl aus der Wärmeübertragung entsprechende Kennzahl ist. Die Schmidt-Zahl wird zur Bestimmung der Sherwood-Zahl benötigt.

Der konvektive Stoffübergang kann weitgehend in Analogie zum Wärmeübergang beschrieben werden. In Anlehnung an den Wärmeübergang existiert ein Stoffübergangskoeffizient β , der über die Beziehung (siehe 3.31):

$$\dot{r} = \beta (c_1 - c_2) \quad (3.53)$$

mit c_1 der Konzentration an der Platte und c_2 der Konzentration im Gas und $\dot{r}$ als Reaktionsrate definiert ist. Aus dem ersten Fick'schen Gesetz ergibt sich, dass der Stoffübergangskoeffizient β aus dem Gradienten der Konzentration an der Platte zu ermitteln ist:

$$\beta = \frac{-D_{im} \cdot \frac{\partial c}{\partial y}}{c_1 - c_2} \quad (3.54)$$

Der daraus abgeleitete dimensionslose Konzentrationsgradient an der Platte wird als Sherwood-Zahl bezeichnet. Sie ist das Pendant zur Nußelt-Zahl aus der Wärmeübertragung:

$$Sh = \frac{\beta \cdot d_h}{D_{im}} \quad (3.55)$$

Die Sherwood-Zahl kann für die Geometrie des Plattenrekombinators analog zur Nußelt-Zahl mittels empirischer Korrelationen bestimmt werden. Für Zwangskonvektion gilt nach [VDI 97]:

$$Sh = f(Re, Sc) \quad (3.56)$$

Die Sherwood-Zahl ist abhängig von den dimensionslosen Kennzahlen von Reynolds und Schmidt. Die Abhängigkeit der Sherwood-Zahl ist von der Form [VDI 97]:

$$Sh = K \cdot Re^a \cdot Sc^b \quad (3.57)$$

Zur Bestimmung der Konstante K und den Parametern a und b sind wie bei der Berechnung der Nußelt-Zahl drei Teilbereiche zu berücksichtigen (siehe Unterkapitel 3.3). Für jeden dieser drei Fälle existiert eine Rechenvorschrift zur Bestimmung der Sherwood-Zahl. Die allgemeinen Formen lauten:

$$Sh_1 = K_1 \quad (3.58)$$

$$Sh_2 = K_2 \left(Re \cdot Sc \cdot \frac{d_h}{x} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.59)$$

$$Sh_3 = K_3 \left(Re \frac{d_h}{x} \right)^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}} \quad (3.60)$$

Analog zur Nußelt-Zahl wird der größte Wert aus Sh_1 , Sh_2 und Sh_3 gebildet und als endgültige Sherwood-Zahl Sh verwendet. Mit Hilfe von Sh lässt sich der Stoffübergangskoeffizient bestimmen:

$$\beta = \frac{Sh D_{im}}{d_h} \quad (3.61)$$

3.6 Energiebilanz

Damit die Temperaturverteilungen (Feststoff und Gas) in einem Rekombinator berechnet werden können, wird eine Energiebilanz der Wärme- und Stoffübertragungsprozesse aufgestellt. Dabei wird zwischen Feststoff und Gas unterschieden. Die Energiebilanz wird stationär berechnet. Die Prozesse der Wärme- und Stoffübertragung werden zweidimensional bilanziert, da die dritte Dimension (Rekombinatortiefe) für die Charakterisierung eines Rekombinators nicht von Bedeutung ist.

Die Energiebilanz des Gasstroms setzt sich zusammen aus der Reaktionswärme $\dot{\Phi}_{R,G}$, die als Wärmequelle betrachtet wird, der mittels Konvektion abgeführten Wärmemenge $\dot{Q}_\alpha$, die senkrecht zur Strömungsrichtung verläuft und der Wärmeleitung $\dot{Q}_\lambda$ und des Enthalpiestroms $\Delta\dot{H}$, die jeweils in Strömungsrichtung verlaufen. Die Reaktionswärme fließt nicht vollständig in die Energiebilanz des Gasstroms ein, sondern wird durch einen Vorfaktor φ zwischen Feststoff und Gas aufgeteilt (siehe Kapitel 4.6).

$$\dot{\Phi}_{R,G} + \dot{Q}_\alpha = \Delta\dot{H} + \dot{Q}_\lambda \quad (3.62)$$

$$\varphi \cdot \dot{r} \cdot \Delta H_R + \alpha \cdot A_P (T_{G,1} - T_F) = \dot{m} \cdot c_p (T_{G,1} - T_{G,2}) + A_G \cdot \lambda \cdot \frac{T_{G,1} - T_{G,2}}{\Delta x} \quad (3.63)$$

Die Gesamtenergie der Feststoffenergiebilanz besteht aus dem Anteil der katalytischen Reaktion $\dot{\Phi}_{R,F}$, der als Wärmequelle für den Feststoff zur Verfügung steht. Die Wärmeleitung $\dot{Q}_\lambda$ wird parallel zur Strömungsrichtung, der Wärmeübergang $\dot{Q}_\alpha$ senkrecht zur Strömungsrichtung betrachtet. Die Wärmestrahlung $\dot{Q}_\epsilon$ interagiert mit der gesamten gegenüberstehenden Platte und dem Gasein- und -auslass.

$$\dot{\Phi}_{R,F} = \dot{Q}_\lambda + \dot{Q}_\alpha + \dot{Q}_\epsilon \quad (3.64)$$

$$(1 - \varphi) \dot{r} \cdot \Delta H_R = A_{P,1} \lambda \cdot \frac{T_{F,1} - T_{F,2}}{\Delta x} + \alpha \cdot A_{P,2} (T_{F,1} - T_G) + \varepsilon \cdot \sigma (T_{F,1}^4 - T_{F,2}^4) \quad (3.65)$$

Die Reaktionsrate $\dot{r}$ ist eine veränderliche Größe, die in Strömungsrichtung abnimmt. Der Massenstrom $\dot{m}$, der Vorfaktor φ , die Reaktionsenthalpie ΔH_R , die Plattenquerschnittsfläche A_P , die Querschnittsfläche des Strömungskanals A_G und der Emissionskoeffizient ε werden konstant gehalten.

Die Randbedingungen für die Energiebilanz der Gasströme sind ein konstanter Wärmeübergang α_R und eine konstante Randtemperatur T_R am Gasein- und -auslass. Für die Energiebilanz des Feststoffs gelten die gleichen Bedingungen. Zusätzlich wird der Plattenrand als adiabat betrachtet, da in einem Rekombinator die zweite Plattenseite ebenfalls mit Katalysator beschichtet ist, sodass sich die gleichen Temperaturen aufgrund von Symmetrie einstellen werden.

4 Das Programm REKO-Direkt

Im vorhergehenden Kapitel wurden die wesentlichen Prozesse, die innerhalb eines Rekombinators ablaufen, benannt und beschrieben. Im Folgenden wird die Implementation der physikalischen Prozesse in einem numerischen Programm dargestellt. Dabei basiert die Umsetzung ansatzweise auf dem Programm DIREKT [STRU 88], das die Thermohydraulik von Hochtemperaturreaktoren beschreibt. Es wird auf die Wiedergabe von Computerquelltexten verzichtet, da eine Abbildung mit Hilfe von Programmablaufplänen und Struktogrammen wesentlich anschaulicher ist. Jeder Unterabschnitt des Kapitels widmet sich einer Subroutine bzw. dem Hauptprogramm der Rekombinatorsimulation.

4.1 Aufbau des Rechenmodells

Das im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstellte Simulationsprogramm REKO-Direkt simuliert und berechnet zweidimensional die relevanten Prozesse eines Rekombinators und deren Interaktionen. „REKO“ steht dabei als Abkürzung für „Rekombinator“, während sich „Direkt“ auf den Lösungsmechanismus bezieht, in dem die Gleichungsmatrix direkt und nicht iterativ berechnet wird. REKO-Direkt ist in FORTRAN 90 programmiert.

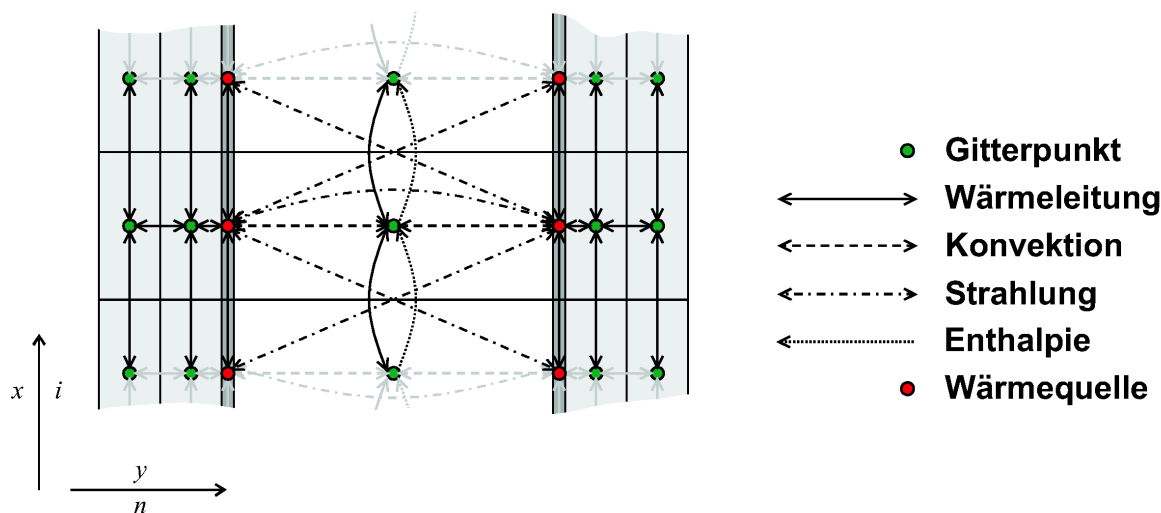


Abbildung 4.1: Der Aufbau des Modells

Das Modell betrachtet die Zustandsgleichungen in Strömungsrichtung und senkrecht zu den Platten (zweidimensional). Im Programm werden aus den Platten Plattenhälften, damit das Programm für Hochrechnungen auf bestehende Plattenrekombinatoren skalierbar bleibt. Dabei werden die Plattenhälften und der Gaskanal in kleine Segmente, den sogenannten Maschen aufgeteilt. Während jede Plattenhälfte in y -Richtung in drei

Maschen unterteilt wird, besteht der Gaskanal nur aus einer Masche, wobei die verwendeten empirischen Wärme- und Stoffübergangsgesetze als Randbedingungen auftreten. In Strömungsrichtung (x -Richtung) kann das Modell in bis zu 500 Maschen unterteilt werden. Veränderungen der Zustandsvariablen, die nicht parallel oder rechtwinklig zur Strömungsrichtung auftreten, werden nicht berechnet. Ausnahme hiervon ist die Wärmestrahlung. In Abbildung 4.1 werden diese Prozesse und deren Ausrichtung als Pfeile dargestellt. Die horizontalen Linien begrenzen eine Masche in Strömungsrichtung, während die vertikalen Linien die Breite der Maschen festlegen. Die Punkte stellen die Knoten dar, an denen die Prozesse miteinander interagieren. An diesen Punkten werden die jeweiligen Zustandsvariablen berechnet und deren Werte in Pfeilrichtung den benachbarten Knoten übergeben. Somit entsteht eine Matrix der Größe (i, n) , die an jedem Punkt mit den Werten der Zustandsvariablen belegt sind.

Die Anzahl der Maschen quer zur Strömungsrichtung ist konstant und in Strömungsrichtung frei wählbar. Die Anpassung an die geometrischen Verhältnisse wird durch entsprechende Variation der Maschenbreite erreicht.

4.2 Das Hauptprogramm

In den folgenden Kapiteln wird das Programm und deren einzelne Bausteine detailliert beschrieben. Zur besseren Veranschaulichung werden für die Erläuterungen Programmablaufpläne verwendet, die die Kenntnis der Programmiersprache FORTRAN nicht voraussetzen. Das Hauptprogramm wird als Programmablaufplan nach DIN 66001 abgebildet, die einzelnen Unterprogramme mit Nassi-Shneiderman-Diagrammen.

Im Hauptprogramm beginnt die Simulation, es koordiniert die Unterprogramme, liest die Eingabewerte ein, startet die Verarbeitung, gibt die berechneten Werte aus und beendet die Simulation. Der erste Programmschritt besteht aus dem Einlesen der Startwerte, die für jede Rechnung individuell vom Benutzer vorgegeben werden können. Vor jedem Start wird eine maximale Anzahl an möglichen Iterationen vorgegeben. Eine Iteration ist durchgeführt, wenn an sämtlichen Knotenpunkten im Rekombinatormodell eine Bilanzgleichung aufgestellt und als Bandmatrix berechnet wurde. Durch die Begrenzung der Iterationen wird das Durchlaufen einer Endlosschleife vermieden. Zur Verbesserung der Iterationen, werden sämtliche Berechnungsroutinen zu einem Fünferblock zusammengefasst, sodass die Berechnungen stets fünfmal ohne Anpassung der Zustandsgrößen hintereinander durchgeführt werden. Erst nach der fünften Iteration werden die Zustandsgrößen nachgeführt, damit divergierende Schwingungen, insbesondere hervorgerufen durch die Wärmestrahlungsroutine, in der die Temperaturen in der 4. Potenz auftreten, vermieden werden. Der Hauptteil dieses Iterationsverbesserers steckt im Unterprogramm „Reaktion“ und wird in diesem Kapitel näher erläutert. Der Programmlauf wird beendet, wenn ein Fünferblock abgearbeitet wurde, das Programm mindestens 40 Iterationen durchgeführt hat und die maximale Temperaturänderung zwischen zwei aufeinanderfolgenden Rechenläufen kleiner als eine vorher definierte zulässige Temperaturänderung (Konvergenzkriterium) ist. Es werden mindestens 40 Iterationen durchlaufen, da ab dieser Zahl gewährleistet ist, dass für alle Anfangsbedingungen das Programm ausiterieren konnte und der stationäre Zu-

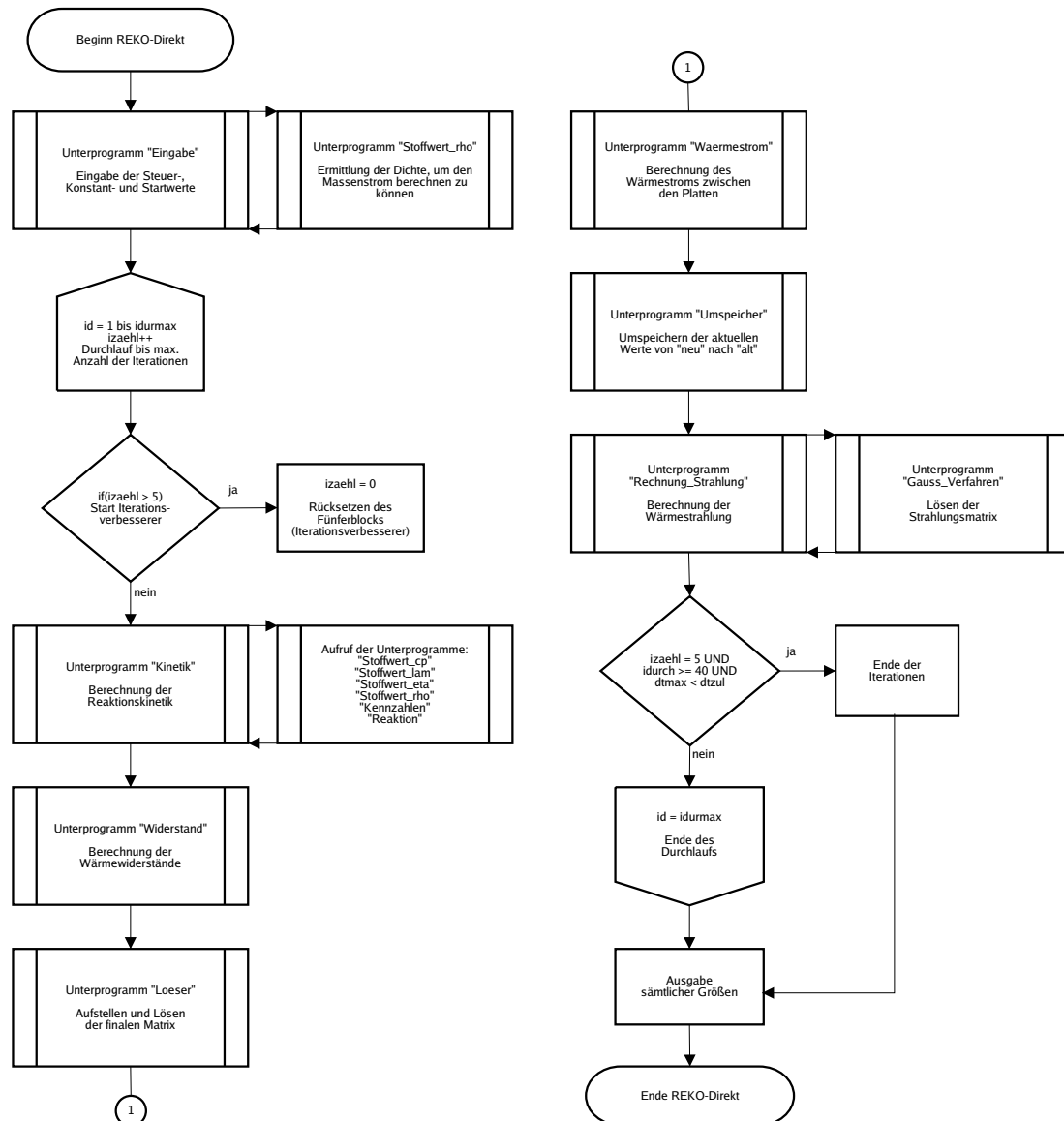


Abbildung 4.2: Programmablaufplan des Hauptprogramms „main“

stand erreicht ist.

4.3 Eingabe- und Ausgabegrößen

4.3.1 Eingabegrößen

Mit Hilfe der Eingabesteuerung können vom Benutzer beliebige Anfangsbedingungen für eine Rekombinatorsimulation vorgegeben werden. Mit der variablen Eingabemaske von REKO-Direkt können sowohl neue Geometriedesigns von Rekombinatoren untersucht werden als auch das Verhalten von Rekombinatoren bei unterschiedlichen Umgebungsbedingungen. Der erste Eingabeblock betrifft die programmtechnische Größen, wie das

Konvergenzkriterium der Temperaturrechnung und die Angabe der maximalen Iterationszahl. Der zweite Eingabeblock umfasst die Geometriegrößen. Hier wird die Maschengröße in Breite und Höhe festgelegt und die Position der katalytischen Beschichtung auf den Platten.

Zur korrekten Berechnung der verwendeten Materialien und physikalischen Eigenschaften, lassen sich eine Vielzahl an Stoffgrößen vorgeben. Je nach zu modellierendem Plattenmaterial, können Regeln für die Wärmeleitung, die Dichte, die spezifische Wärmekapazität und den Emissionskoeffizienten festgelegt werden. Auch für das Fluid können Regeln für die Wärmeleitung und die Gasdichte vergeben werden. Die Wärme- und Stoffübertragung wird über eine Regel für den Wärmeübergang von Feststoff und Fluid, die Angabe von den Konstanten für die Nusselt- und Sherwood-Zahlen und über die Angabe eines Konstantwertes für den Wärmeübergang am Ein- und Auslass bestimmt. Des Weiteren können die spezifische Wärmekapazität am Strömungseintritt, die Randtemperaturen am Ein- und Auslass und die Emissionskoeffizienten für den Ein- und Auslass vorgegeben werden. Eine weitere wichtige Eingabegröße ist die Aufteilung der durch die katalytische Reaktion freiwerdenden Wärme zwischen den Platten und dem Fluid.

Die programmtechnischen Größen sowie die Geometrie- und Stoffgrößen werden in der Regel für einen Rekombinatortyp stets konstant gehalten. Durch diese Größen werden die Eigenschaften eines Rekombinators, die Wärme- und die Stoffübertragung komplett beschrieben. Mit Hilfe des letzten Eingabeblocks können nun verschiedene Werte für die Variablen, die die Umgebungsbedingungen festlegen, vorgegeben werden. Unter diesen Anfangsbedingungen fallen die Angabe der Starttemperatur des Gases, die Anfangsgeschwindigkeit des Gases bei Zwangsdurchströmung, die Wasserstoff-, die Sauerstoff und die Wasserdampfkonzentration.

4.3.2 Ausgabegrößen

Nach der Berechnung und Simulation liefert REKO-Direkt sämtliche berechneten physikalischen Größen und Kennzahlen in sortierter Tabellenform und grafisch als Kurvenschaubild. Auf diese Weise können die Rechnungen direkt kontrolliert und betrachtet werden oder für die computergestützte Weiterverarbeitung verwendet werden. Wahlweise lassen sich zusätzlich zu den Rechengrößen die am Versuchsstand gemessenen Werte in die Schaubilder integrieren, sodass sofort eine Vergleichsmöglichkeit existiert, um die Berechnungen zu validieren. Die folgenden Größen und Variablen werden in Tabellenform und als Grafik ausgegeben:

- Temperaturfeld der zwei Rekombinatorplatten
- Temperaturfeld des Gases
- Wasserstoffkonzentration
- Strömungsgeschwindigkeit
- Dynamische Viskosität

- Wärmeleitfähigkeit
- Dichte
- Spezifische Wärmekapazität
- Reynolds-Zahl
- Prandtl-Zahl
- Nußelt-Zahl
- Wärmeübergangskoeffizient
- Diffusionskoeffizient
- Schmidt-Zahl
- Sherwood-Zahl
- Stoffübergangskoeffizient
- Reaktionsrate
- Stoffumsatz
- Gaszusammensetzung

4.4 Kinetik

Das Unterprogramm „Kinetik“ steuert die Berechnung der Stoffwerte. Es ruft dabei die Unterprogramme für die Stoffwerte spezifische Wärmekapazität, dynamische Viskosität, Wärmeleitfähigkeit und Dichte auf. Im nächsten Schritt berechnet es für jede Masche im Gaskanal die Strömungsgeschwindigkeit des Fluids. Das Unterprogramm „Kinetik“ regelt zusätzlich die Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen sowie die Kinetik der chemischen Reaktion. Der letzte Punkt ist die Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten. „Kinetik“ wird im Hauptprogramm aufgerufen.

4.5 Kennzahlen

Das Unterprogramm „Kennzahlen“ berechnet alle Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten im Gaskanal. Es wird vom Unterprogramm „Kinetik“ aufgerufen. Durch die Berechnung der Kennzahlen werden die fundamentalen Daten für die später folgende Berechnung der Wärmeströme und der Reaktion geliefert. Hieraus geht der empirische Ansatz für die Beschreibung des Wärme- und Stofftransportes hervor. Die Bestimmung der Kennzahlen beruht auf den Theoremen der Dimensionsanalyse, mit deren Hilfe Aussagen in bezug auf mögliche Parameter der Lösungen getroffen werden [GERS 92]. Bei den im folgenden berechneten Kennzahlen handelt es sich um dimensionslose Kennzahlen im Sinne der Dimensionsanalyse.

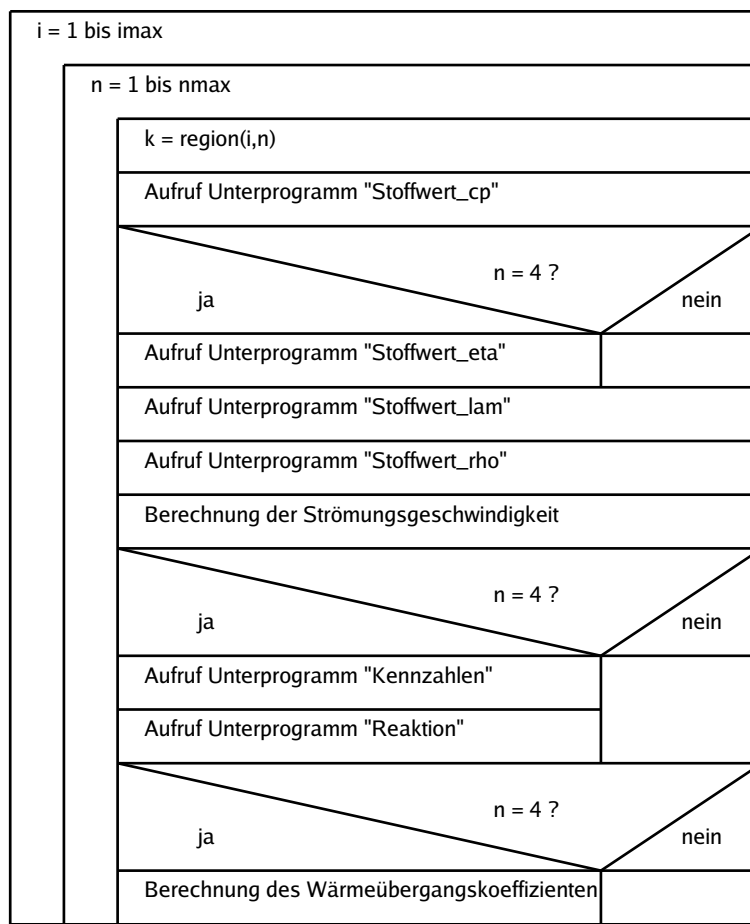


Abbildung 4.3: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Kinetik“

4.5.1 Konvektion

Bei erzwungener Konvektion ist die Ausrichtung des Strömungskanals bezogen auf die Schwerkraft beliebig, da dieser konstruktiv so dimensioniert ist, dass der Anteil der freien Konvektion gering, jedoch nicht null ist. Eine genaue Berechnung der Konvektion ist sehr aufwändig und mit dem gewählten Maschensystem nicht durchführbar. Deshalb beschränkt sich das Programm auf eine vereinfachte Rechnung der Konvektion, die stets senkrecht zur Gasströmung und immer parallel zu den einzelnen Maschen berechnet wird.

Tabelle 4.1 enthält die Konstanten für die Berechnung der Nußelt-Zahlen aus [VDI 97] für den ebenen Spalt, die für die unterschiedlichen Strömungszustände verwendet werden (siehe 3.2). Die empirischen Konstanten wurden mit Hilfe einer Qualitätsroutine aus [MATE 05] im Rahmen der Validierungsrechnungen optimiert. Mittels statistischer Fehlerrechnung wurden die Konstanten ermittelt, für die der Rechenfehler bezogen auf die Vergleichsdaten minimal ist.

Zur Berechnung der Nußelt-Zahl für erzwungene Strömung wird die Reynolds-Zahl benötigt. Sie wird im Programm wie folgt berechnet:

Berechnung der Reynolds-Zahl
Berechnung der Prandtl-Zahl
Berechnung der Nusselt-Zahl
Berechnung des Diffusionskoeffizienten
Berechnung der Schmidt-Zahl
Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten
Berechnung der Konzentrationsdifferenz

Abbildung 4.4: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Kennzahlen“

Tabelle 4.1: Nußelt-Konstanten

	theoretischer Wert	angepasster Wert
K_1	7,541	9,0492
K_2	1,227	0,8589
K_3	0,332	0,2324

$$Re = \frac{\rho \cdot v \cdot d_h}{\eta} \quad (4.1)$$

mit dem hydraulischen Durchmesser d_h , der sich wie folgt zusammensetzt:

$$d_h = \frac{4 \cdot A}{U} = \frac{4 \cdot z \cdot y}{2 \cdot z + 2 \cdot y} \quad (4.2)$$

Der hydraulische Durchmesser ist der Quotient aus dem vierfachen Strömungsquerschnitt und dem Umfang des Strömungskanals. Der Strömungsquerschnitt ist das Produkt der Kanalbreite y und der Plattentiefe z .

Die Größe der Reynolds-Zahl bestimmt den Charakter der Strömung. Bei Werten nahe null, handelt es sich um eine sogenannte schleichende Strömung, bei denen die Trägheitskräfte gegenüber den Druck- und Reibungskräften von geringer Bedeutung sind. Die kritische Reynolds-Zahl trennt die Bereiche laminarer und turbulenter Strömungen. Je nach Geometriefall und Umgebungsbedingungen erstreckt sich die kritische Reynoldszahl von 2300 bis 10.000. Ist die Reynolds-Zahl kleiner 2300, so liegt in jedem Fall eine laminare Strömung vor. Die Reynolds-Zahl wird zur Berechnung der Nußelt- und der Sherwood-

Zahl verwendet.

Eine weitere Kennzahl zur Berechnung der Nußelt-Zahl für erzwungene Strömung ist die Prandtl-Zahl, die sich aus einer Kombination von Stoffwerten zusammensetzt:

$$Pr = \frac{\eta \cdot c_p}{\lambda} \quad (4.3)$$

Mit Hilfe der angepassten Nußelt-Konstanten werden die Nußelt-Zahlen für die drei auftretenden Teilbereiche der Strömung berechnet. Nu_1 beschreibt die Lösung für eine hydrodynamisch und thermisch ausgebildete Strömung. Dieser Zustand wird im oberen Bereich des Gaskanals erreicht. Der mittleren Bereich, an dem thermischer Anlauf mit hydrodynamisch ausgebildeter Strömung herrscht, wird durch die Kennzahl Nu_2 beschrieben. Im Anfangsbereich herrscht hydrodynamischer und thermischer Anlauf, der durch Nu_3 wiedergegeben wird:

$$Nu_1 = 9,0492 \quad (4.4)$$

$$Nu_2 = 0,8589 \sqrt[3]{\frac{Re \cdot Pr \cdot d_h}{x}} \quad (4.5)$$

$$Nu_3 = 0,2324 \cdot Pr^{\frac{1}{3}} \sqrt{\frac{Re \cdot d_h}{x}} \quad (4.6)$$

An jedem Knotenpunkt im Gaskanal wird das Maximum dieser drei Nußelt-Zahlen bestimmt.

Beim Rekombinatorprüfstand überlagern sich erzwungene Strömung und freie Konvektion. Werden die Bewegungsgleichungen für freie und erzwungene Strömung in eine dimensionslose Form überführt, so wird der Auftriebsterm durch das Kennzahlenverhältnis $\frac{Gr}{Re^2}$ bestimmt [BAEH 98]. Ist es von der Größenordnung 1, so sind Auftriebs- und Trägheitskräfte etwa gleich groß. Im Falle $\frac{Gr}{Re^2} < 1$ überwiegt die erzwungene Strömung und im Falle $\frac{Gr}{Re^2} > 1$ überwiegt die freie Strömung [HERW 00].

Die Grashof-Zahl ist wie folgt definiert:

$$Gr = \frac{g \cdot \delta \cdot \Delta T \cdot L^3}{\nu^2} \quad (4.7)$$

mit g als Fallbeschleunigung [$m \cdot s^{-2}$], δ als isobarer thermischer Ausdehnungskoeffizient [K^{-1}], ΔT als charakteristische Temperaturdifferenz [K], L als charakteristische Länge [m] und ν als kinematische Viskosität [$m^2 \cdot s^{-1}$].

Für die Kenngröße über den Einfluss freier Konvektion ergibt sich im Falle des Rekombinatorprüfstandes bei $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$ ($\Delta T = 400 \text{ K}$, $\delta = 1,9 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, $L = 0,016 \text{ m}$):

$$\frac{Gr}{Re^2} = 0,19 < 1 \quad (4.8)$$

Für eine Eintrittsströmungsgeschwindigkeit $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ ($\Delta T = 310 \text{ K}$, $\delta = 2 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, $L = 0,016 \text{ m}$) ergibt sich:

$$\frac{Gr}{Re^2} = 1,56 > 1 \quad (4.9)$$

Das Verhältnis der Grashof-Zahl zum Quadrat der Reynolds-Zahl ergibt einen Wert, der im Falle einer Eintrittsströmungsgeschwindigkeit von $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$ kleiner 1 und für $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ größer 1 ist. Somit spielt die freie Konvektion bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten nur eine untergeordnete Rolle und kann vernachlässigt werden. Da ein Rekombinator im Realfall nur mit Gasgeschwindigkeiten größer $0,8 \text{ m/s}$ [KANZ 95] durchströmt wird, bleibt der Anteil der freien Konvektion auch bei niedrigeren Strömungsgeschwindigkeiten unberücksichtigt.

Im Unterprogramm „Kinetik“ wird mit Hilfe der Nußelt-Zahl der Wärmeübergangskoeffizient berechnet.

4.5.2 Wärmeübergangskoeffizient

Der Wärmeübergangskoeffizient ist die Grundlage für die Wärmeübertragung durch Konvektion. Er wird mit Hilfe der Nußelt-Zahl, der Wärmeleitfähigkeit und dem hydraulischen Durchmesser bestimmt:

$$\alpha = Nu \cdot \frac{\lambda}{d_h} \quad (4.10)$$

4.5.3 Stoffübergang

Die Analogie zwischen Wärme- und Stofftransport lässt eine ähnliche Vorgehensweise zur Berechnung der Sherwood-Zahl zu wie bei der Berechnung der Nußelt-Zahl. Tabelle 4.2 enthält die Konstanten K_1 , K_2 und K_3 für die unterschiedlichen Strömungsbedingungen (siehe Kapitel 3.2) aus [VDI 97] für den ebenen Spalt. Diese Konstanten wurden analog zur Anpassung der Nußelt-Konstanten optimiert.

Tabelle 4.2: Sherwood-Konstanten

	theoretischer Wert	angepasster Wert
K_1	7,541	7,541
K_2	1,227	1,4724
K_3	0,332	0,3984

Eine weitere Größe zur Berechnung der Sherwood-Zahl für erzwungene Strömung ist der Diffusionskoeffizient. Der Diffusionskoeffizient beschreibt den thermisch bedingten Transport von Materie eines Stoffes aufgrund der zufälligen Bewegung der Teilchen. Da sich das Gas im Strömungskanal eines Rekombinators aus mehreren Komponenten (H_2 , O_2 , N_2 ,

H_2O) zusammensetzt, ist die Berechnung des Diffusionskoeffizienten nicht trivial. Aber auch für diesen Fall existiert eine empirische Beziehung mit der sich der binäre Diffusionskoeffizient zunächst berechnen lässt [VDI 97]:

$$D_{i,j} = \frac{\frac{T^{1,75}}{10^7} \sqrt{\frac{M_i + M_j}{M_i \cdot M_j}}}{\frac{p}{1,013} \left[(\sum \nu_i)^{\frac{1}{3}} + (\sum \nu_j)^{\frac{1}{3}} \right]^2} \quad (4.11)$$

mit M als molare Masse der Gaskomponenten [$kg\ mol^{-1}$], T als Gastemperatur [K], p als Gasdruck [Pa] und ν als Diffusionsvolumen $[-]$ genannte Konstanten nach [FULL 66]. Die Indices „i“ und „j“ stehen für die Kombination der bei der Diffusion beteiligten Gase. Da sich das Gas aus 4 Komponenten zusammensetzt, können insgesamt 16 Diffusionskoeffizienten berechnet werden, wobei $D_{i,j} = D_{j,i}$ ist. Die für die Berechnung notwendigen Diffusionsvolumina der einzelnen Gase setzen sich wie folgt zusammen:

$$\begin{aligned} \nu_{H_2} &= 7,07 \\ \nu_{O_2} &= 16,6 \\ \nu_{N_2} &= 17,9 \\ \nu_{H_2O} &= 12,7 \end{aligned}$$

Mit Hilfe des binären Diffusionskoeffizienten lässt sich der Diffusionskoeffizient für Mischungen bestehend aus mehreren Komponenten berechnen [KOST 87]:

$$D_{im} = \frac{1 - y_i}{\sum_{j \neq i} \frac{y_j}{D_{ij}}} \quad (4.12)$$

mit y_i als Gaskonzentration der Komponente i $[-]$. Der Diffusionskoeffizient für Stickstoff muss nicht berechnet werden, da der Stickstoff an der Reaktion nicht beteiligt ist. Der Diffusionskoeffizient wird für die Berechnung des Stoffübergangs, insbesondere für die Schmidt-Zahl, benötigt.

Die Schmidt-Zahl, die als zweite Kennzahl zur Berechnung der Sherwood-Zahl dient, gibt das Verhältnis von konvektivem zu diffusivem Stofftransport an. Die Schmidt-Zahl ist die analoge Größe zur Prandtl-Zahl bei der Wärmeübertragung.

$$Sc_i = \frac{\eta}{\rho \cdot D_{im}} \quad (4.13)$$

Aufgrund der drei unterschiedlichen Strömungsbedingungen, die im Gaskanal vorherrschen (siehe Abschnitt zur Nußelt-Zahl), wird für jede Bedingung eine Kennzahl eingeführt:

$$Sh_1 = 7,541 \quad (4.14)$$

$$Sh_2 = 1,4724 \sqrt[3]{\frac{Re \cdot Sc \cdot d_h}{x}} \quad (4.15)$$

$$Sh_3 = 0,3984 \cdot Sc^{\frac{1}{3}} \sqrt{\frac{Re \cdot d_h}{x}} \quad (4.16)$$

Aus den oben bestimmten Sherwood-Zahlen für die drei Strömungsbedingungen ist die finale Sherwood-Zahl zu ermitteln. Während bei der Bestimmung der Nußelt-Zahl der Maximalwert zur Anwendung kommt, ergaben Vergleichsrechnungen für die Auswahl der Sherwood-Zahl eine geringfügig andere Vorgehensweise. Es wird die Sherwood-Zahl aus dem Maximum von Sh_1 und dem Maximum aus Sh_2 und Sh_3 gebildet. Die Sherwood-Zahl dient im Folgenden zur Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten.

4.5.4 Stoffübergangskoeffizient

Die Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten erfolgt ebenfalls mittels der Analogie von Wärme- und Stoffübergang. Dabei wird die Nußelt-Zahl durch die Sherwood-Zahl und die Wärmeleitfähigkeit durch den Diffusionskoeffizienten ersetzt:

$$\beta = \frac{Sh \cdot D_{im}}{d_h} \quad (4.17)$$

Der Stoffübergangskoeffizient dient zur Berechnung der Reaktionsraten der einzelnen Gas-komponenten und ist ein Hauptkriterium für den Stofftransport im Rekombinator.

4.5.5 Konzentrationsdifferenz

Die Konzentrationsdifferenz zwischen Katalysatorplatte und Gas bestimmt den Einfluss der Diffusion und wird bei der Berechnung der Reaktionsrate benötigt. Die Berechnung findet auf Grundlage des Gesetzes idealer Gase statt:

$$\Delta c_i = \frac{p}{R \cdot T} (y_{i,gas} - y_{i,wand}) \quad (4.18)$$

mit $p = 100 \text{ kPa}$ als Umgebungsdruck. Da in einem Rekombinator nahezu isobare Zustände herrschen, wird in der Gleichung der Faktor 10^5 verwendet, der den Normaldruck repräsentiert.

4.5.6 Strömungsgeschwindigkeit

Die Strömungsgeschwindigkeit ist eine fundamentale Größe bei der Berechnung eines Rekombinators. Sie dient zur Berechnung der Reynolds-Zahl und hat somit großen Anteil dem Wärme- und Stofftransport. Die Strömungsgeschwindigkeit wird durch den Massenstrom bzw. Volumenstrom und der Geometrie des Strömungskanals bestimmt:

$$v = \frac{\dot{m}}{\rho \cdot A} \quad (4.19)$$

mit A als Strömungsquerschnitt [m^2].

4.6 Reaktion und Wärmequellen

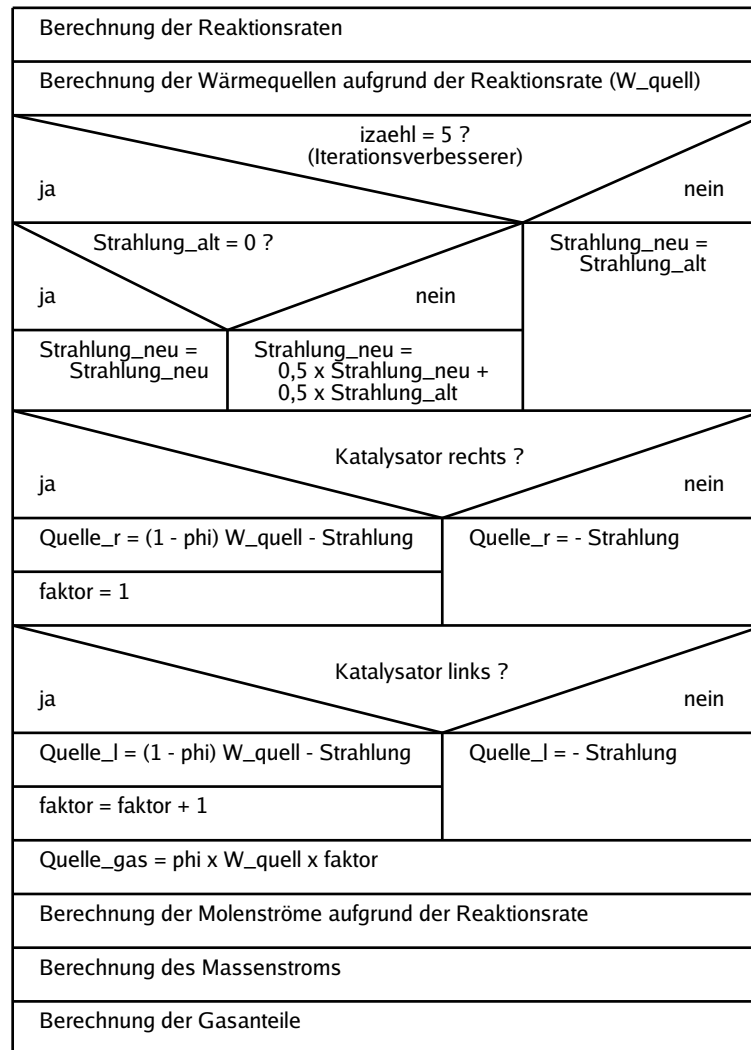


Abbildung 4.5: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Reaktion“

Das Unterprogramm „Reaktion“ berechnet die Reaktionsraten der einzelnen Gaskomponenten. Die bei der katalytischen Reaktion freiwerdende Wärme wird in Form von Wärmequellen in das Programm implementiert. Diese werden entlang der Strömungsrichtung in Maschineneinheiten aufgeteilt. Die Aufteilung der Wärmequellen kann beliebig im Modell verändert werden. Dabei wird angenommen, dass der Wasserstoff, der an die katalytische Oberfläche gelangt, vollständig umgesetzt wird.

Es werden aus der exothermen Reaktion resultierende Wärmequellen links und rechts für jede Randmasche, die auf katalytische Aktivität gesetzt ist, berechnet. Unter den gegebenen Bedingungen ist die katalytische Rekombination diffusionskontrolliert. Deshalb basiert die Reaktionskinetik auf einem Stofftransportansatz und nicht wie bei chemischen Oberflächenreaktionen üblich auf einem Arrhenius-Ansatz.

$$\dot{r}_i = \beta \cdot \Delta c_i \quad (4.20)$$

Es werden die Reaktionsrate von Wasserstoff und Sauerstoff berechnet. Der kleinere Wert (Sauerstoff wird zweifach gezählt, siehe Reaktionsgleichung 3.48) wird als maßgebliche Reaktionsrate verwendet. Mit Hilfe dieser Reaktionsrate und der Reaktionsenthalpie lässt sich die Gesamtwärmequelle berechnen:

$$W_Q = \dot{r} \cdot x \cdot z \cdot \Delta H_R \quad (4.21)$$

mit $\Delta H_R = 242 \cdot 10^3 \frac{J}{mol}$. Außerdem beinhaltet das Unterprogramm „Reaktion“ den Hauptkern des Iterationsverbesserers, der bereits in Abschnitt 4.2 angesprochen wurde, weil im folgenden die Wärmequellen mit Hilfe der Wasserstoffreaktion und der Strahlung bestimmt werden. Die ersten vier Iterationsschleifen eines Fünferblocks werden ohne Strahlung durchgeführt. Erst die fünfte Berechnung enthält den Strahlungsterm zu 100%. Die folgenden vier Rechenschritte werden mit konstanter Strahlungsleistung vollzogen. Die nächste Berechnung beinhaltet die Wärmestrahlung bestehend aus 50% der Strahlungsleistung aus der vorhergehenden Rechnung und 50% der aktuellen Rechnung.

Das Programm fragt ab, ob die aktuelle Masche mit Katalysator beschichtet ist oder nicht. Ist die aktuelle Masche mit Katalysator beschichtet, wird die Wärmequelle pro Masche aus dem Anteil der Wärme, die in Platte geht und der Wärmestrahlung bestimmt:

$$W_{Quelle} = (1 - \varphi) W_Q + W_{Strahlung} + W_{Strahlungsverlust} \quad (4.22)$$

mit φ als Faktor zur Aufteilung der Wärmequellen zwischen Feststoff und Gas [–]. In der Theorie [KEIL 99] ist die Rede von zwei Reaktionsmechanismen. Bei dem Langmuir-Hinshelwood-Mechanismus adsorbieren beide bei der Reaktion beteiligten Komponenten am Feststoff, reagieren dort und desorbieren. Die Reaktionswärme wird am Feststoff frei. Der Eley-Rideal-Mechanismus lässt bereits eine Reaktion in der Gasphase zu, sodass ein Teil der Reaktionswärme direkt das Gas erwärmt. Da keine theoretischen Angabe über die Wärmeverteilung zwischen Feststoff und Gas bei einer katalytischen Reaktion vorliegen, wurde der Wert für φ empirisch anhand von Vergleichsrechnungen ermittelt. Für $\varphi = 0,27$ ergaben sich die besten Resultate.

Falls die aktuelle Masche keinen Katalysator enthält, ist die Wärmestrahlung die einzige Wärmequelle bzw. -senke:

$$W_{Quelle} = W_{Strahlung} + W_{Strahlungsverlust} \quad (4.23)$$

Die Wärmequelle pro Masche im durchströmten Bereich ist der Anteil der Gesamtwärmequelle, der für das Gas bestimmt ist.

$$W_{Quelle} = \varphi \cdot W_Q \cdot F \quad (4.24)$$

$F = 0, 1, 2$ ist ein Faktor für die Anzahl der mit Katalysator beschichteten Bleche. $F = 0$ bedeutet, dass keine Platte katalytisch beschichtet ist, $F = 1$ heisst, eine Platte ist katalytisch beschichtet und bei $F = 2$ sind beide Platten katalytisch beschichtet.

Das Unterprogramm „Reaktion“ berechnet zusätzlich die Änderung der Molenströme aufgrund der Reaktionsrate:

$$\dot{n}_{H_2,neu} = \dot{n}_{H_2} - \dot{r} \cdot x \cdot z \cdot F \quad (4.25)$$

$$\dot{n}_{O_2,neu} = \dot{n}_{O_2} - 0,5 \cdot \dot{r} \cdot x \cdot z \cdot F \quad (4.26)$$

$$\dot{n}_{N_2,neu} = \dot{n}_{N_2} \quad (4.27)$$

$$\dot{n}_{H_2O,neu} = \dot{n}_{H_2O} + \dot{r} \cdot x \cdot z \cdot F \quad (4.28)$$

$$\dot{n}_{ges,neu} = \dot{n}_{H_2} + \dot{n}_{O_2} + \dot{n}_{N_2} + \dot{n}_{H_2O}, \quad (4.29)$$

den Massenstrom:

$$\dot{m} = \sum \dot{n}_i \cdot M_i \quad (4.30)$$

und die Änderung der Gasanteile:

$$y_i = \frac{\dot{n}_{i,neu}}{\dot{n}_{ges,neu}} \quad (4.31)$$

4.7 Stoffwerte

Der für die Experimente relevante Gesamtdruck liegt bei ungefähr 100 *kPa*. Bei einem Temperaturbereich zwischen Raumtemperatur und 900 *K* kann von idealen Gasen ausgegangen werden. Das bedeutet, dass alle Stoffwerte bis auf die Dichte und den Diffusionskoeffizienten als druckunabhängig angenommen werden können.

4.7.1 Spezifische isobare Wärmekapazität

Das Unterprogramm „Stoffwert_cp“ berechnet die spezifische isobare Wärmekapazität des Stahls der Platten, der einzelnen Gaskomponenten und der mischungsabhängigen Wärmekapazität im Gas.

Für den verwendeten Stahl 1.4571 (X6CrNiMoTi17-12-2) stammen die Werte für die spezifische Wärmekapazität aus [INCR 02] und [EDEL 04]. Aus diesen Werten wurde eine Regressionsgleichung mit dem Gültigkeitsbereich von 400 *K* bis 1000 *K* ermittelt:

$$c_{Stahl} = 855,13 - 2,8284 T + 7,6255 \cdot 10^{-3} T^2 - 8,0874 \cdot 10^{-6} T^3 + 3,0372 \cdot 10^{-9} T^4 \quad (4.32)$$

Berechnung der spezifischen Wärmekapazität des Stahls
Berechnung der spezifischen Wärmekapazität von Wasserstoff
Berechnung der spezifischen Wärmekapazität von Sauerstoff
Berechnung der spezifischen Wärmekapazität von Stickstoff
Berechnung der spezifischen Wärmekapazität von Wasserdampf
Berechnung der mischungsabhängigen spezifischen Wärmekapazität im Gas

Abbildung 4.6: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Stoffwert_cp“

Die spezifische Wärmekapazität für Wasserstoff berechnet sich nach [VDI 97] und setzt sich aus den folgenden Temperaturintervallen zusammen:

$$0 \leq T \leq 100^\circ\text{C} \quad : \quad c_{p,H_2} = 1,405 \cdot 10^4 + 7,200 T - 3,600 \cdot 10^{-2} T^2 \quad (4.33)$$

$$100 < T \leq 400^\circ\text{C} \quad : \quad c_{p,H_2} = 1,441 \cdot 10^4 \quad (4.34)$$

$$400 < T \leq 1000^\circ\text{C} \quad : \quad c_{p,H_2} = 1,3645 \cdot 10^4 + 1,861 T \quad (4.35)$$

Für Sauerstoff und Stickstoff wird die spezifische Wärmekapazität nach [STEL 84] für einen Gültigkeitsbereich von 273 K bis 1273 K berechnet:

$$c_{p,O_2} = 9,7225 \cdot 10^2 - 6,0848 \cdot 10^{-1} T + 1,9292 \cdot 10^{-3} T^2 - 1,6868 \cdot 10^{-6} T^3 + 4,8580 \cdot 10^{-10} T^4 \quad (4.36)$$

$$c_{p,N_2} = 2,96972 \cdot 10^2 \left(4,98336 - \frac{1,37083 \cdot 10^3}{T} + \frac{2,20106 \cdot 10^5}{T^2} + \frac{1,55373 \cdot 10^8}{T^3} - \frac{6,42837 \cdot 10^{10}}{T^4} + \frac{6,86038 \cdot 10^{12}}{T^5} \right) \quad (4.37)$$

Für Wasserdampf wird mit der Beziehung nach [VDI 97] im Gültigkeitsbereich von 100°C bis 800°C gerechnet:

$$c_{p,H_2O} = 2,105 \cdot 10^3 - 1,247 T + 3,743 \cdot 10^{-3} T^2 - 2,275 \cdot 10^{-6} T^3 \quad (4.38)$$

Die mischungsabhängige spezifische Wärmekapazität lautet nach [KOST 87]:

$$c_p = \frac{\sum_i y_i M_i c_{p,i}}{\sum_i y_i M_i} \quad (4.39)$$

4.7.2 Dynamische Viskosität

Berechnung der dynamischen Viskosität von Wasserstoff
Berechnung der dynamischen Viskosität von Sauerstoff
Berechnung der dynamischen Viskosität von Stickstoff
Berechnung der dynamischen Viskosität von Wasserdampf
Berechnung der allgemeinen Mischungsgrößen
Berechnung der mischungsabhängigen dynamischen Viskosität im Gas

Abbildung 4.7: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Stoffwert.eta“

Das Unterprogramm „Stoffwert.eta“ berechnet die dynamischen Viskosität der einzelnen Gaskomponenten Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff und Wasserdampf sowie die mischungsabhängige Viskosität des Gases. Die dynamische Viskosität wird im Gültigkeitsbereich von 0°C bis 1000°C für Wasserstoff nach [VDI 97] berechnet:

$$\eta_{H_2} = 8,509 \cdot 10^{-6} + 1,871 \cdot 10^{-8} T - 3,445 \cdot 10^{-12} T^2 \quad (4.40)$$

Für Sauerstoff und Stickstoff wird die dynamische Viskosität nach [STEL 84] im Temperaturintervall von 273 K bis 1273 K berechnet:

$$\begin{aligned} \eta_{O_2} = & -2,8316 \cdot 10^{-8} + 8,6620 \cdot 10^{-8} T - 6,6840 \cdot 10^{-11} T^2 \\ & + 3,5270 \cdot 10^{-14} T^3 - 7,1740 \cdot 10^{-18} T^4 \end{aligned} \quad (4.41)$$

$$\eta_{N_2} = \frac{1,3860 \cdot 10^{-6} T^{\frac{1}{2}}}{1 + 91,14 T \cdot 10^{-\frac{14,64}{T}}} \quad (4.42)$$

Wasserdampf wird nach [VDI 97] im Gültigkeitsbereich von 100°C bis 800°C berechnet:

$$\eta_{H_2O} = 8,1820 \cdot 10^{-6} + 4,0500 \cdot 10^{-8} T \quad (4.43)$$

Für die Mischung wird die Beziehung aus [KOST 87] verwendet:

$$\eta = \sum_i \frac{y_i \eta_i}{\sum_j y_j A_{ij}} \quad (4.44)$$

mit

$$A_{ij} = \frac{\left[1 + \left(\frac{n_i}{n_j}\right)^{\frac{1}{2}} \cdot \left(\frac{M_j}{M_i}\right)^{\frac{1}{4}}\right]^2}{\left[8 \left(1 + \frac{M_i}{M_j}\right)\right]^{\frac{1}{2}}} \quad (4.45)$$

4.7.3 Wärmeleitfähigkeit

Berechnung der Wärmeleitfähigkeit des Stahls
Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von Wasserstoff
Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von Sauerstoff
Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von Stickstoff
Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von Wasserdampf
Berechnung der mischungsabhängigen Wärmeleitfähigkeit des Gases

Abbildung 4.8: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Stoffwert_lam“

Das Unterprogramm „Stoffwert_lam“ berechnet die Wärmeleitfähigkeiten des verwendeten Stahls, der einzelnen Gaskomponenten Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff, Wasserdampf und der mischungsabhängigen Wärmeleitfähigkeit im Gas. Im Modell werden die Wärmeleitungen der einzelnen Gase berücksichtigt und zu einer Wärmeleitung für eine Mischung zusammengefasst. Der Gültigkeitsbereich für die Wärmeleitung von Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff erstreckt sich von 0°C bis 1000°C bei 100 kPa Druck [VDI 97]:

$$\lambda_{H_2} = 1,715 \cdot 10^{-1} + 3,934 \cdot 10^{-4} T - 4,595 \cdot 10^{-8} T^2 \quad (4.46)$$

$$\lambda_{O_2} = 2,61 \cdot 10^{-2} + 6,133 \cdot 10^{-5} T \quad (4.47)$$

$$\lambda_{N_2} = 2,446 \cdot 10^{-2} + 6,336 \cdot 10^{-5} T - 1,588 \cdot 10^{-8} T^2 \quad (4.48)$$

Für Wasserdampf wird die Beziehung nach [STEL 84] für einen Gültigkeitsbereich von 100°C bis 800°C bei 100 kPa Druck verwendet:

$$\lambda_{H_2O} = 1,760 \cdot 10^{-2} + 5,870 \cdot 10^{-5} T + 1,040 \cdot 10^{-7} T^2 - 4,510 \cdot 10^{-11} T^3 \quad (4.49)$$

Die Mischung wird nach [KOST 87] berechnet:

$$\lambda = \sum \frac{y_i \cdot \lambda_i}{\sum y_j \cdot A_{ij}} \quad (4.50)$$

mit A_{ij} entsprechend Gleichung 4.45. Aus [KLEN 04] können Werte für die Wärmeleitfähigkeit des verwendeten Stahls entnommen werden. Aus diesen Werten kann eine Regressionsgleichung ermittelt werden, die in das Modell integriert wird (Abbildung 4.9). Der Gültigkeitsbereich erstreckt sich von 273 K bis 1173 K.

$$\lambda_{Stahl} = 14,469 - 4,916 \cdot 10^{-3} T + 2,483 \cdot 10^{-5} T^2 - 9,638 \cdot 10^{-9} T^3 \quad (4.51)$$

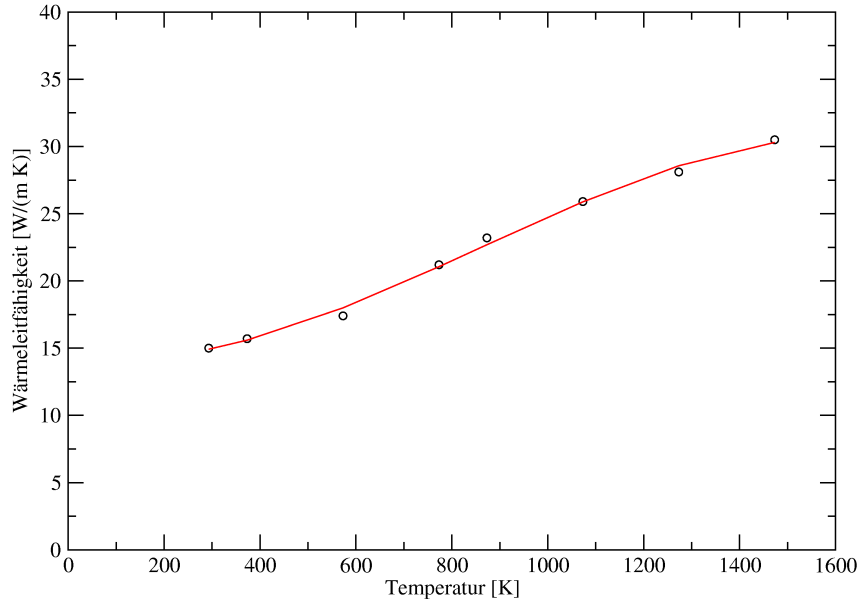


Abbildung 4.9: Wärmeleitfähigkeit des Stahls

4.7.4 Dichte

Das Unterprogramm „Stoffwert_rho“ berechnet die Dichten des verwendeten Stahls, der einzelnen Gaskomponenten Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff, Wasserdampf und der mischungsabhängigen Dichte des Gases. Die Dichte für den Feststoff Stahl beträgt $\rho_{Fe} = 7980 \text{ kg m}^{-3}$ im Temperaturbereich von 273 K bis 1273 K. Die Dichten für die einzelnen Gaskomponenten werden mit Hilfe des Idealen-Gas-Gesetzes berechnet:

$$\rho_i = \frac{p \cdot M_i}{R \cdot T} \quad (4.52)$$

Die Dichte für Wasserdampf wird nach [STEL 84] berechnet:

$$\rho_{H_2O} = \left[\frac{4,6125 \cdot 10^{-3} T}{p} - \frac{1,45}{\left(\frac{T}{100}\right)^{3,1}} - \frac{6,0272 \cdot 10^3 p^2}{\left(\frac{T}{100}\right)^{13,5}} \right]^{-1} \quad (4.53)$$

Für die Mischung gilt:

Berechnung der Dichte des Stahls
Berechnung der Dichte von Wasserstoff
Berechnung der Dichte von Sauerstoff
Berechnung der Dichte von Stickstoff
Berechnung der Dichte von Wasserdampf
Berechnung der mischungsabhängigen Dichte des Gases

Abbildung 4.10: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Stoffwert_rho“

$$\rho = \sum_i y_i \cdot \rho_i \quad (4.54)$$

4.8 Wärmewiderstände

Das Unterprogramm „Widerstand“ berechnet die Wärmewiderstände für Wärmeleitung, Wärmeübergang und Enthalpie. Die Randmaschen am Strömungsein- und austritt haben nach außen einen Wärmeübergang verbunden mit einer vorgegebenen Randtemperatur. In das Modellinnere hinein wird Wärmeleitung gerechnet.

Wärmeübergangswiderstand am Strömungseintritt einer Masche:

$$K_{W,e} = \frac{y \cdot z}{\frac{1}{\alpha_{ein}} + \frac{x}{2 \cdot \lambda}} \quad (4.55)$$

Wärmeübergangswiderstand am Strömungsausritt einer Masche:

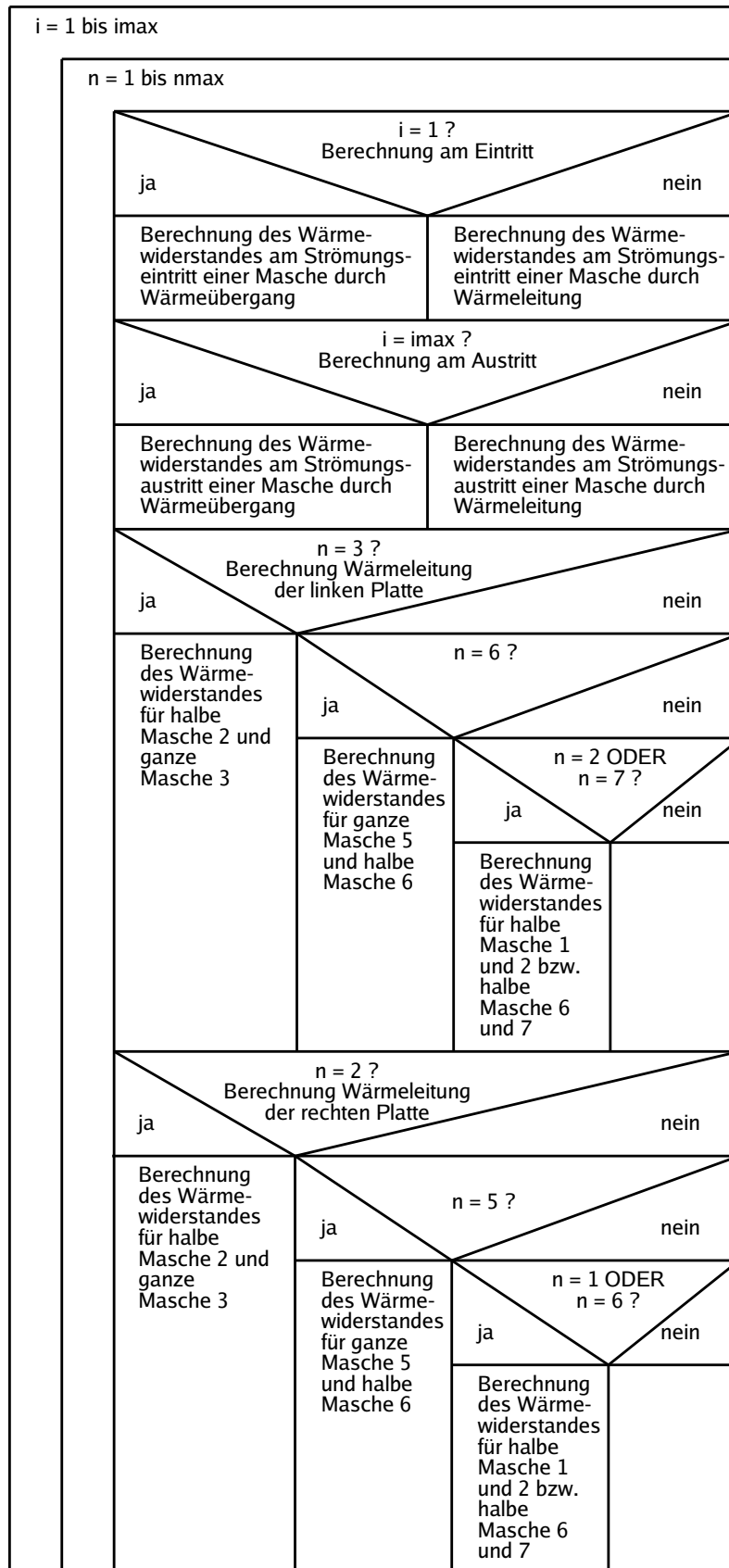
$$K_{W,a} = \frac{y \cdot z}{\frac{1}{\alpha_{aus}} + \frac{x}{2 \cdot \lambda}} \quad (4.56)$$

mit $\alpha_{aus} = 20 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$.

Wärmeleitungswiderstand:

$$K_{W,\lambda} = \frac{x \cdot z}{\frac{y_1}{\lambda} + \frac{y_2}{\lambda}} \quad (4.57)$$

Berechnung des Wärmeübergangswiderstandes der an den Strömungskanal grenzenden Maschen:



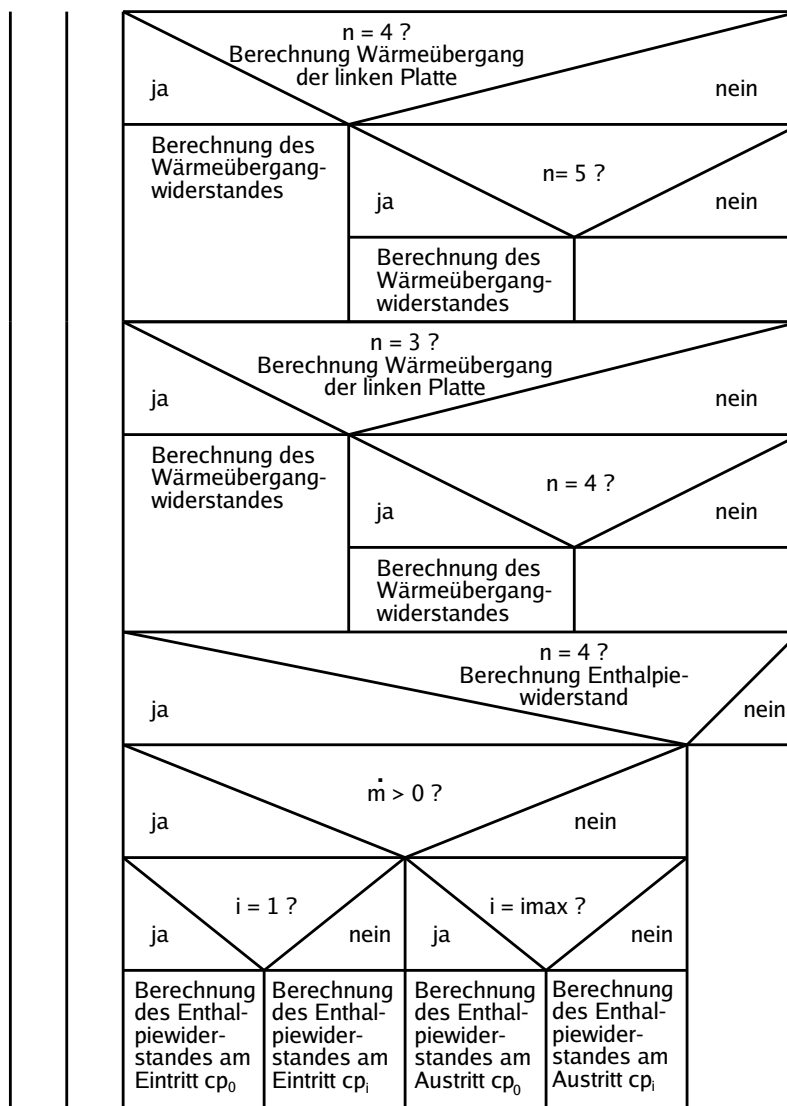


Abbildung 4.11: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Widerstand“

$$K_{W,\alpha} = x \cdot z \cdot \alpha \quad (4.58)$$

Die Enthalpieströme bewegen sich stets mit dem Massenstrom. Somit werden die Enthalpieströme bzw. der Enthalpiewiderstand im Modell nur in senkrechter Richtung von einem im Gaskanal liegenden Knoten in Strömungsrichtung zum nächsten berechnet:

$$K_{W,E} = \dot{m} \cdot c_p \quad (4.59)$$

4.9 Löser

Das Unterprogramm „Löser“ stellt die Matrix auf und löst diese mittels einer Lösungsroutine aus der IMSL-Bibliothek (International Mathematical and Statistical Libraries).

Die Matrix besteht aus den Gleichungen für den Wärmeübergang, die Wärmeleitung, dem Enthalpiestrom und den Wärmequellen, aus denen an jedem Knotenpunkt eine Energiebilanz erstellt wird. Im Programm werden diese Bilanzen mit den Routinen DL2LRB und DL2ARB der IMSL Fortran Library [VISU 03] gelöst. Diese Routinen dienen zur direkten (nicht iterativen) Lösung eines linearen Gleichungssystems, das zuvor in einer Bandmatrix aufgestellt wurde. Zuerst wird eine LR-Faktorisierung der Koeffizientenmatrix und eine Schätzung der Konditionszahl der Matrix durchgeführt. Die Routine versagt, wenn die obere Dreiecksform der Faktorisierung eine Diagonale mit Nullen besitzt. Diese Fehler treten auf, wenn die aufgestellte Matrix singulär ist. Ist die geschätzte Konditionszahl größer als 1, ist die Berechnung nahe der Rechengenauigkeit der Maschine, und kleine Änderungen in der aufgestellten Matrix können zu großen Fehlern in der Lösungsmatrix führen. Die Lösungsmatrix enthält die Temperaturverläufe in den Platten und im Gaskanal.

4.10 Wärmeströme

Das Unterprogramm „Waermestrom“ ist ein Auswerteprogramm und berechnet sämtliche Wärmeströme (Wärmeleitung, Wärmeübergang, Wärmestrahlung) zwischen den Maschinen.

Für die linke und die rechte Seite gilt:

$$\dot{q}_\lambda = K_{W,\lambda} \cdot (T_1 - T_2) \quad (4.60)$$

$$\dot{q}_\alpha = K_{W,\alpha} \cdot (T_1 - T_2) \quad (4.61)$$

$$\dot{q}_\varepsilon = \dot{q}_{Strahlung} + \dot{q}_{Strahlungsverlust} \quad (4.62)$$

Für die Ränder am Eintritt und Austritt gilt:

$$\dot{q}_e = K_{W,e} \cdot (T_{rand,e} - T) \quad (4.63)$$

$$\dot{q}_a = K_{W,a} \cdot (T_{rand,a} - T) \quad (4.64)$$

Für die Enthalpie gilt:

$$\dot{q}_E = K_{W,E} \cdot (T_1 - T_2) \quad (4.65)$$

Die Gesamtwärmestrombilanz pro Masche setzt sich wie folgt zusammen:

$$\dot{q}_{bilanz} = W_{Quelle} + \dot{q}_\lambda + \dot{q}_\alpha + \dot{q}_\varepsilon + \dot{q}_e + \dot{q}_a + \dot{q}_E \quad (4.66)$$

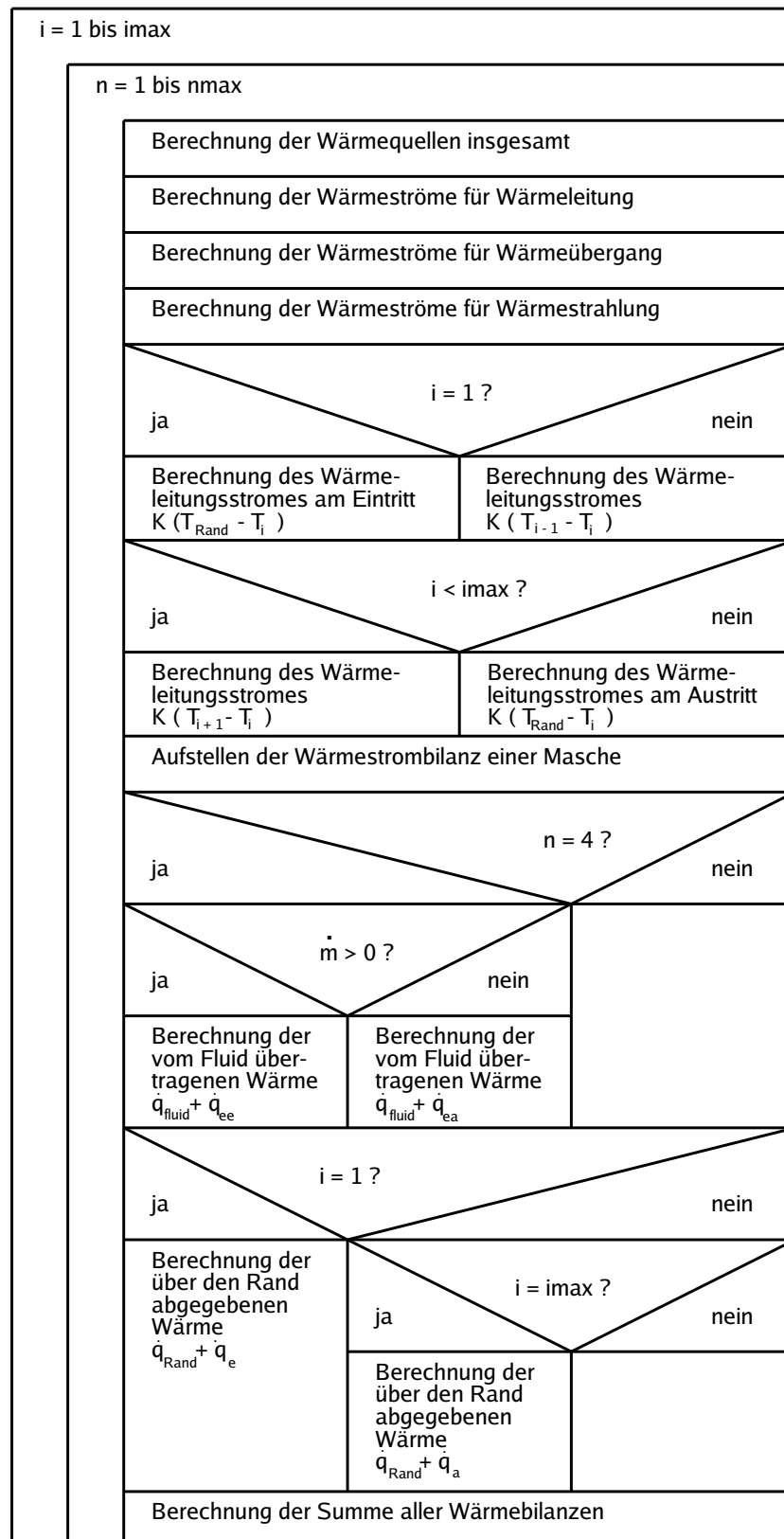


Abbildung 4.12: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Wärmestrom“

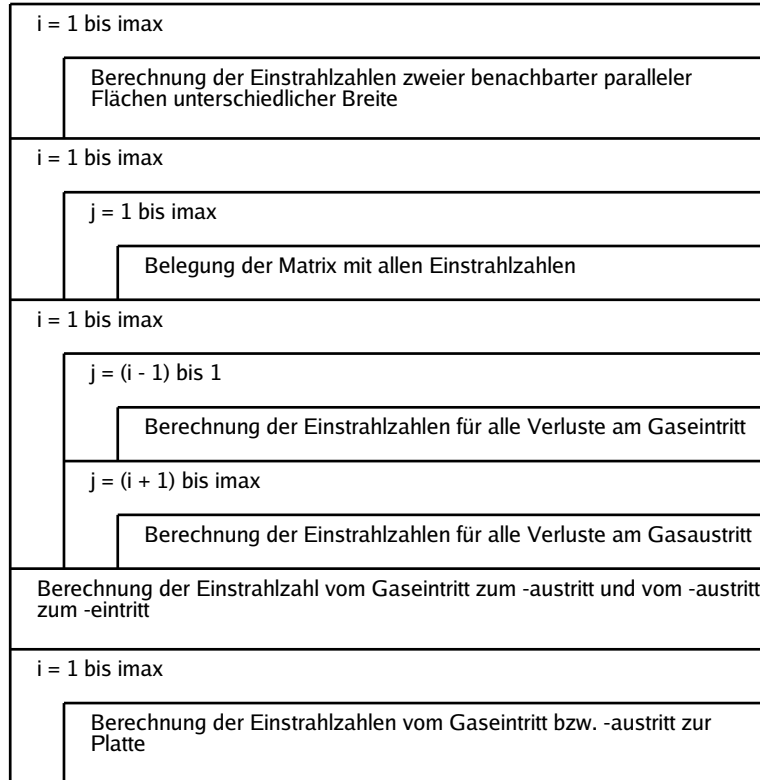


Abbildung 4.13: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Einstrahlzahlen_Matrix“

4.11 Einstrahlzahlen

Im Unterprogramm „Rechnung_Strahlung“ wird die Berechnung der Einstrahlzahlen aufgerufen. Zunächst werden die Einstrahlzahlen zweier benachbarter paralleler Flächen unterschiedlicher Breite berechnet. Mit Hilfe des Faktors f werden die Flächenelemente für die Berechnung in zweifachen Mascheneinheiten vergrößert:

$$F_i = \frac{\left[\left(\frac{x_i}{y} + f \cdot \frac{x_i}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}} - \left[\left(f \cdot \frac{x_i}{y} - \frac{x_i}{y} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}}}{2 \cdot \frac{x_i}{y}} \quad (4.67)$$

mit $f = 2 \cdot i - 1$. Mittels obiger Rechnungen kann die Einstrahlzahlen Matrix für jedes Flächenelement zusammen gestellt werden:

$$F_{AB} = 0,5 \cdot (F_{i+1} - F_i) \quad (4.68)$$

Da der Gaseinlass und -auslass für die Wärmestrahlung der Platten einen Verlust darstellt, muss dieser separat berechnet werden:

$$F_{V,x} = 0,5 - \frac{F_{xx}}{2} - \sum_i F_{ix} \quad (4.69)$$

Die Gasöffnungen besitzen zueinander ebenfalls eine Einstrahlzahl, die berechnet wird:

$$F_{EA} = \frac{\left[\left(\frac{y}{h} + \frac{y}{h} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}} - \left[\left(\frac{y}{h} - \frac{y}{h} \right)^2 + 4 \right]^{\frac{1}{2}}}{2 \frac{y}{h}} \quad (4.70)$$

mit h als Höhe der Rekombinatorplatten und y als Gaskanalbreite. Als letzter Schritt sind die Einstrahlzahlen von den Gasöffnungen zu den einzelnen Flächenelementen zu berechnen. Da die Einstrahlzahlen der Verluste schon bekannt sind, kann hierfür die Reziprozität-Beziehung $F_{21} = \frac{A_1}{A_2} F_{12}$ verwendet werden:

$$F_{xi} = F_{V,x} \frac{x}{y} \quad (4.71)$$

4.12 Wärmestrahlung

Das Unterprogramm „Rechnung-Strahlung“ berechnet die Wärmestrahlung und die Strahlungsverluste der Rekombinatorplatten. Für die Berechnung der Wärmestrahlung wird eine sog. Strahlungsmatrix aufgestellt, die eine Dimension von $(2 \cdot imax + 2) \times (2 \cdot imax + 2)$ besitzt. Dabei stehen die Werte von 1 bis $imax$ für die linke Platte, die Werte von $(imax + 1)$ bis $(2 \cdot imax)$ für die rechte Platte, der Wert $(2 \cdot imax + 1)$ für den Gaseinlass und der Wert $(2 \cdot imax + 2)$ für den Gasausslass (siehe Abbildung 4.15). Die Variable $imax$ steht für die Anzahl der Maschen in Strömungsrichtung. Die Matrix hat die folgende Form:

$$\begin{bmatrix} \sum_{i=1}^{2imax+2} F_{1i} + \frac{\epsilon_l}{1-\epsilon_l} & 0 & \cdots & -F_{1(imax+1)} & -F_{1(imax+2)} & \cdots \\ 0 & \sum_{i=1}^{2imax+2} F_{2i} + \frac{\epsilon_l}{1-\epsilon_l} & \cdots & -F_{2(imax+1)} & -F_{2(imax+2)} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots \\ -F_{(imax+1)1} & -F_{(imax+1)2} & \cdots & \sum_{i=1}^{2imax+2} F_{(imax+1)i} + \frac{\epsilon_r}{1-\epsilon_r} & 0 & \cdots \\ -F_{(imax+2)1} & -F_{(imax+2)2} & \cdots & 0 & \sum_{i=1}^{2imax+2} F_{(imax+2)i} + \frac{\epsilon_r}{1-\epsilon_r} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots \\ -F_{(2imax+1)1} & -F_{(2imax+1)2} & \cdots & -F_{(2imax+1)(imax+1)} & -F_{(2imax+1)(imax+2)} & \cdots \\ -F_{(2imax+2)1} & -F_{(2imax+2)2} & \cdots & -F_{(2imax+2)(imax+1)} & -F_{(2imax+2)(imax+2)} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots \\ \cdots & -F_{1(2imax+1)} & -F_{1(2imax+2)} & \vdots & \vdots & \vdots \\ \cdots & -F_{2(2imax+1)} & -F_{2(2imax+2)} & \vdots & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \cdots & -F_{(imax+1)(2imax+1)} & -F_{(imax+1)(2imax+2)} & \vdots & \vdots & \vdots \\ \cdots & -F_{(imax+2)(2imax+1)} & -F_{(imax+2)(2imax+2)} & \vdots & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \cdots & \sum_{i=1}^{2imax+2} F_{(2imax+1)i} + \frac{\epsilon_{ein}}{1-\epsilon_{ein}} & -F_{(2imax+1)(2imax+2)} & \vdots & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \cdots & -F_{(2imax+2)(2imax+1)} & \sum_{i=1}^{2imax+2} F_{(2imax+2)i} + \frac{\epsilon_{aus}}{1-\epsilon_{aus}} & \vdots & \vdots & \vdots \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} J_1 \\ J_2 \\ \vdots \\ J_{imax+1} \\ J_{imax+2} \\ \vdots \\ J_{2imax+1} \\ J_{2imax+2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\epsilon_l \sigma T_1^4}{1-\epsilon_l} \\ \frac{\epsilon_l \sigma T_2^4}{1-\epsilon_l} \\ \vdots \\ \frac{\epsilon_r \sigma T_{imax+1}^4}{1-\epsilon_r} \\ \frac{\epsilon_r \sigma T_{imax+2}^4}{1-\epsilon_r} \\ \vdots \\ \frac{\epsilon_{ein} \sigma T_{Rand,ein}^4}{1-\epsilon_{ein}} \\ \frac{\epsilon_{aus} \sigma T_{Rand,aus}^4}{1-\epsilon_{aus}} \end{bmatrix}$$

Die oben aufgeführte Matrix wird mit Hilfe des Eliminationsverfahrens nach Gauss aus [HÄMM 92] und [BRON 97] intern gelöst. Das Eliminationsverfahren nach Gauss ist ein direktes Lösungsverfahren, das Probleme nach endlich vielen Schritten löst, sodass keine Iterationsfehler auftreten. Der Lösungsvektor dieser Matrix beinhaltet die Radiositäten J_i

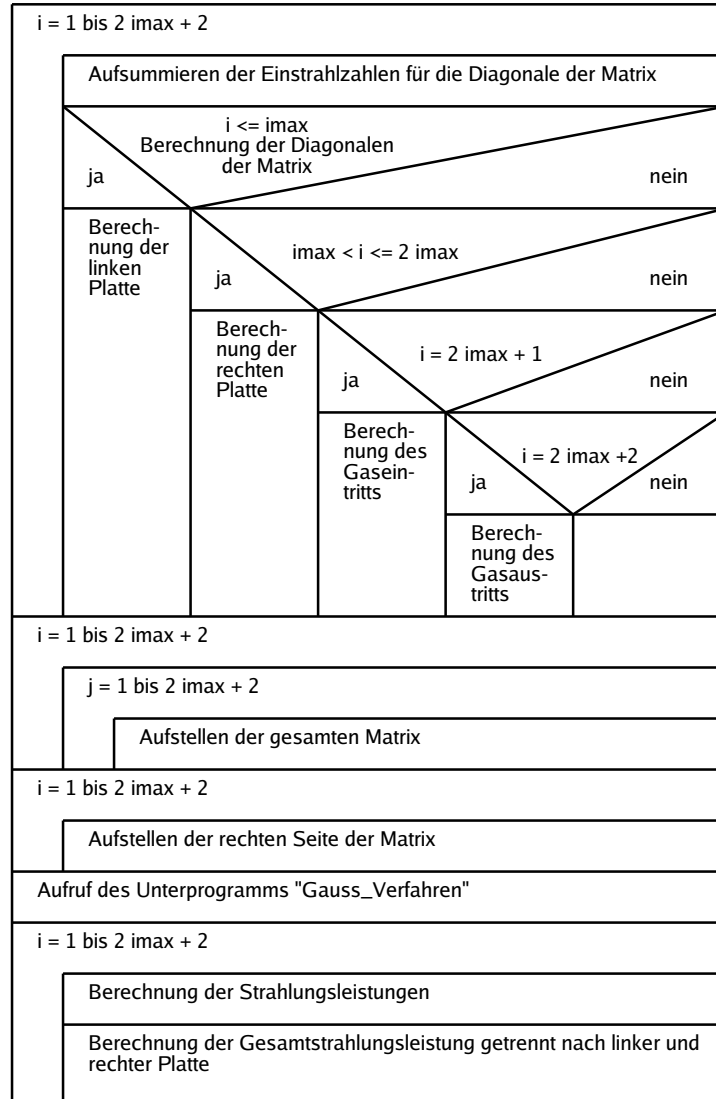


Abbildung 4.14: Nassi-Shneiderman Diagramm des Unterprogramms „Rechnung_Strahlung“

jedes Flächenelements. Mittels des Radiositätenvektors lässt sich die Strahlungsleistung eines Flächenelements berechnen:

$$\dot{Q}_{\varepsilon,i} = x \cdot z \cdot \varepsilon_i \left(\frac{\sigma T_i^4 - J_i}{1 - \varepsilon_i} \right) \quad (4.72)$$

Die Gesamtstrahlungsleistung einer Platte kann durch Aufsummieren berechnet werden:

$$\dot{Q}_{\varepsilon,links} = \sum_{i=1}^{imax} \dot{Q}_{\varepsilon,i} \quad (4.73)$$

$$\dot{Q}_{\varepsilon,rechts} = \sum_{i=imax+1}^{2imax} \dot{Q}_{\varepsilon,i} \quad (4.74)$$

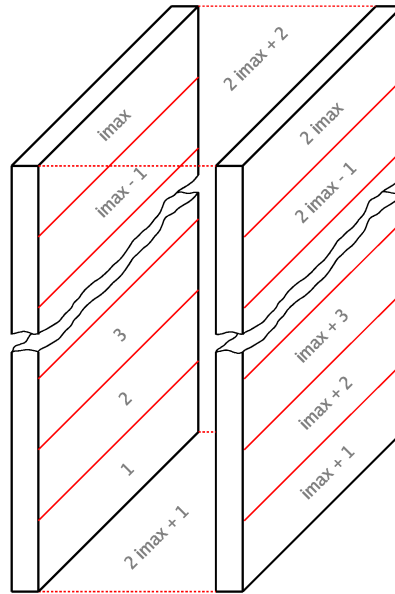


Abbildung 4.15: Zuordnungsschema für die Strahlungsmatrix

5 Vergleichsrechnungen

Zur Beurteilung der Rechenfähigkeit des Programms werden im Folgenden die Nachrechnung von experimentell gewonnenen Daten vorgestellt. Zur vorliegenden Modellierungsaufgabe existiert eine umfangreiche Datenbasis von Experimenten, die am Versuchsstand REKO-3 durchgeführt wurde. Dabei wurden unterschiedliche Anfangs- und Umgebungsbedingungen verwendet, sodass REKO-Direkt anhand einer Vielzahl von Messergebnissen validiert werden kann.

Die Versuchsanlage REKO-3 untersucht das Verhalten eines Rekombinatorausschnitts unter genau definierten Bedingungen. Sie besteht aus vier in einem Rechteckkanal parallel angeordneten Katalysatorblechen, die mit einem vorgegebenen Gasgemisch bestehend aus Wasserstoff, Luft, Wasserdampf und Stickstoff durchströmt werden können. Die Platten besitzen eine Dicke von $1,5\text{ mm}$ bei einer Fläche von $143\text{ mm} \times 143\text{ mm}$. Der Abstand der Platten voneinander beträgt $8,5\text{ mm}$. Im Prüfstand werden die Temperaturen der Platten an verschiedenen Positionen und die Temperaturen im Gas am Ein- und Austritt gemessen. Zusätzlich wird die Gaszusammensetzung im Strömungskanal bestimmt.

Der Versuchsstand REKO-3 bildet also einen Ausschnitt eines Rekombinators, der bis zu 150 Katalysatorbleche enthält, ab. Das numerische Programm REKO-Direkt betrachtet wiederum einen Ausschnitt des Prüfstandes REKO-3. REKO-Direkt modelliert den mittleren Strömungskanal mit den zwei umgebenden Katalysatorplatten (Abbildung 5.1). Dabei können die Plattenränder in Strömungsrichtung als adiabatisch definiert werden, da die Bedingungen in den benachbarten Strömungskanälen praktisch identisch sind und somit keine signifikanten Temperaturdifferenzen zu erwarten sind.

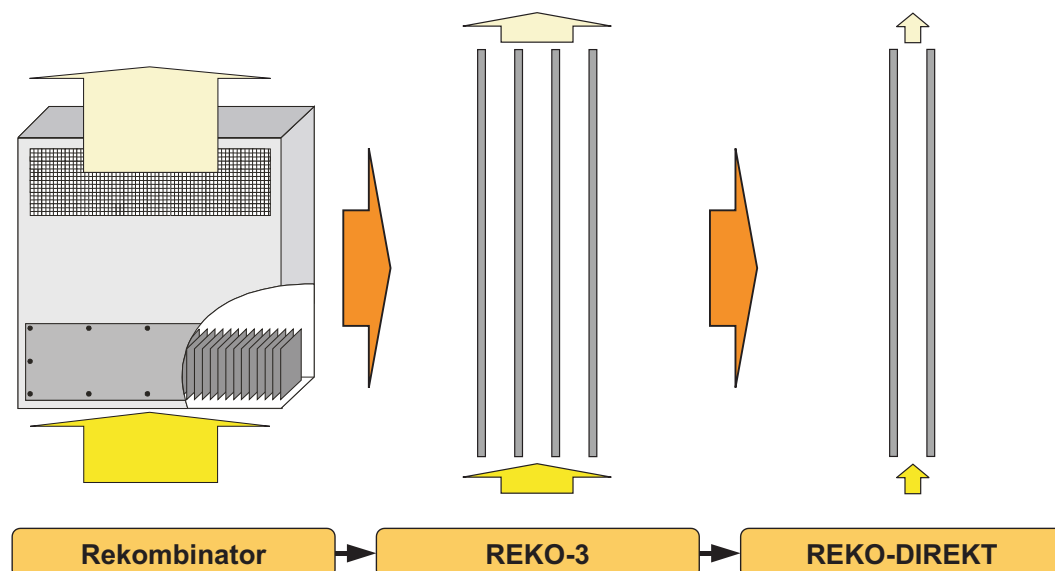


Abbildung 5.1: Abbildung eines Rekombinators im Experiment REKO-3 und im Programm REKO-Direkt

Zunächst müssen die Eingabewerte für REKO-Direkt auf die Geometrie des Versuchs-

standes eingestellt werden. Für diese Rechnungen wird die Katalysatorschicht mit einer Dicke von $0,1\text{ mm}$ festgesetzt. Somit verbleibt für den Grundkörper der Platte eine Dicke von $1,3\text{ mm}$. Diese Dicke wird auf zwei Maschen aufgeteilt, wobei die äußere Masche auf eine Breite von $0,33\text{ mm}$ und die innere Masche auf $0,32\text{ mm}$ eingestellt wird. Die Masche für die Kanalbreite beträgt $8,5\text{ mm}$. In Strömungsrichtung wird die Maschenzahl auf 143 mit einer Höhe von 1 mm festgesetzt. Die Umgebungstemperatur am Gaseingang wird auf Raumtemperatur gesetzt. Der Gasausgang erhält aufgrund von Wärmestrahlungseffekten im Gehäuse eine höhere Temperatur von 343 K . Die Emissionskoeffizienten beider Platten und des umliegenden Gehäuses werden auf $\varepsilon = 0,8$ gesetzt. Dieser Wert wurde mittels Pyrometer am Versuchsstand ermittelt. Mit diesen Einstellung besitzt REKO-Direkt dieselben Umgebungsbedingungen wie sie im Prüfstand REKO-3 herrschen.

Sämtliche vorgestellte Rechnungen werden mit konstanter Parametereinstellung durchgeführt. Es werden also nur die Anfangs- und die Umgebungsbedingungen den jeweiligen Versuchen angepasst. Die durchgezogenen Kurven in den Schaubildern sind die von REKO-Direkt berechneten Plattentemperaturen. Die Kreissymbole sind die dazu gehörigen im Versuchsstand gemessenen Werte. Diese Art der Darstellung wird in allen folgenden Schaubildern verwendet.

Bei den Vergleichsrechnungen werden die Startkonzentrationen von Wasserstoff und die Konzentrationsverteilungen stets in Prozent angegeben. Dabei handelt es sich zur Verkürzung der Schreibweise um Volumen-Prozent (Vol.-%).

5.1 Standardversuche

Bei den Standardversuchen sind alle Platten durchgehend beidseitig mit Katalysatormaterial beschichtet. Die einzelnen Versuche unterschieden sich in den Eintrittsbedingungen. Die Starttemperatur des Gasgemisches, die Strömungsgeschwindigkeit am Eintritt und die Eintrittskonzentration von Wasserstoff werden variiert.

Die typischerweise im Rekombinatoreintritt auftretende Gasgeschwindigkeit beträgt nach Experimenten im Battelle Modellcontainment [KANZ 95] etwa $v_0 = 0,8\text{ m/s}$. Abbildung 5.2 zeigt beispielhaft die Temperaturverteilung entlang der Platte und im Gaskanal. Das charakteristische Profil der Plattentemperatur resultiert im Wesentlichen aus dem Zusammenspiel der Reaktionswärmeproduktion, die in Strömungsrichtung aufgrund der Wasserstoffanreicherung abnimmt, mit der konvektiven Wärmeabfuhr in das vorbeiströmende Gas und der Wärmeleitung innerhalb der Platte. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird im Weiteren auf die Darstellung der Gastemperaturen verzichtet.

Abbildung 5.3 stellt die Temperaturverteilungen bei den oben genannten Bedingungen mit unterschiedlichen H_2 -Konzentrationen dar. Die Wasserstoff-Konzentrationen im Gaseintritt werden von $y_0 = 1\%$ bis $y_0 = 3,8\%$ variiert.

Die höchsten Temperaturen treten jeweils im Eintrittsbereich (linker Teil der Berech-

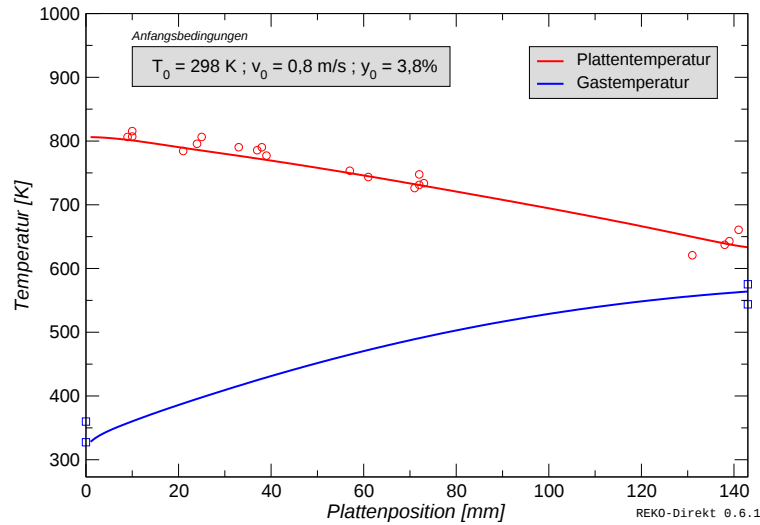


Abbildung 5.2: Temperaturverteilung in der Platte und im Gas bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und $y_{H_2} = 3,8\%$

nungskurve) des Rekombinators auf, da dort noch die höchste H_2 -Konzentration vorhanden ist. In Strömungsrichtung nimmt die Wasserstoff-Konzentration ab. Wodurch die katalytische Reaktionsrate und damit die freiwerdende Wärmemenge reduziert wird. Alle berechneten Daten zeigen gute Übereinstimmung mit den experimentell gefundenen Daten.

Der Verlauf der H_2 -Konzentration über der Plattenlänge wird in Abbildung 5.4 für die unterschiedlichen Anfangskonzentrationen dargestellt. Im Eingangsbereich ist der Konzentrationsabfall steiler als stromab, da dort mehr Wasserstoff rekombiniert wird. Dieses Ergebnis wurde bereits zur Deutung des Temperaturverlaufs in Abbildung 5.3 vorweggenommen. Wie bei den Temperaturverläufen ist eine gute Übereinstimmung von Rechnung und Experiment zu erkennen.

In der nächsten nachgerechneten Versuchsreihe ist die Eintrittsgeschwindigkeit auf $0,5\text{ m/s}$ reduziert. In Abbildung 5.5 ist ein ähnlicher Kurvenverlauf wie bei den vorherigen Berechnungen zu erkennen, jedoch sind die Temperaturen insgesamt niedriger. Aufgrund der reduzierten Strömungsgeschwindigkeit wird weniger Wasserstoff umgesetzt, und es wird weniger Reaktionswärme frei. Das Temperaturniveau verringert sich.

Abbildung 5.6 enthält die zugehörigen Konzentrationsverläufe. Aufgrund der verringerten Anfangsgeschwindigkeit des Gases wird nahezu der gesamte Wasserstoff umgesetzt. Zwar wird der Stoffübergang aufgrund der kleineren Reynolds-Zahl verringert, jedoch erhöht sich die Verweilzeit ($\sim v^{0,5}$) des Reaktionsgases umgekehrt proportional zur Geschwindigkeitsreduzierung ($\sim v^{-1}$). Auch dieser Effekt wird von den Versuchsdaten bestätigt.

Zur weiteren Verdeutlichung des Effekts der abnehmenden Strömungsgeschwindigkeit auf den Temperaturverlauf und die H_2 -Konzentration wird diese nochmals auf $v_0 = 0,25\text{ m/s}$

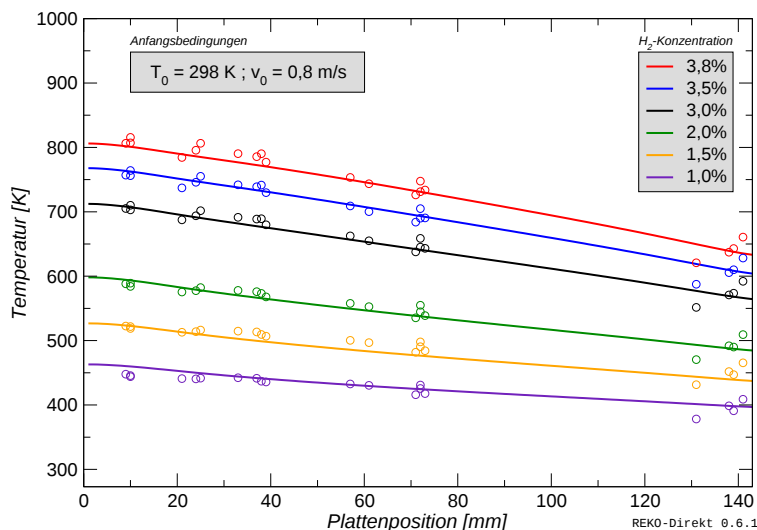


Abbildung 5.3: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

reduziert. Die Ergebnisse werden in den Abbildungen 5.7 und 5.8 wiedergegeben.

Die oben genannten Effekte werden wiederum durch die Berechnungen und die Messungen bestätigt. Es findet eine deutliche Reduktion des Temperaturniveaus bei sämtlichen Anfangskonzentrationen statt. Der Wasserstoff-Anteil im Gas wird praktisch vollständig umgesetzt.

Bei der folgenden Versuchsreihe wird die Eintrittstemperatur des Gasgemischs auf $T_0 = 383\text{ K}$ heraufgesetzt. Die Strömungsgeschwindigkeiten betragen wiederum $0,8\text{ m/s}$, $0,5\text{ m/s}$ und $0,25\text{ m/s}$. Die Anfangskonzentrationen von Wasserstoff variieren von $0,5\%$ bis 5% (Abbildungen 5.9 bis 5.10). Aufgrund der höheren Eintrittstemperatur liegt das Temperaturniveau entsprechend höher als bei den vorangegangenen Rechnungen.

Die Wasserstoffumsetzung ist vollständig bei einer Strömungsgeschwindigkeit von $0,25\text{ m/s}$ bis zu einer Anfangskonzentration von 4% . Die Restkonzentrationen am Gasaustritt nehmen mit steigender Strömungsgeschwindigkeit zu.

Aus sämtlichen Temperaturschaubildern geht hervor, dass nahezu ein linearer Zusammenhang zwischen Wasserstoff-Konzentration und Maximaltemperatur besteht. Dieser Zusammenhang geht aus der Proportionalität zwischen Reaktionsrate und Konzentrationsdifferenz von Platte und Gas hervor. Die Plattentemperaturen ändern sich nur geringfügig mit steigender Gaseintrittstemperatur. Dieser Punkt bestätigt, dass es sich hier um eine diffusionskontrollierte Reaktion handelt (siehe [REIN 99]).

Im Anhang 10.1 befinden sich weitere Vergleichsrechnungen mit einer Starttemperatur von $T_0 = 343\text{ K}$. Für diesen Fall liegen keine Konzentrationsmessungen vor.

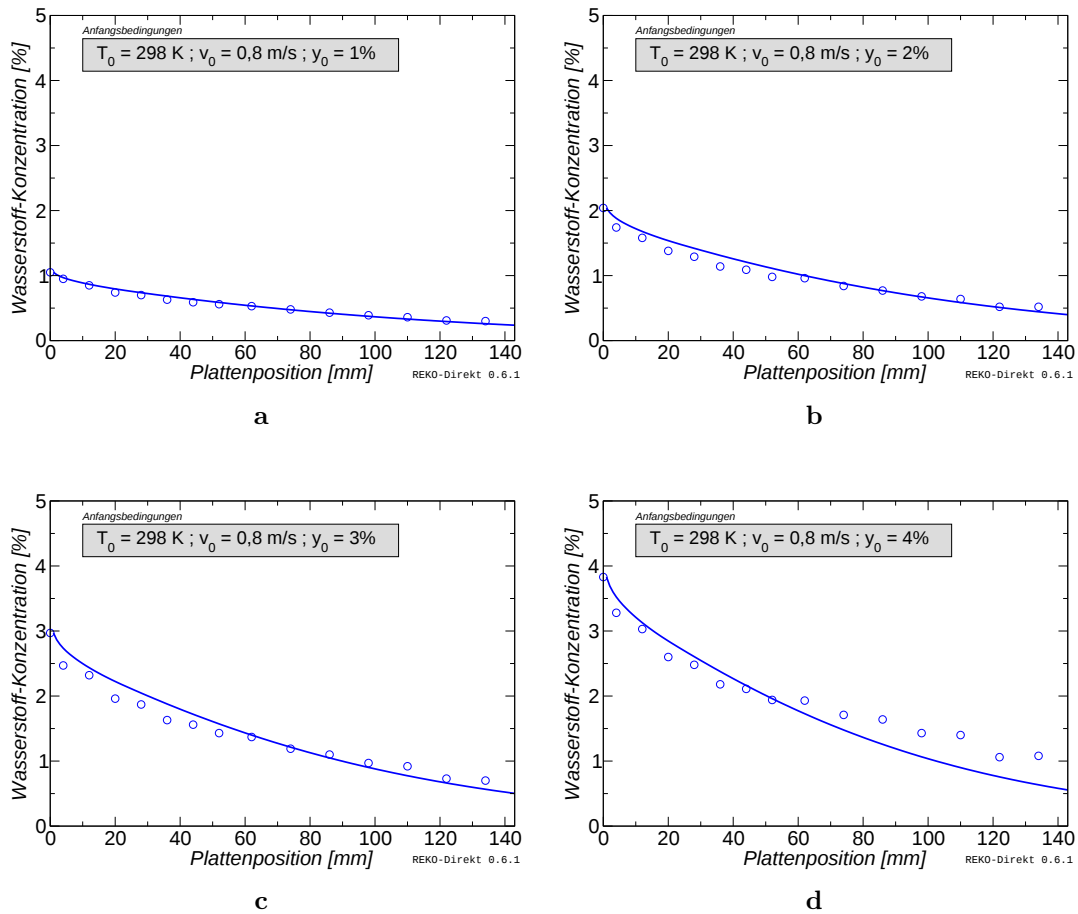


Abbildung 5.4: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von
(a) $y_0 = 1\%$, **(b)** $y_0 = 2\%$, **(c)** $y_0 = 3\%$ und **(d)** $y_0 = 4\%$.

Die berechneten Konzentrationsverläufe stimmen mit den Messwerten gut überein. Auch die Maximaltemperaturen der Platten, die ein wichtiges Kriterium zur Vorhersage einer Gaszündung sind, werden sehr gut getroffen. Für die Temperaturen am Plattenende werden für niedrige Strömungsgeschwindigkeiten zu hohe Werte berechnet. Dies tritt insbesondere auf, wenn im Austrittsbereich der Wasserstoff nahezu vollständig umgesetzt wurde. Eine mögliche Begründung ist in der Vernachlässigung der freien Konvektion zu finden, die bei kleinen Strömungsgeschwindigkeiten eine größere Rolle spielt (siehe Kapitel 4.5.1). Da für den Einsatz katalytischer Rekombinatoren niedrige Strömungsgeschwindigkeiten nicht von Bedeutung sind, ist eine Erweiterung des Modells nicht erforderlich.

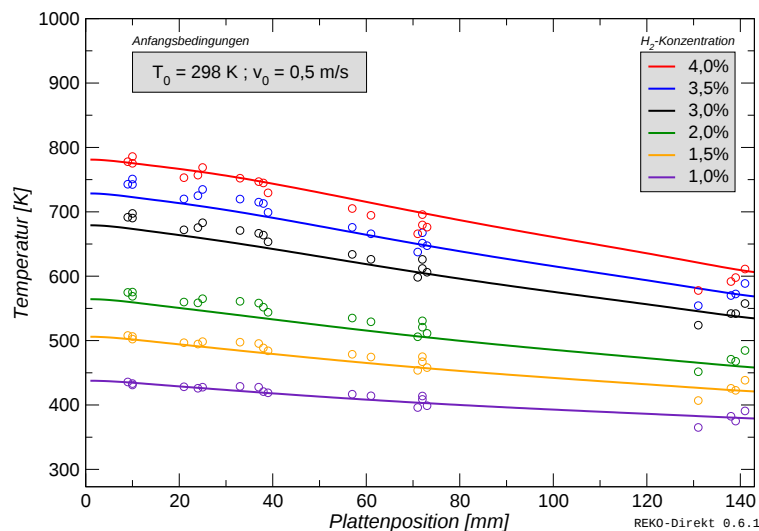
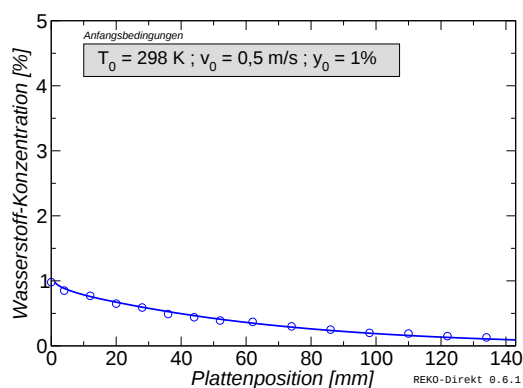
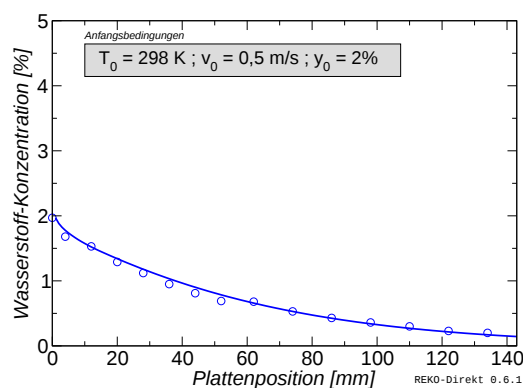


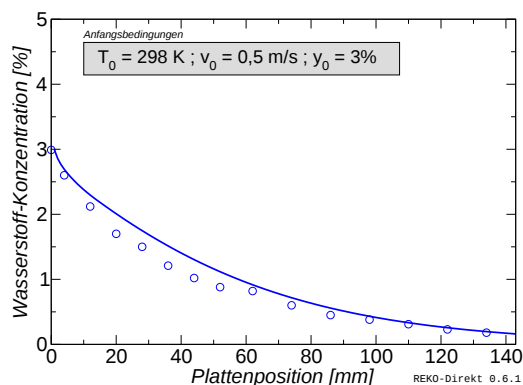
Abbildung 5.5: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen



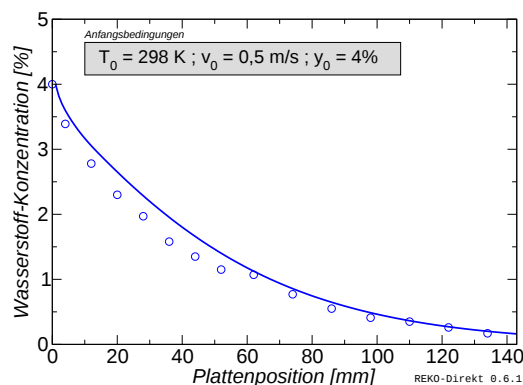
a



b



c



d

Abbildung 5.6: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von
(a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

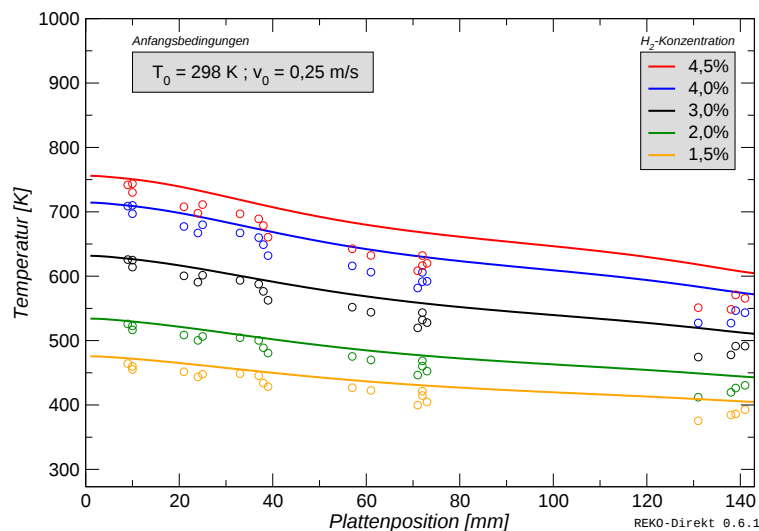


Abbildung 5.7: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

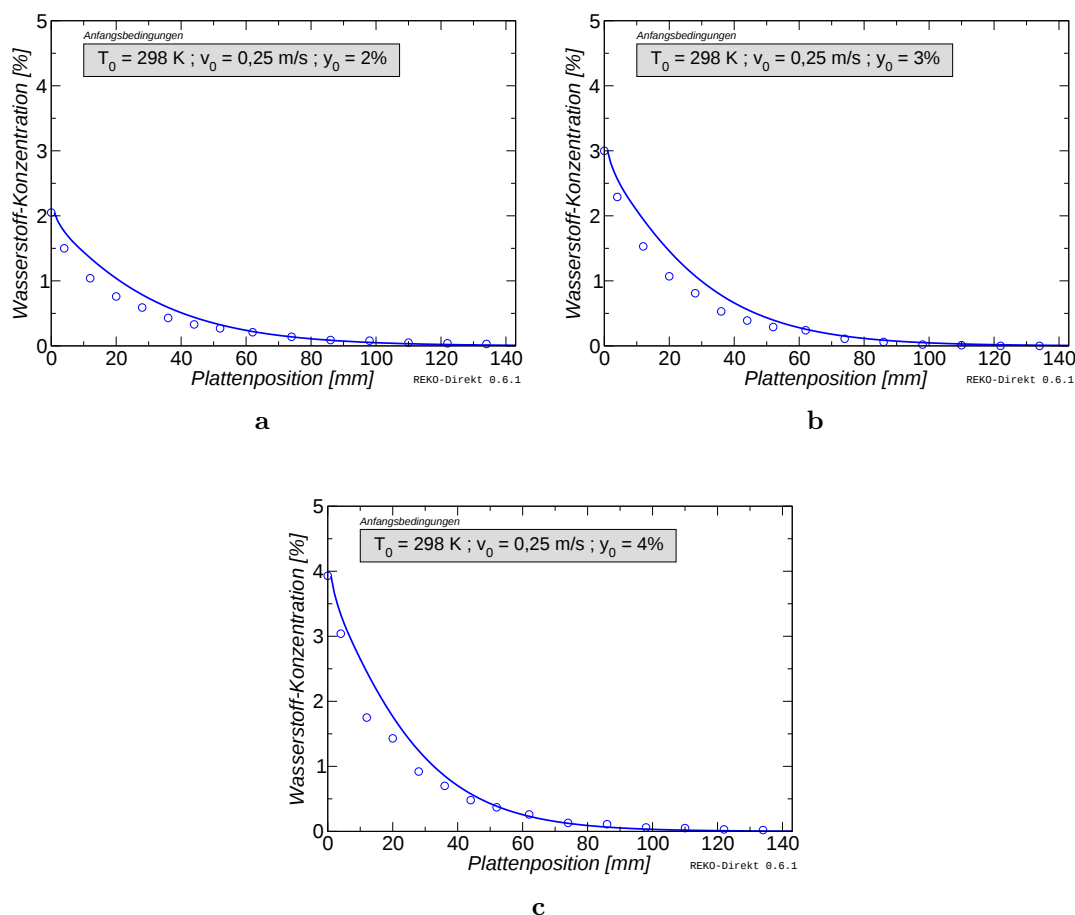


Abbildung 5.8: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 3\%$ und (c) $y_0 = 4\%$.

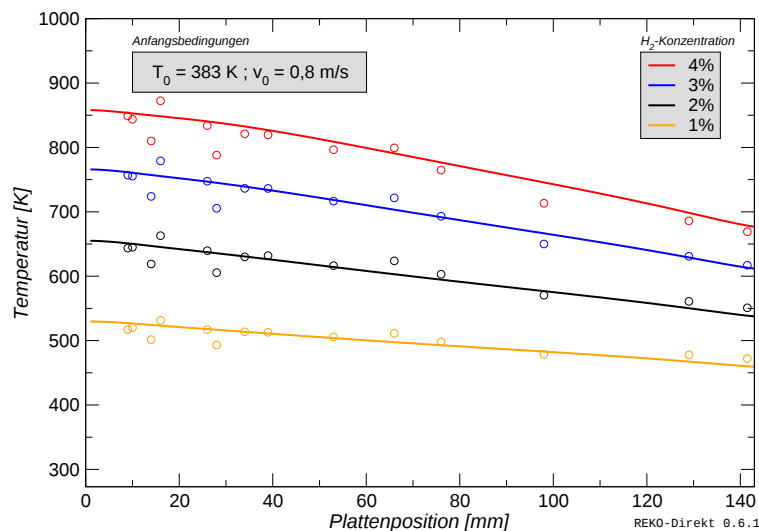
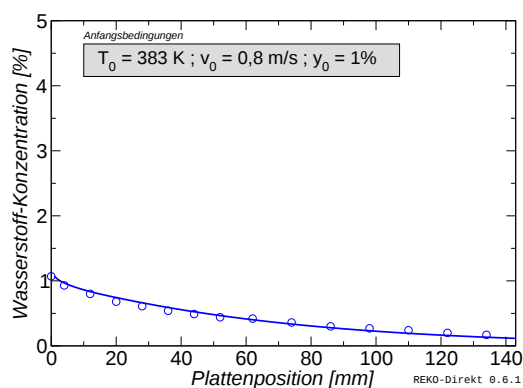
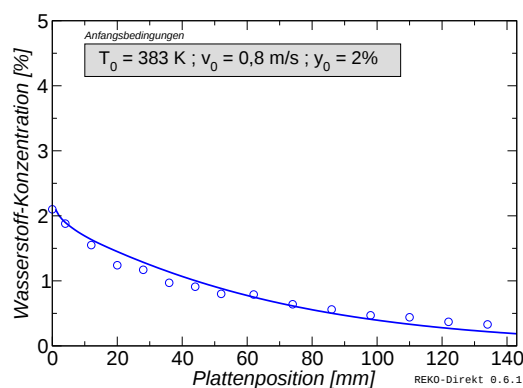


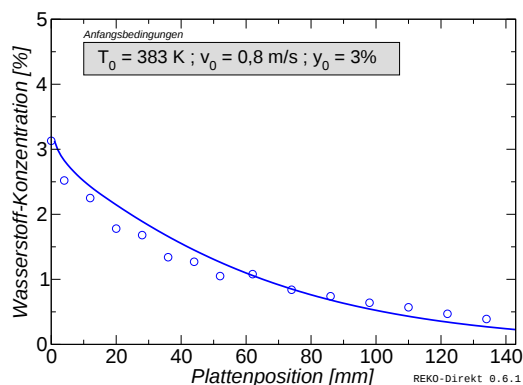
Abbildung 5.9: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen



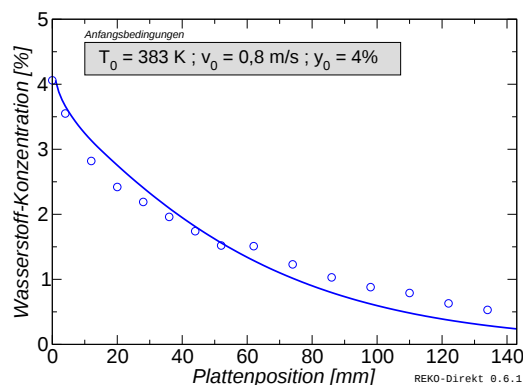
a



b



c



d

Abbildung 5.10: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

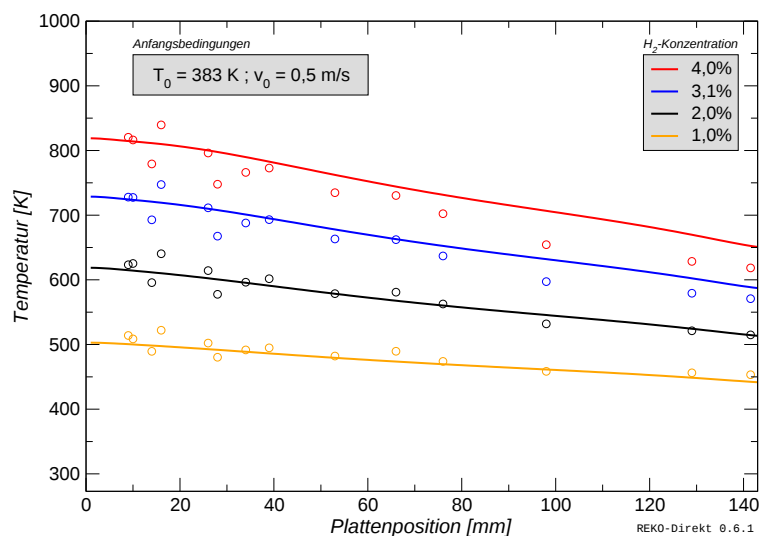
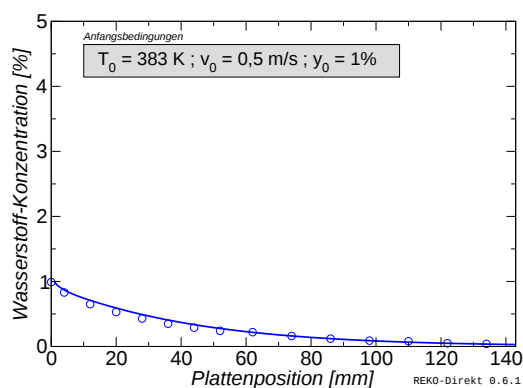
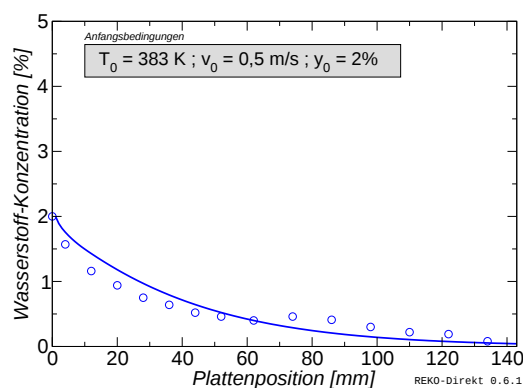


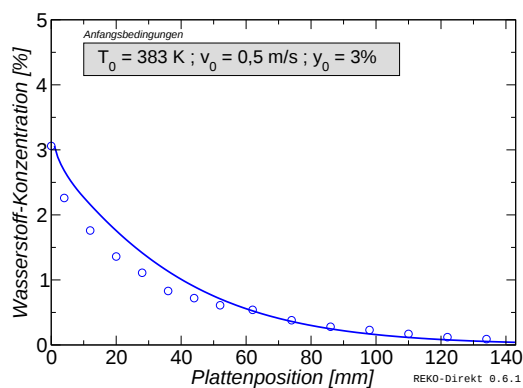
Abbildung 5.11: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen



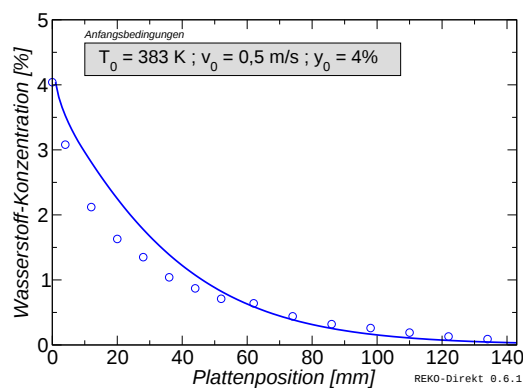
a



b



c



d

Abbildung 5.12: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

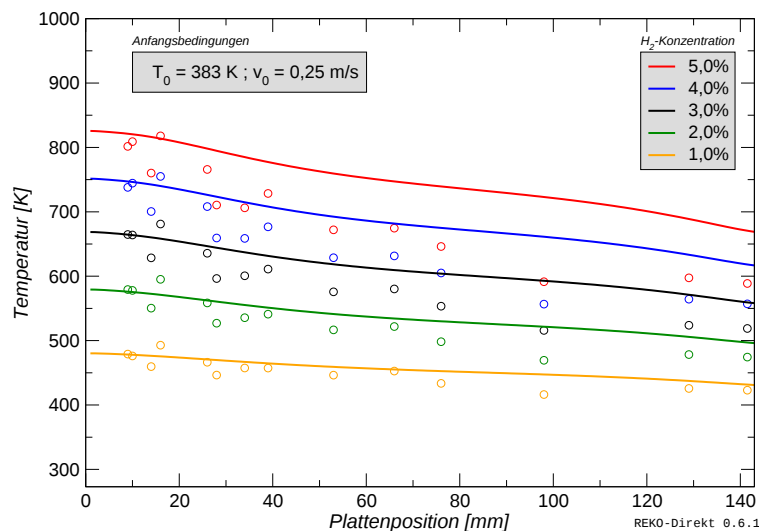
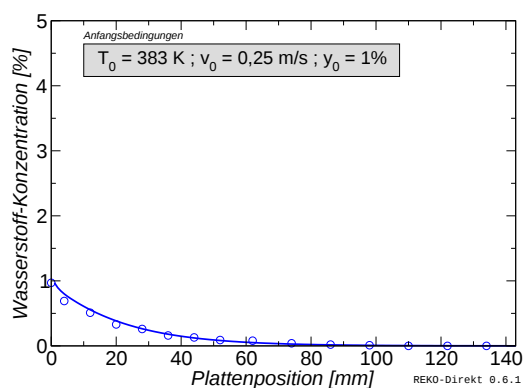
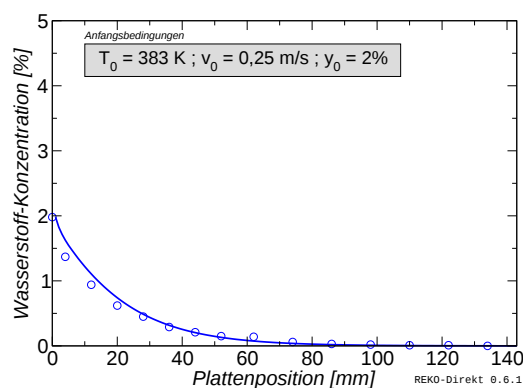


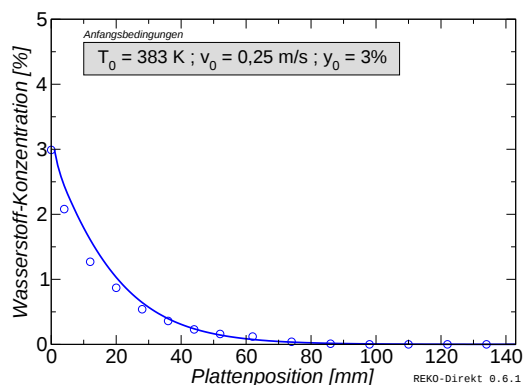
Abbildung 5.13: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen



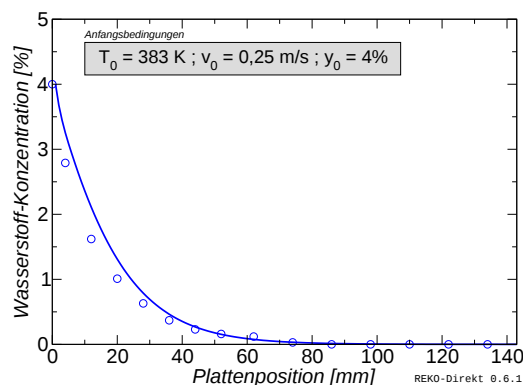
a



b



c



d

Abbildung 5.14: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

5.2 Berechnung unter Sauerstoffverarmung

Die Bewertung des Umsetzungsvermögens eines Rekombinators unter Sauerstoffverarmung ist eine weitere wichtige Aufgabe für das Simulationsprogramm. Im Verlauf eines Störfallszenarios ist es denkbar, dass es mangels eines ausreichenden Sauerstoffangebots zu einer Reduzierung der Abbauleistung des Rekombinators kommt. Dies ist insbesondere nach längerer Laufzeit zu erwarten, wenn lokal ein Großteil des Sauerstoffs aufgebraucht ist. Die Reaktion ist dann nicht mehr alleine von der Wasserstoff-Diffusion abhängig. Es soll im Folgenden gezeigt werden, wie REKO-Direkt diesen Effekt berücksichtigt. Dabei wird zunächst als Referenz eine erste Rechnung mit Luft, d.h. mit einem Sauerstoffanteil von $y_{O_2} = 20\%$ durchgeführt. Bei den anschließenden Berechnungen wird der Sauerstoffanteil im Gas stetig reduziert. Gestartet wird mit einer O_2 -Konzentration von $y_{O_2} = 5\%$, die in 1%-Schritten bis auf $y_{O_2} = 1\%$ verringert wird. Alle Berechnungen wurden mit einer Gaseintrittstemperatur von $T_0 = 298\text{ K}$, einer Strömungsgeschwindigkeit $v_0 = 0,25\text{ m/s}$ und unterschiedlichen H_2 -Konzentrationen (6%, 4%, 2%) durchgeführt.

Abbildung 5.15 zeigt die berechnete und gemessene Temperaturverteilung entlang der Platten bei einem Sauerstoffanteil von 20%. Die Schaubilder, die die Konzentrationsverläufe wiedergeben (Abbildung 5.16), werden um die Sauerstoffverteilung ergänzt. Wie die Standardversuche, werden auch diese Berechnungen mit guter Genauigkeit von den Messungen bestätigt.

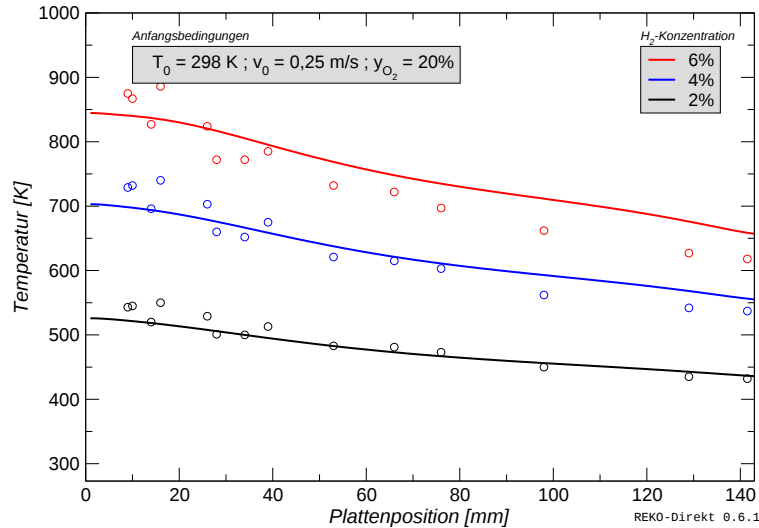


Abbildung 5.15: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 20\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

Um die Berechnung unter Sauerstoffverarmung zu verdeutlichen, zeigt 5.19 die aus den Diffusionsraten von Sauerstoff und Wasserstoff berechneten Reaktionsraten für eine Eintrittskonzentration von 5% und eine H_2 -Eintrittskonzentration von 6%. Die blaue Kurve gibt die Rate von Wasserstoff und die rote Kurve von Sauerstoff wieder. Nach der Modellvorstellung wird die Diffusionsrate desjenigen Reaktionspartners als Reaktionsrate

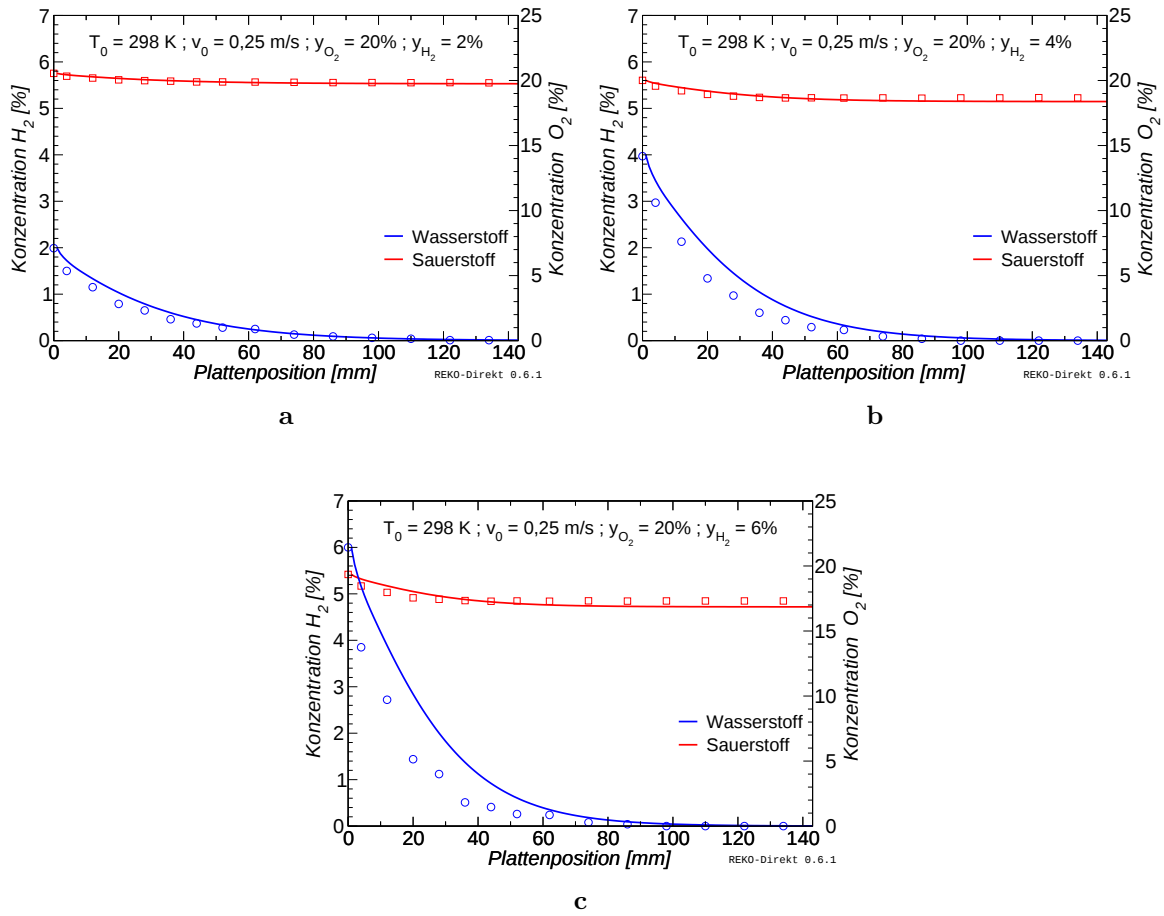


Abbildung 5.16: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 20\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 4\%$ und (c) $y_0 = 6\%$.

gewählt, die den kleineren Wert ergibt. Dabei ist zu beachten, dass aufgrund der Stöchiometrie der Reaktionsgleichung die Diffusionsrate von Sauerstoff mit 2 multipliziert wird. Der gepunktete Verlauf ist die Reaktionsrate, die REKO-Direkt für die katalytische Reaktion berechnet. Im vorderen Bereich der Platte entspricht die Reaktionsrate der zweifachen Diffusionsrate von Sauerstoff. Somit wird der antransportierte Wasserstoff nicht vollständig umgesetzt. Erst nach ungefähr 60 mm hat sich der Wasserstoffanteil soweit reduziert, dass der Wasserstoff die begrenzende Eduktkomponente ist und somit keine Sauerstoffverarmung mehr existiert.

Abbildung 5.17 zeigt die Berechnung der Plattentemperatur bei einem Sauerstoffanteil von 5% im Gas. Bei den Berechnungen mit 2% und 4% Wasserstoffanteil steht noch genügend Sauerstoff zur Verfügung, um den gesamten Wasserstoff zu rekombinieren. Die Temperaturkurve für die Rechnung mit 6% H_2 -Anteil zeigt eine deutliche Temperaturreduzierung aufgrund der unvollständigen Umsetzung.

Die Abbildung 5.18 zeigt die Konzentrationsverläufe des Versuchs. Die blaue Kurve gibt den Wasserstoffanteil und die rote Kurve den Sauerstoffanteil wieder. Die Abbaukurven

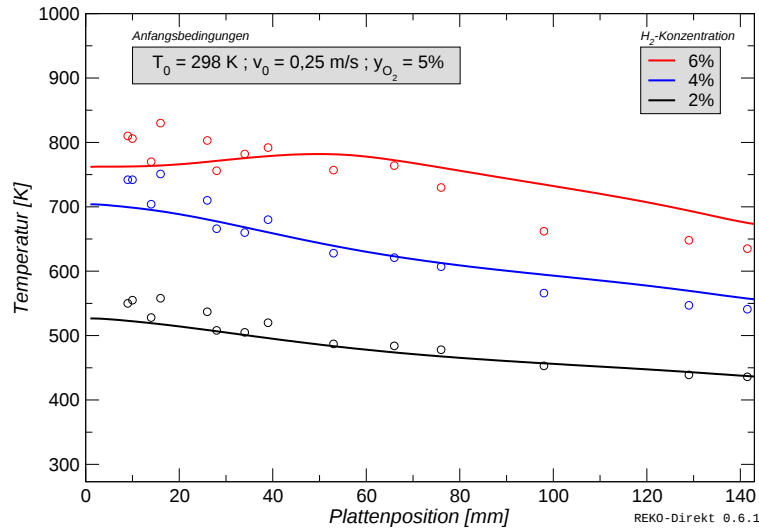


Abbildung 5.17: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{\text{O}_2} = 5\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

beider Reaktionspartner werden in guter Übereinstimmung zum Experiment berechnet.

In den folgenden Berechnungsreihen wird die Sauerstoff-Konzentration stetig verringert. Abbildung 5.20 zeigt die Temperaturverläufe bei einem Sauerstoffanteil von 4% im Gas. Das Absinken der 6%-Kurve erstreckt sich über die vordere Hälfte der Platte. Somit steht erst ab der zweiten Hälfte ausreichend Sauerstoff zur Verfügung, um den Wasserstoff effektiv abreichern zu können. Die zugehörigen Konzentrationsverläufe in Abbildung 5.21 verdeutlichen, dass nur ein kleiner Restgehalt von Sauerstoff und Wasserstoff im Gasauslass zurück bleibt. Auch die 4%-Kurve zeigt einen leichten Temperaturrückgang im Bereich der Vorderkante im Vergleich zum Referenzverlauf in Abbildung 5.3, der auf eine Sauerstoffverarmung hindeutet. Für einen H_2 -Anteil von 2% im Gas ist für eine vollständige Rekombination ausreichend Sauerstoff vorhanden.

Bei einem Sauerstoffanteil von 3% im Gas (Abbildung 5.22) und einem Wasserstoffanteil von 6% herrscht über die gesamte Plattenhöhe Sauerstoffverarmung. Der Konzentrationsverlauf in Abbildung 5.23 zeigt am oberen Ende der Platte noch einen hohen Restgehalt an Wasserstoff im Gas. Auch die 4%-Kurve zeigt, dass erst kurz vor dem Gasaustritt der Wasserstoff vollständig umgesetzt wird. Das Temperaturniveau der 4%- und der 2%-Kurve ist ungefähr gleich. Für den 2%-Versuch findet noch keine Sauerstoffverarmung statt.

Wird der Sauerstoffanteil noch weiter auf 2% reduziert, herrscht für den 6%- und 4%-Versuch über die gesamte Plattenhöhe Sauerstoffverarmung. Beide Temperaturverläufe sind nahezu gleich (Abbildung 5.24). Auch die Konzentrationsverläufe zeigen, dass ein hoher Restanteil an Wasserstoff im Gas zurückbleibt. Auch der 2%-Versuch findet nun zum Teil unter Sauerstoffverarmung statt. Der Konzentrationsverlauf zeigt dennoch einen vollständigen Abbau des Wasserstoffs am oberen Ende der Platte.

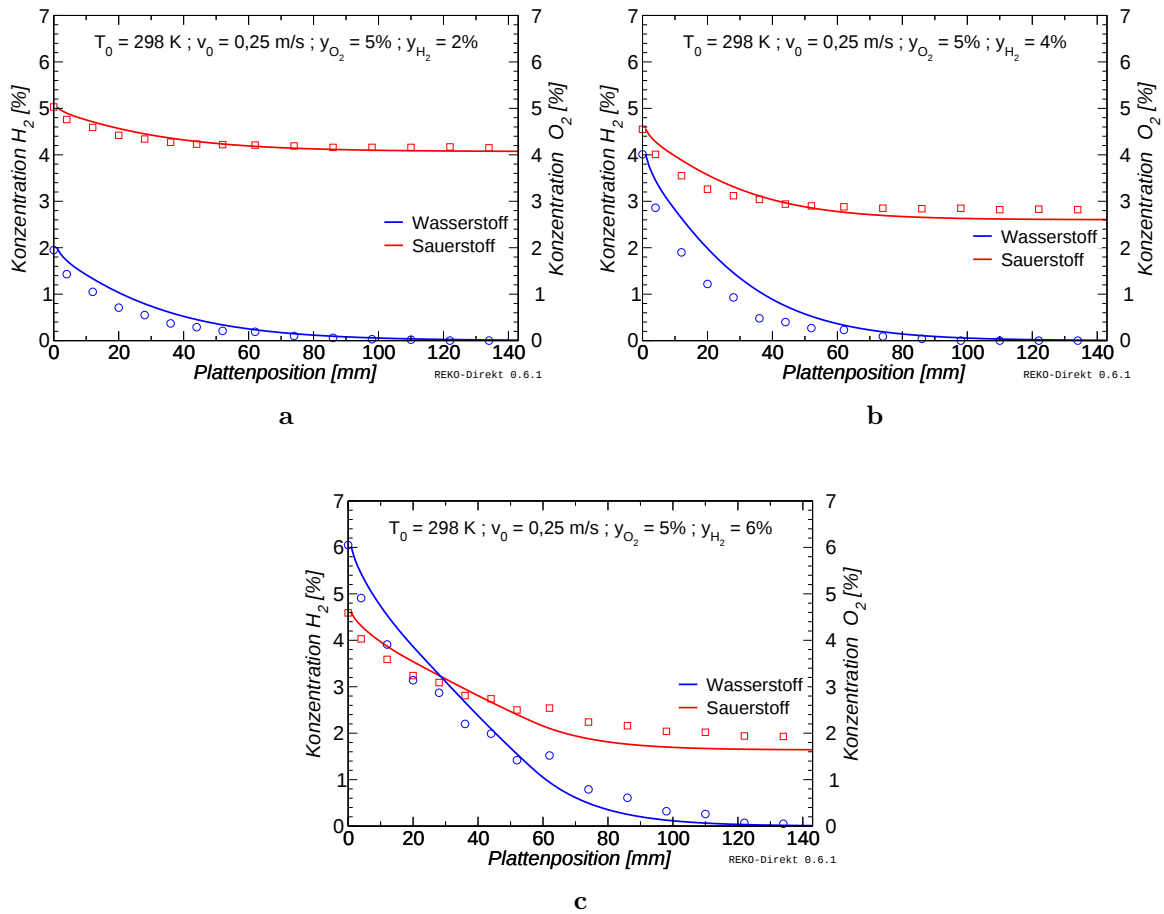


Abbildung 5.18: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 5\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 4\%$ und (c) $y_0 = 6\%$.

Bei den letzten Berechnungen wird mit einem Sauerstoffanteil von 1% im Gas gerechnet. Bei den drei verschiedenen Wasserstoffanteilen herrscht über die gesamte Plattenhöhe Sauerstoffverarmung. Die Temperaturen der drei Kurven bewegen sich auf gleichem Niveau (Abbildung 5.26). Die katalytische Reaktion setzt bei den drei Fällen die gleiche Wärmemenge frei. Auch die Konzentrationsverläufe lassen erkennen, dass in allen drei Fällen die gleiche Wasserstoffmenge umgesetzt wird. Die Differenz von Gaseinlass zu Gasauslass liegt bei etwa 1,5% H_2 .

Wie die vorhergehenden Berechnungen zeigen, berücksichtigt REKO-Direkt den Fall, dass nicht nur Wasserstoff das die Reaktion begrenzende Edukt sein kann, sondern auch Sauerstoff. Die Berechnungen werden mit guter Genauigkeit von den Messergebnissen bestätigt.

Zusammenfassend zeigen die Berechnungen, dass es zu jeder Wasserstoffkonzentration eine kritische Sauerstoffkonzentration gibt, ab der die Sauerstoffverarmung einsetzt. Für 6% Wasserstoffanteil beträgt die kritische Sauerstoffkonzentration 6%. Die Rekombination wird aufgrund der langsameren Sauerstoff-Diffusion, die nun überwiegt, verlangsamt. Der Wasserstoff wird somit langsamer oder sogar gar nicht mehr abgebaut. Die Reaktionszone

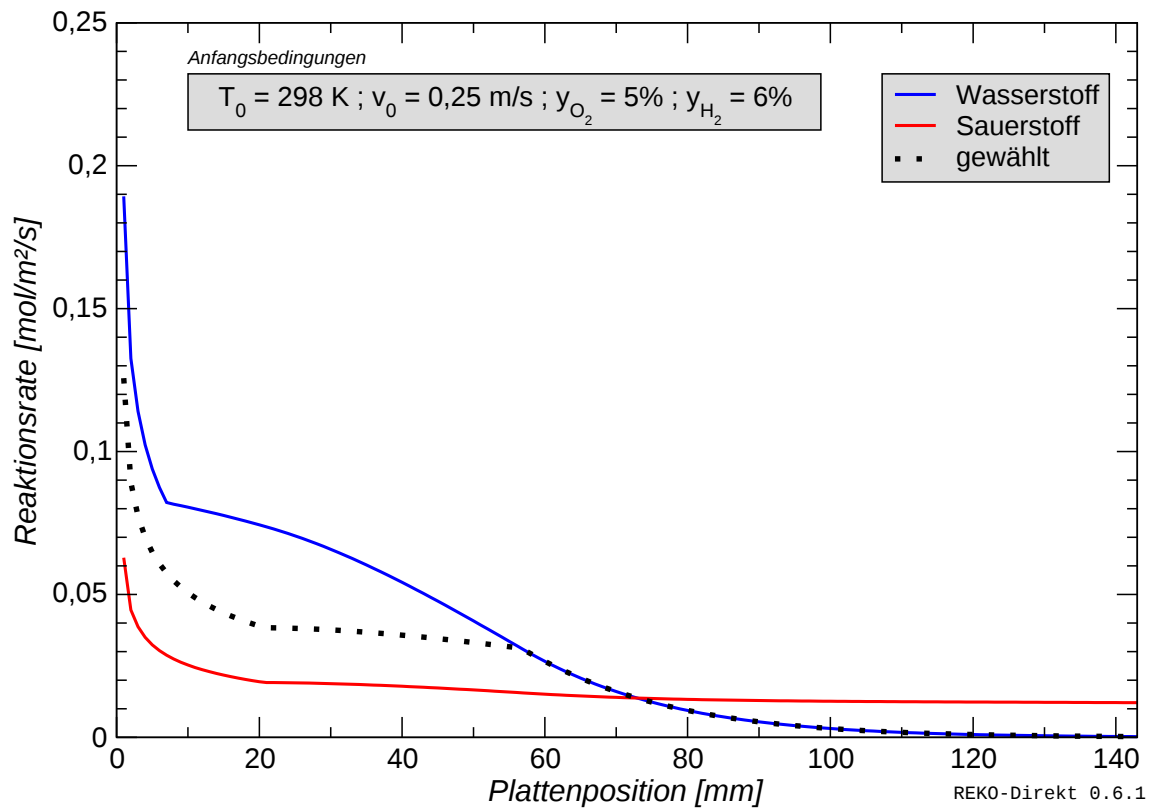


Abbildung 5.19: Reaktionsrate bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$, $y_{\text{O}_2} = 5\%$ und $y_{\text{H}_2} = 6\%$

erstreckt sich über die vollständige Plattenhöhe, während sie bei den Versuchen mit Luft unter gleichen Bedingungen sich im unteren Drittel befindet. Dieser Effekt macht sich in der Temperaturverteilung bemerkbar. Die Unterschiede zwischen der Minimum- und der Maximumtemperatur werden immer geringer.

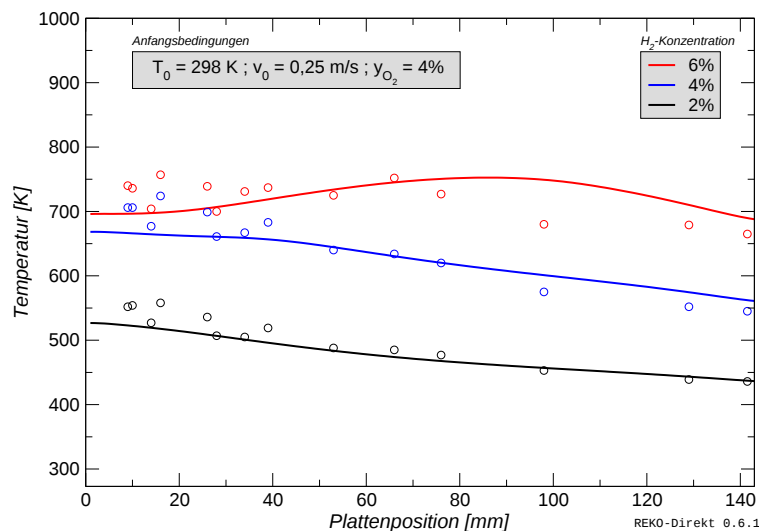


Abbildung 5.20: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 4\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

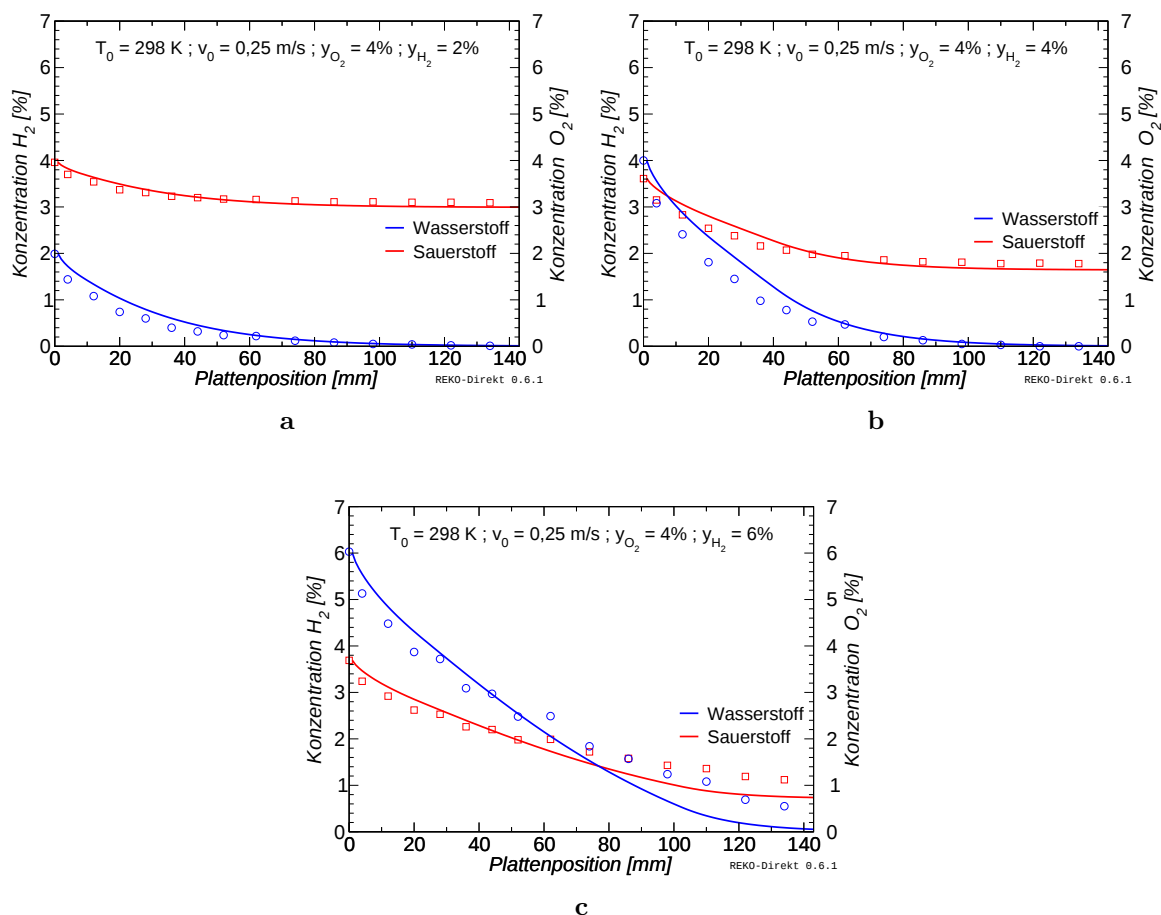


Abbildung 5.21: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 4\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 4\%$ und (c) $y_0 = 6\%$.

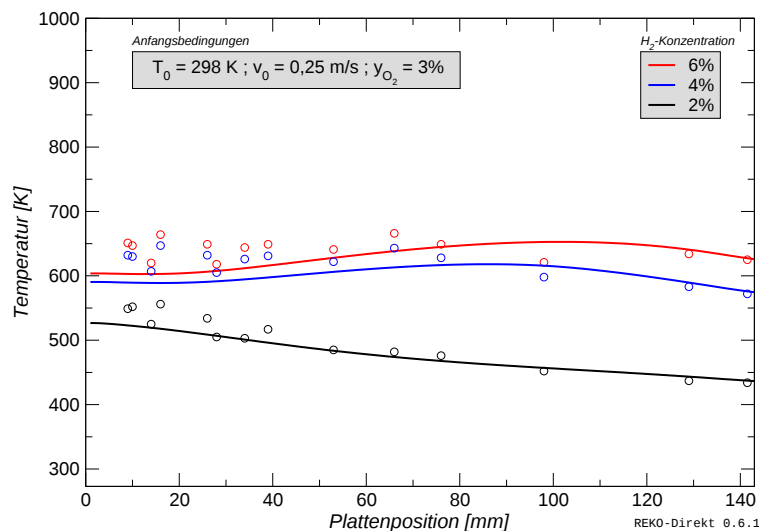


Abbildung 5.22: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 3\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

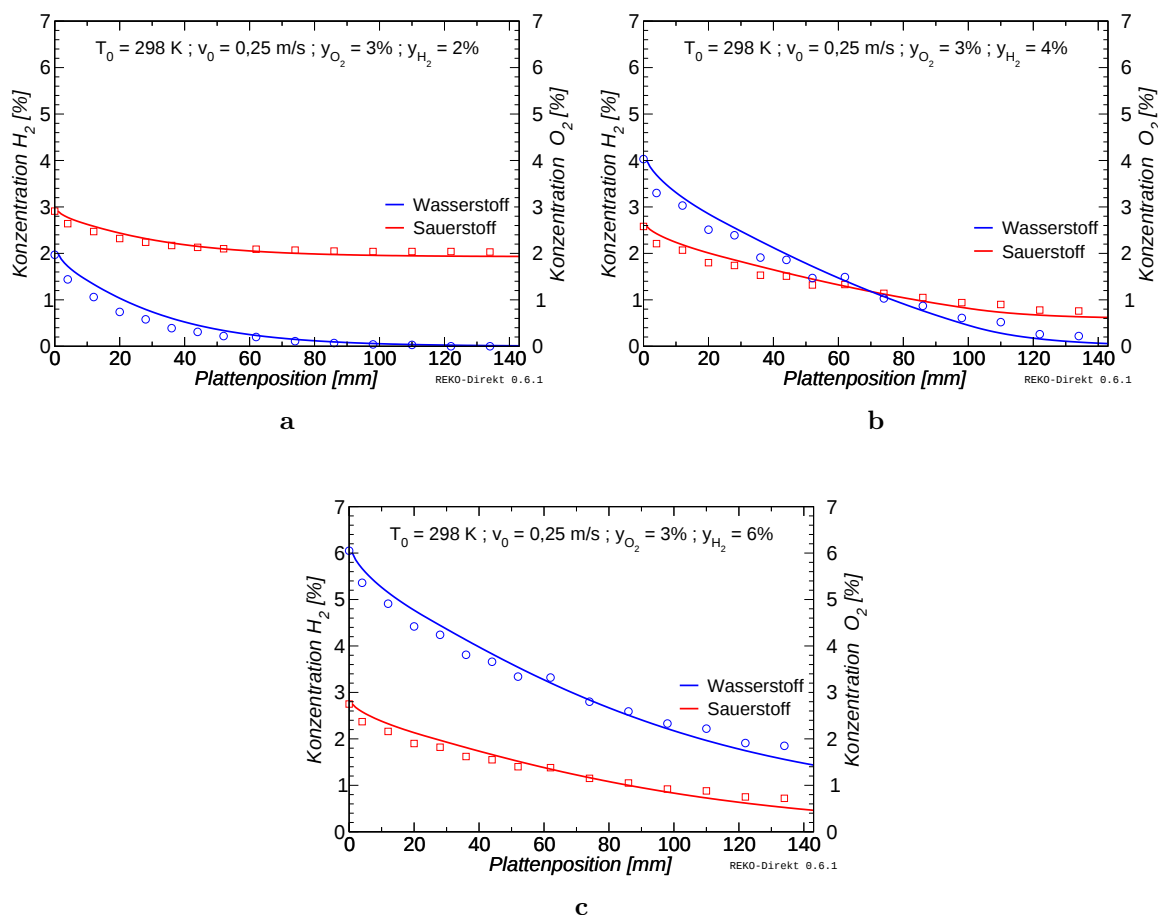


Abbildung 5.23: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 3\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 4\%$ und (c) $y_0 = 6\%$.

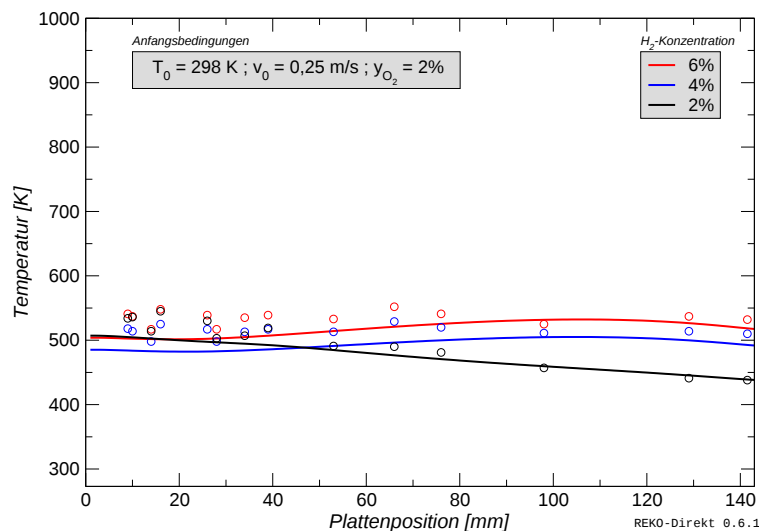


Abbildung 5.24: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 2\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

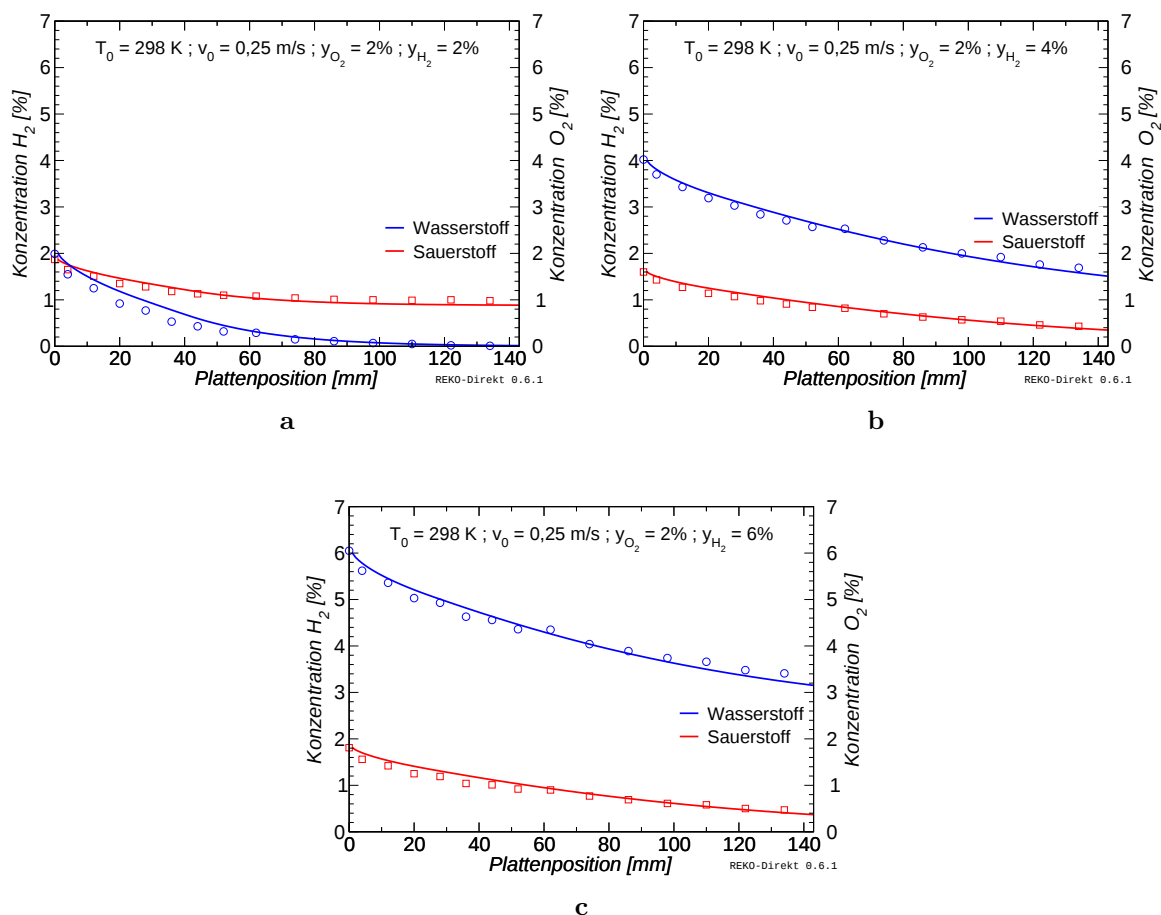


Abbildung 5.25: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 2\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 4\%$ und (c) $y_0 = 6\%$.

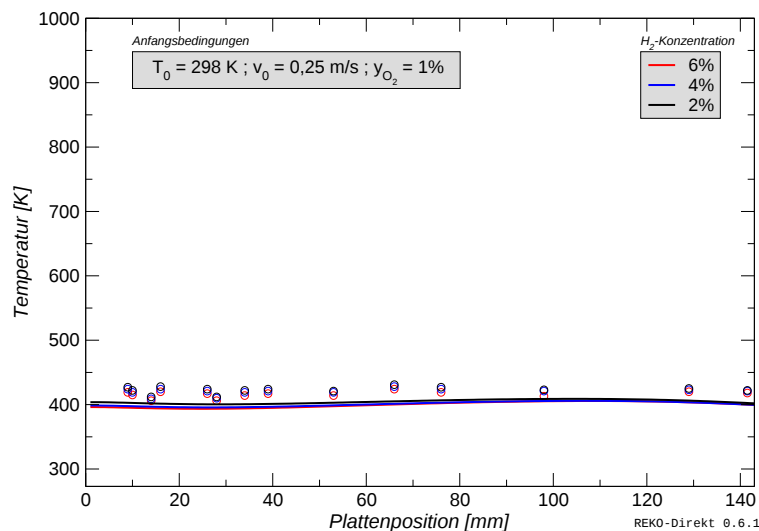


Abbildung 5.26: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 1\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

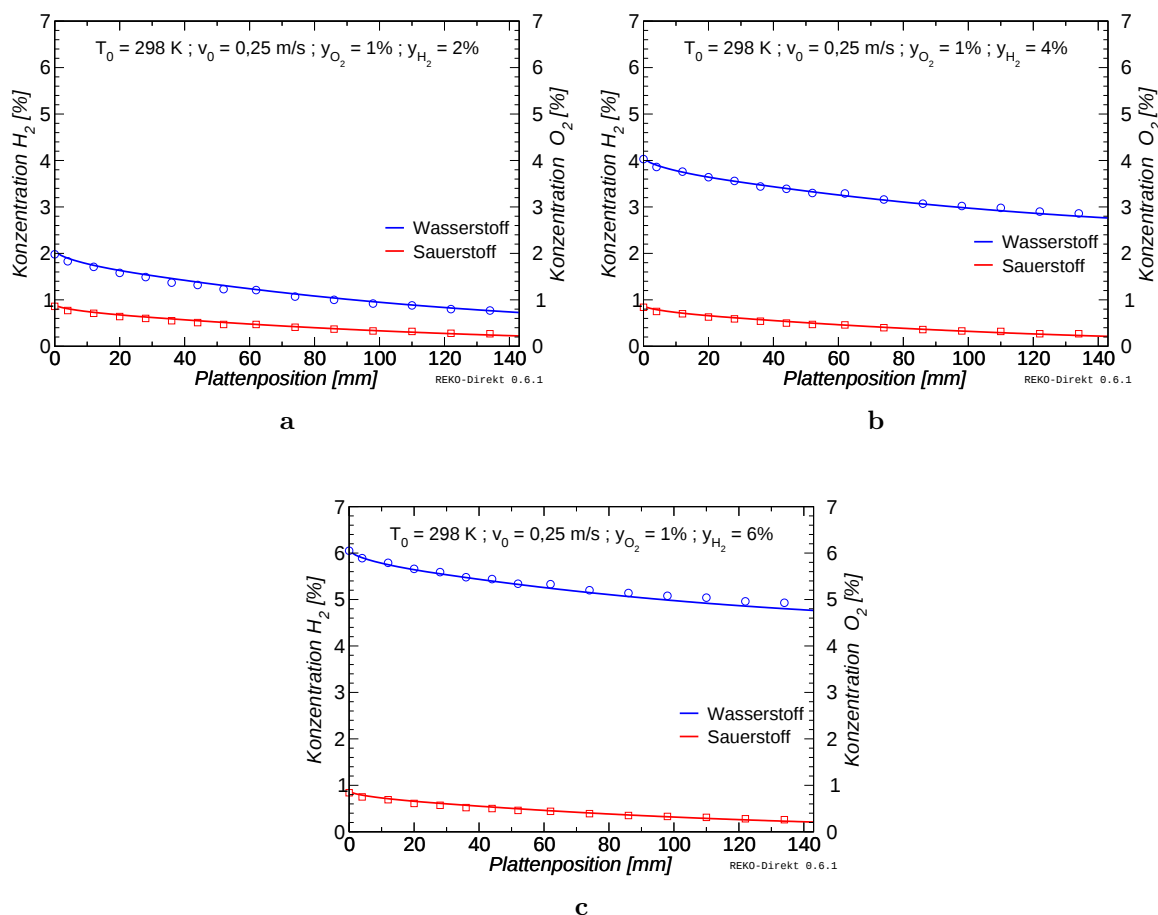


Abbildung 5.27: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{O_2} = 1\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration (a) $y_0 = 2\%$, (b) $y_0 = 4\%$ und (c) $y_0 = 6\%$.

5.3 Rechnungen mit Dampf

Im Verlauf schwerer Störfälle wird der Wasserstoff in eine dampfhaltige Atmosphäre freigesetzt. In den experimentellen Untersuchungen wurde gezeigt, dass Wasserdampf keine wesentliche Beeinträchtigung der katalytischen Reaktion darstellt. Zur Verdeutlichung, dass das Modell den Dampfeinfluss richtig abbildet, werden im Folgenden Rechnungen vorgestellt, die eine Anfangskonzentration von Wasserdampf beinhalten. Alle Rechnungen werden mit einer Gaseintrittstemperatur von $T_0 = 383\text{ K}$ durchgeführt. Zunächst werden bei konstanter Dampfkonzentration von 20% die Strömungsgeschwindigkeiten von $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ bis $v_0 = 0,25\text{ m/s}$ variiert. Die letzte Rechnung berücksichtigt eine hohe Dampfkonzentration von 60%. Versuche am Prüfstand REKO-3 kamen zu dem Ergebnis, dass der Einfluss des Wasserdampfs auf den Rekombinator nur minimale Auswirkungen besitzt.

Die erste Rechnung wird mit der höchsten Strömungsgeschwindigkeit von $0,80\text{ m/s}$ durchgeführt (Abbildung 5.28). Die Temperaturen unterscheiden sich nur geringfügig von den Standardversuchen ohne Dampfanteil (siehe Abbildung 5.9). Es wird deutlich, dass der Dampf mit einer Konzentration von 20% im Gas keinen Einfluss auf die Temperaturverteilung hat. Abbildung 5.29 lässt auch keinen Einfluss des Dampfanteils auf die Konzentrationsverteilung des Wasserstoffs erkennen.

Bei der folgenden Rechnung wird die Strömungsgeschwindigkeit auf $0,5\text{ m/s}$ reduziert. Bei den Temperaturprofilen (Abbildung 5.30) ist eine Tendenz zu höheren Temperaturen im Vergleich zu den Standardversuchen bei gleichen Bedingungen zu erkennen. Dies wird durch die Konzentrationsprofile aus Abbildung 5.31 bestätigt. Es ist zu erkennen, dass der Wasserstoff im Vergleich zu den Standardversuchen schneller abgebaut wird.

Noch deutlicher wird der Effekt bei einer Strömungsgeschwindigkeit von $0,25\text{ m/s}$ erkennbar. Hier liegen die Temperaturen am Anfangsbereich der Platte bei zum Beispiel 4% Wasserstoffanteil um ungefähr 10 K höher als bei den Standardversuchen (Abbildung 5.32). Auch die Konzentrationskurve von 4% Wasserstoffanteil zeigt, dass der gesamte Wasserstoff schon nach ungefähr 60 mm nahezu vollständig umgesetzt wird (Abbildung 5.33). Bei dem Standardversuch ist ein vollständiger Umsatz erst nach 70 mm zu erkennen.

Wird der Dampfanteil nun weiter auf 60% erhöht, gibt es sowohl auf die Temperaturverläufe als auch auf die Konzentrationsverläufe (Abbildung 5.34 und 5.35) kaum noch einen erkennbaren Effekt.

Die Modellannahme der diffusionskontrollierten Reaktion liefert für den Effekt eine Erklärung, da der Diffusionskoeffizient von Wasserstoff in einem Luft-Wasserdampf-Gemisch mit steigendem Dampfanteil zunimmt. Die Berechnung gibt somit den nur geringen Einfluss des Wasserdampfs auf den Gesamtprozess richtig wieder.

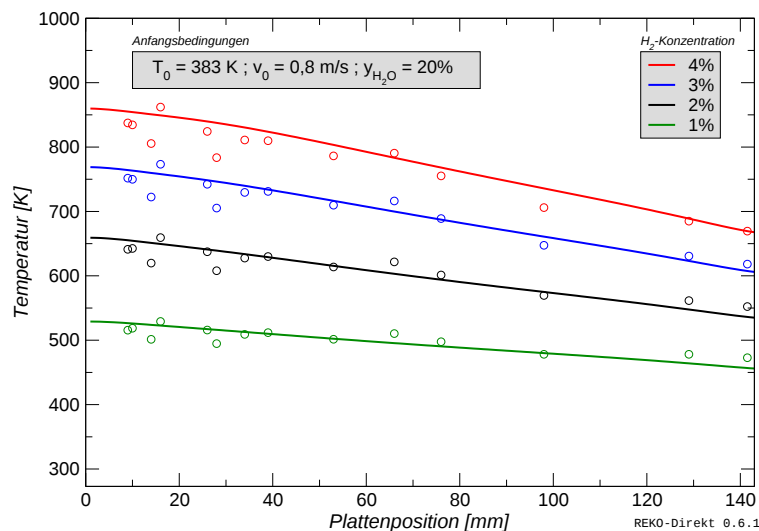
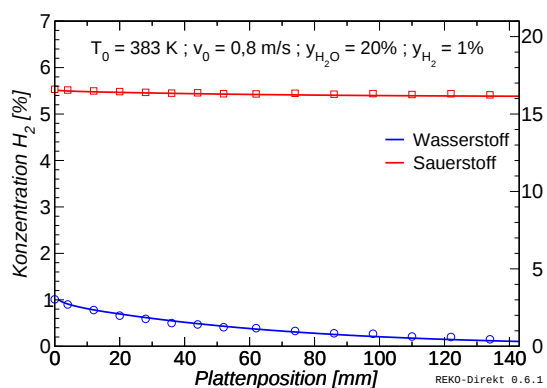
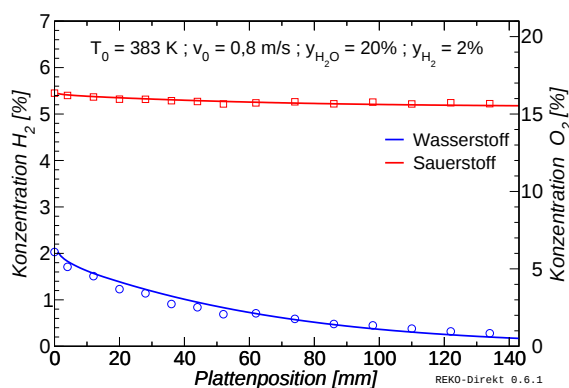


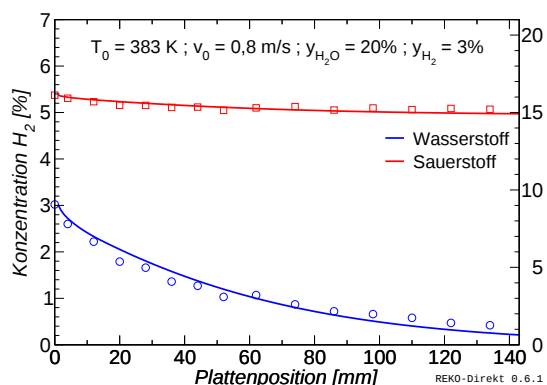
Abbildung 5.28: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383 \text{ K}$, $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$, $y_{\text{H}_2\text{O}} = 20\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen



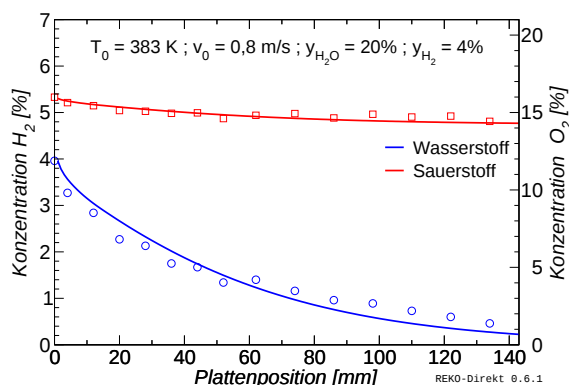
a



b



c



d

Abbildung 5.29: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383 \text{ K}$, $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$, $y_{\text{H}_2\text{O}} = 20\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

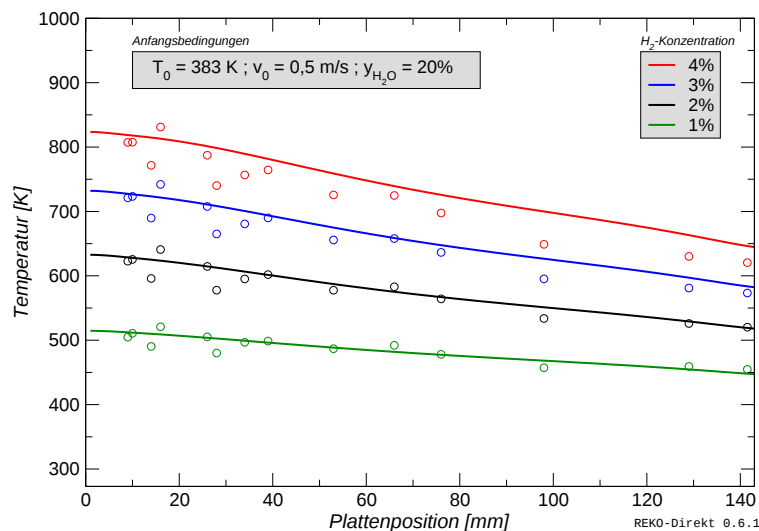


Abbildung 5.30: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$, $y_{H_2O} = 20\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

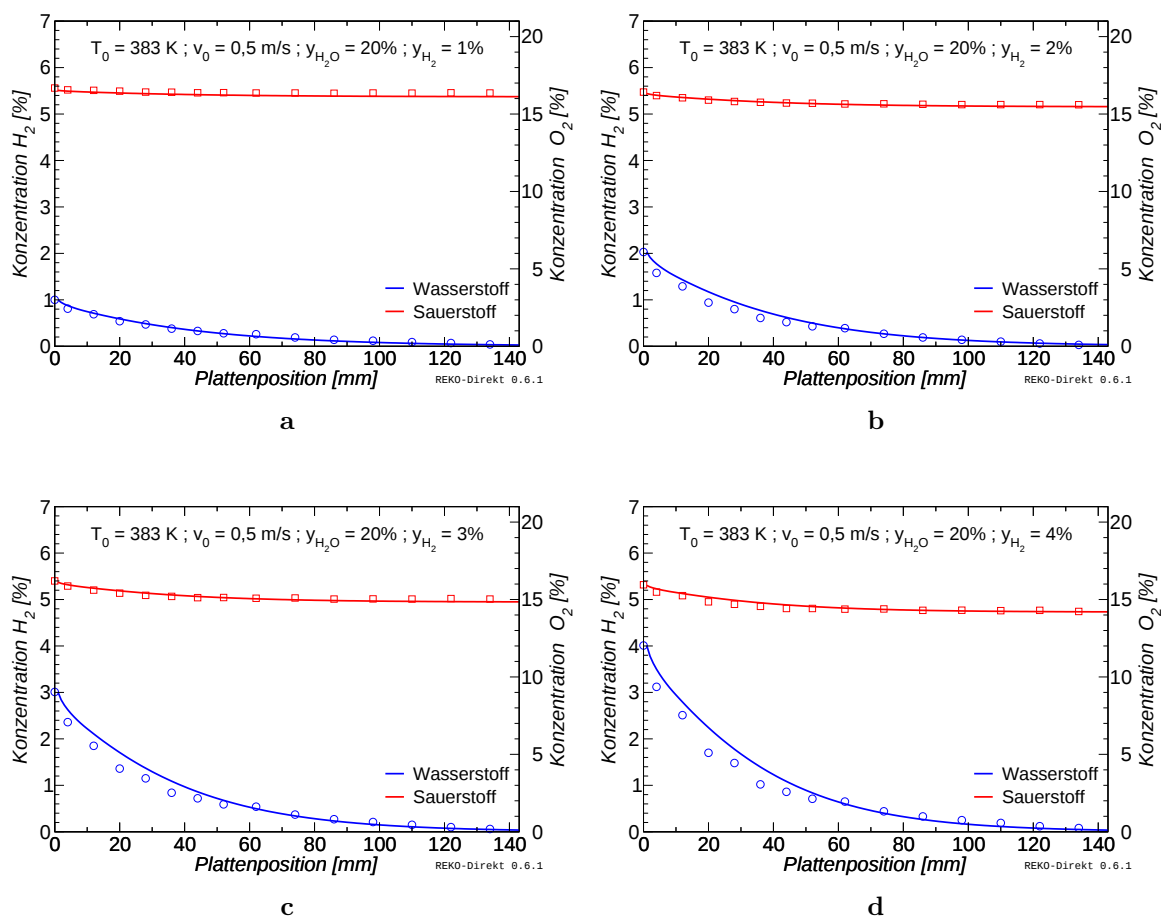


Abbildung 5.31: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$, $y_{H_2O} = 20\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

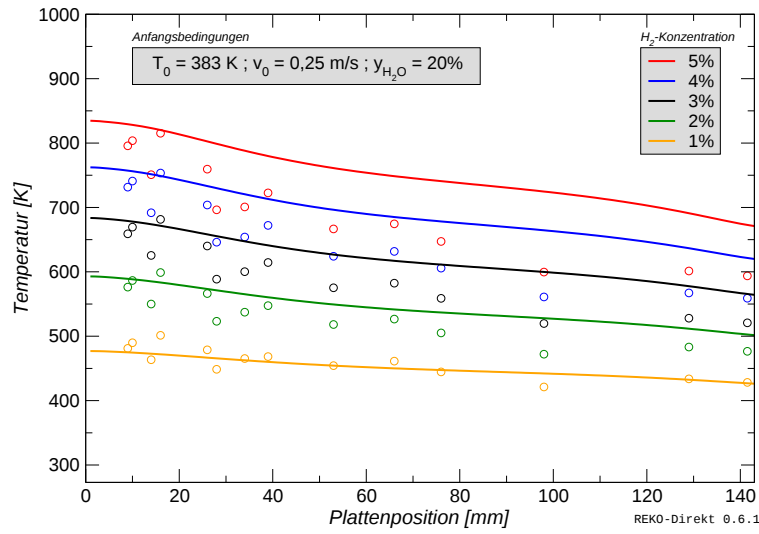


Abbildung 5.32: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{H_2O} = 20\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

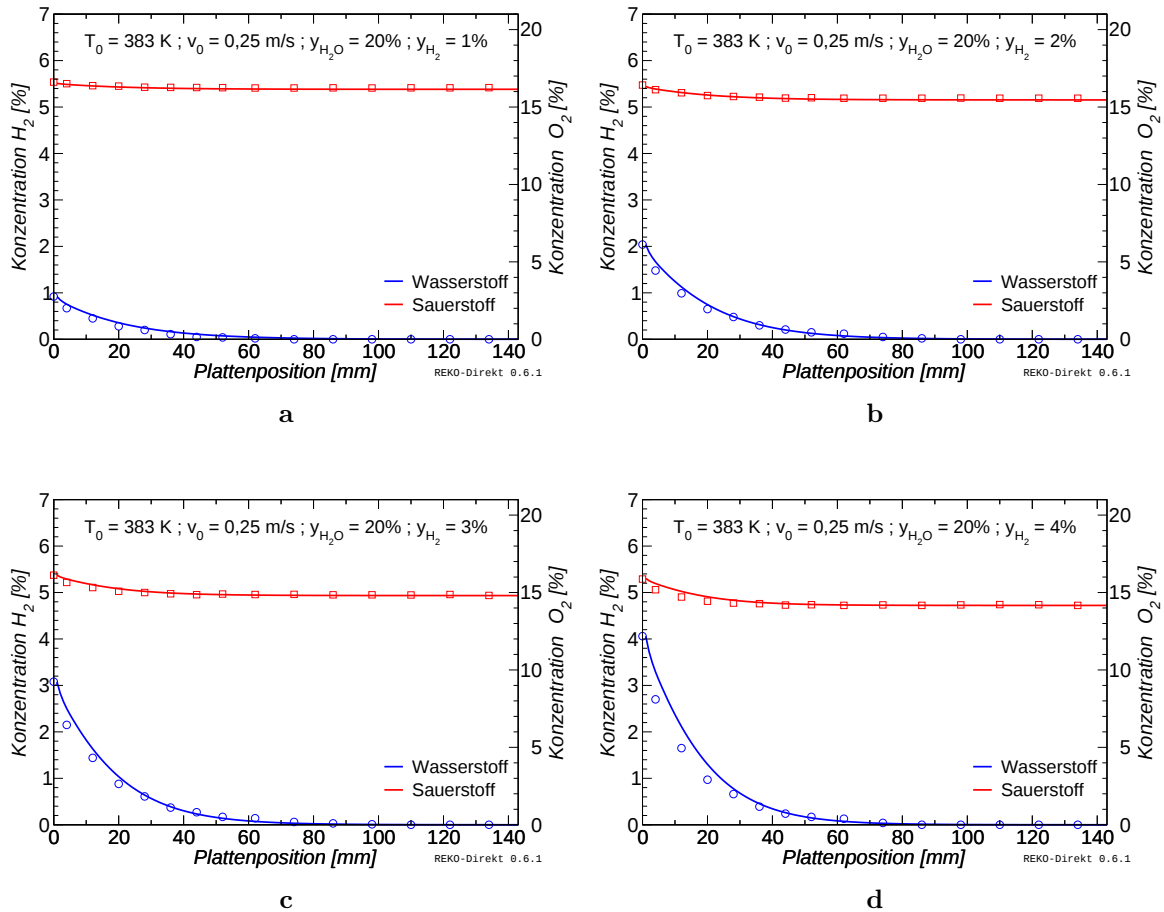


Abbildung 5.33: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{H_2O} = 20\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

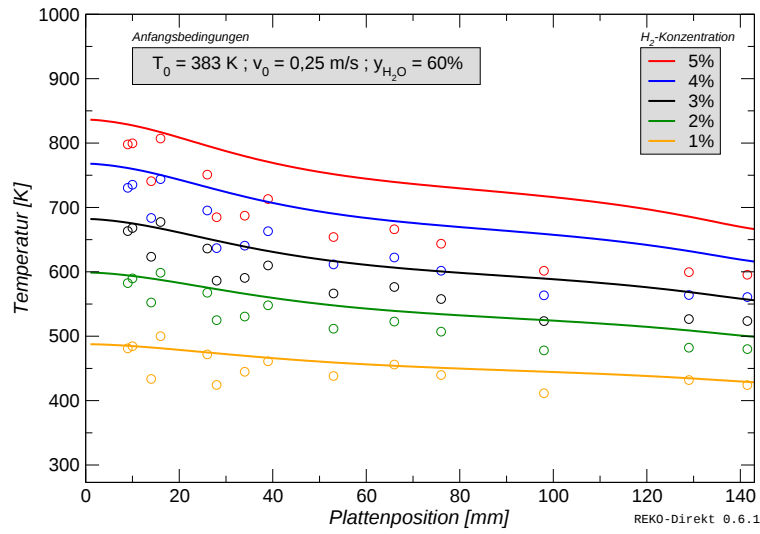


Abbildung 5.34: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{H_2O} = 60\%$ und verschiedenen H_2 -Konzentrationen

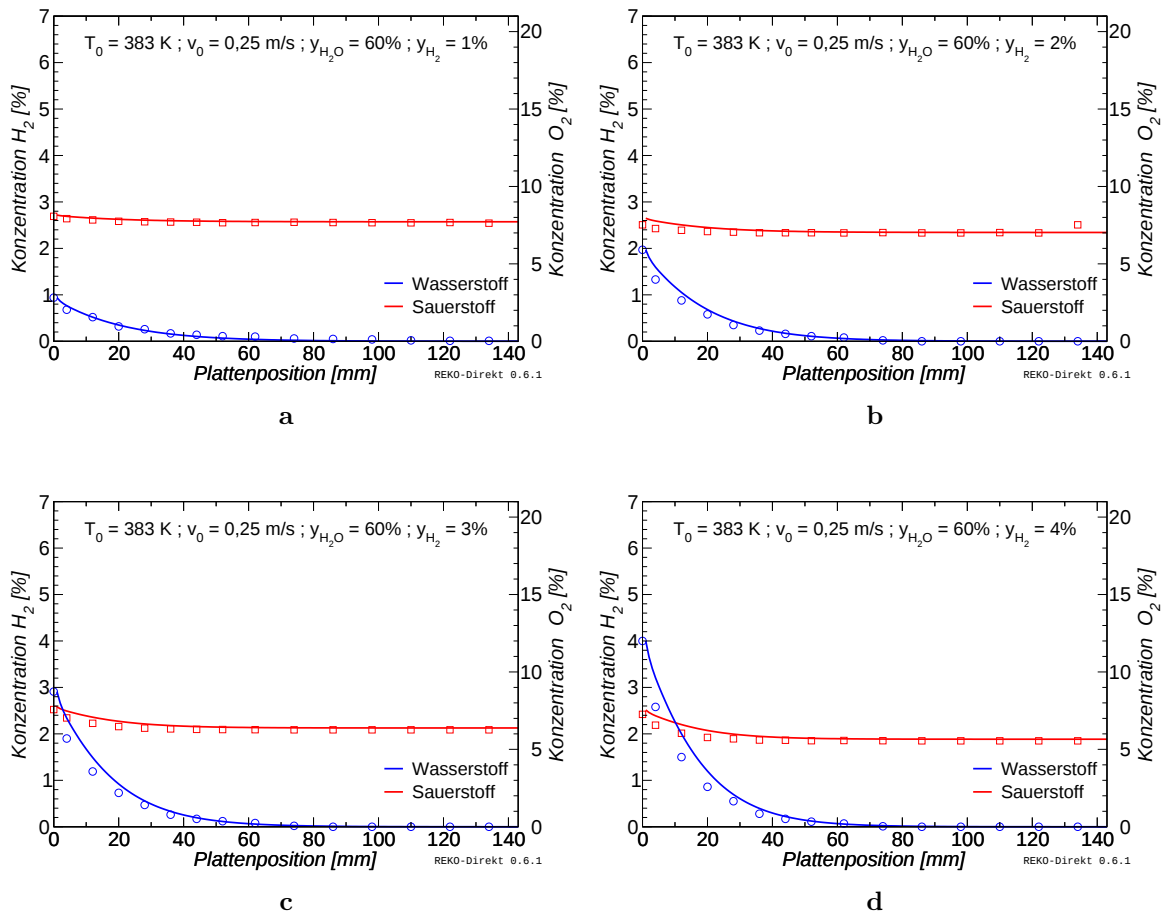


Abbildung 5.35: H_2 -Konzentrationsverteilung im Gaskanal bei $T_0 = 383\text{ K}$, $v_0 = 0,25\text{ m/s}$, $y_{H_2O} = 60\%$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

5.4 Wärmestrahlungsuntersuchungen

In diesem Kapitel wird die Funktionalität des Wärmestrahlungsmodells vorgestellt. Sind beide Platten katalytisch beschichtet, stellen sich aufgrund der Symmetrie die gleichen Temperaturprofile ein. Trotzdem kann auch in diesem Fall die Wärmestrahlung nicht vernachlässigt werden. Abbildung 5.36 zeigt den Vergleich einer berechneten Temperaturverteilung aus den Standardversuchen ($T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$, $y_{H_2} = 3,8\%$, siehe Abbildung 5.2) mit der Temperaturverteilung, die mit im Programm abgeschalteter Wärmestrahlungsrechnung berechnet wird. Die Maximaltemperatur liegt ungefähr 100 K höher. Auch der Einfluss des Strahlungsverlustes an den Plattenrändern ist in diesem Schaubild gut zu erkennen. In der Plattenmitte nähern sich die Temperaturprofile an, während sie sich an den Rändern voneinander entfernen.

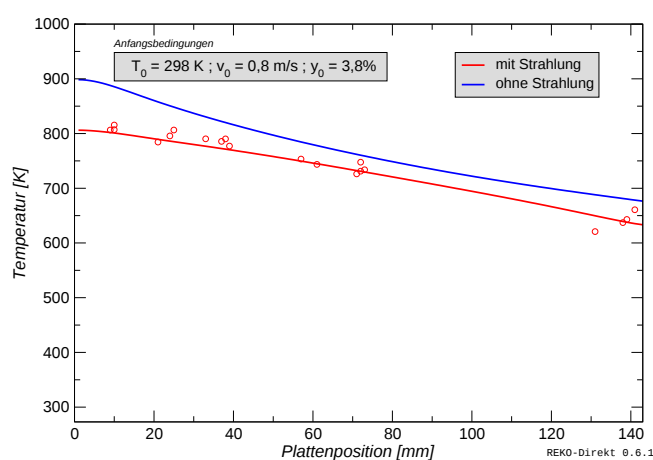


Abbildung 5.36: Vergleich der Temperaturverteilung mit und ohne Strahlungseinfluss

Da nur eine Plattenhälfte eine katalytische Beschichtung aufweist, herrschen nun andere Bedingungen für den Wärmeübergang. Nach [VDI 97] ist bei einer einseitig beheizten Kanalströmung die Nußelt-Zahl zu reduzieren. Für alle Wärmestrahlungsrechnungen wird somit die erste Nußelt-Konstante von $Nu_1 = 9.0492$ auf $Nu_1 = 5,8332$ herabgesetzt. Alle übrigen Werten bleiben unverändert. Im Folgenden werden Rechnungen mit nur einer katalytisch beschichteten Platte vorgestellt. Die vorhandenen Vergleichsdaten stammen aus Messungen, in denen zwischen die mit Katalysator beschichteten Platten jeweils eine nicht beschichtete Platte aus Stahl angebracht wurde [KELM 03]. Im Programm REKO-Direkt wird dafür in der Eingabedatei die Katalysatorbeschichtung der rechten Platte entfernt, sodass sie nur ein Stahlsubstrat darstellt. Aufgrund der zwischengeschobenen wird die Kanalbreite von $8,5\text{ mm}$ auf $3,5\text{ mm}$ verkleinert. Im Experiment entstehen so bei konstantem Volumenstrom aufgrund der verringerten Kanalbreite (zwei Kanäle mit jeweils $3,5\text{ mm}$ Breite anstelle eines Kanals mit $8,5\text{ mm}$ Breite) um den Faktor 1,2 höhere Strömungsgeschwindigkeiten als in den Standardversuchen. Dies wird bei den dargestellten Berechnungen berücksichtigt.

In Abbildung 5.37 sind die Temperaturverläufe sowohl der beschichteten als auch der un-

beschichteten Platte dargestellt, in der das Gasgemisch mit einer Eintrittsgeschwindigkeit von $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$ bei einer Temperatur von $T_0 = 298 \text{ K}$ in den Gaskanal strömt. Die Wasserstoff-Konzentration wird von 1% bis 4% variiert. Die Kreissymbole repräsentieren die Temperaturmesswerte für die beschichtete Platte, die Dreieckssymbole entsprechende Temperaturen auf der unbeschichteten Platte. Die Temperaturverteilung der mit Katalysatormaterial beschichteten Platte zeigt den charakteristischen Kurvenverlauf mit der maximalen Temperatur am unteren Plattenrand, dem leicht s-förmigen Verlauf und der minimalen Temperatur am oberen Plattenrand. Bei dem Temperaturverlauf der unbeschichteten Platte verschiebt sich das Temperaturmaximum zur oberen Plattenkante hin, während die Temperatur aufgrund der Strahlungsverluste an der Oberkante wieder abfällt.

Die Berechnungen für die beschichtete Platte stimmen für alle betrachteten Wasserstoff-Konzentrationen insgesamt gut mit den am Prüfstand gemessenen Temperaturen überein, während die Temperaturen der unbeschichteten Platten bei hohen H_2 -Konzentrationen

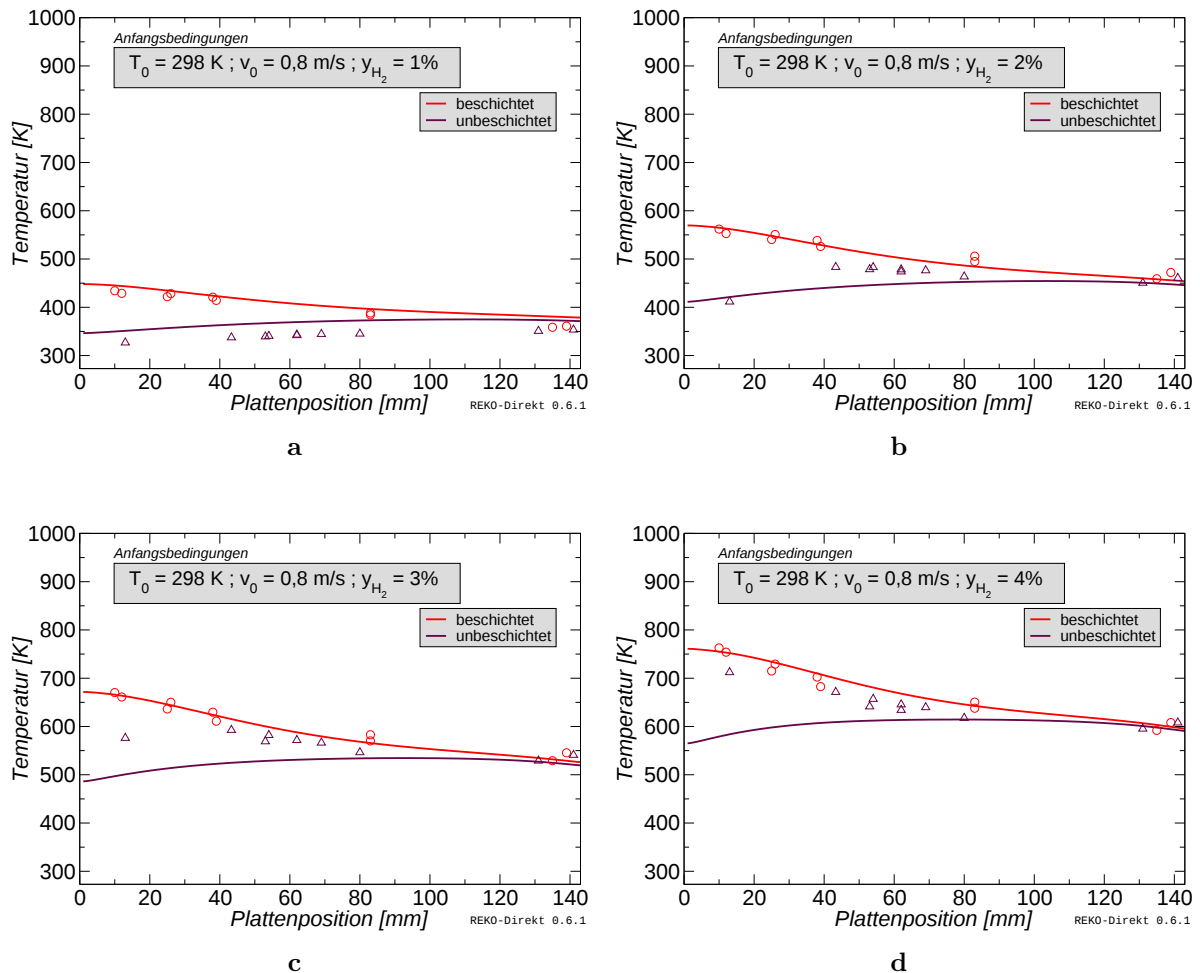


Abbildung 5.37: Temperaturverteilungen der beschichteten und unbeschichteten Platten bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von

(a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

im Bereich der Unterkante zu niedrig berechnet werden. Ab ungefähr 3% Wasserstoffanteil ist ein „Umschlagen“ der Temperaturkurve der unbeschichteten Platte erkennbar. Dass heisst die Temperaturkurve, die bei niedrigeren H_2 -Konzentrationen ausgehend ansteigt und sich erst im Austrittsbereich der beschichteten Platte annähert, verläuft hier mit nur geringerem Abstand parallel zur beschichteten Kurve (siehe Abbildung 5.37d). Dies zeigt, dass bei der Rechnung die Konvektion im Vergleich zur Wärmestrahlung immer noch einen sehr hohen Anteil am Wärmetransport besitzt, während im Experiment und H_2 -Konzentrationen größer 3% die Wärmestrahlung dominiert. Bei niedrigeren H_2 -Konzentrationen erreicht die Simulation deutlich bessere Übereinstimmung mit dem Experiment. Im Vergleich zum Standardversuch ($T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0.8\text{ m/s}$, $y_{H_2} = 4\%$) mit zwei beschichteten Blechen bewirkt die Wärmestrahlung eine Absenkung der Maximaltemperatur der Katalysatorplatte von etwa 810 K auf 760 K . Die unbeschichtete Platte erwärmt sich von Umgebungstemperatur (298 K) auf ungefähr 600 K . Aus diesem Vergleich wird erkennbar, dass das Strahlungsmodell von REKO-Direkt bei großen Temperaturunterschieden stark an Einfluss hinzugewinnt.

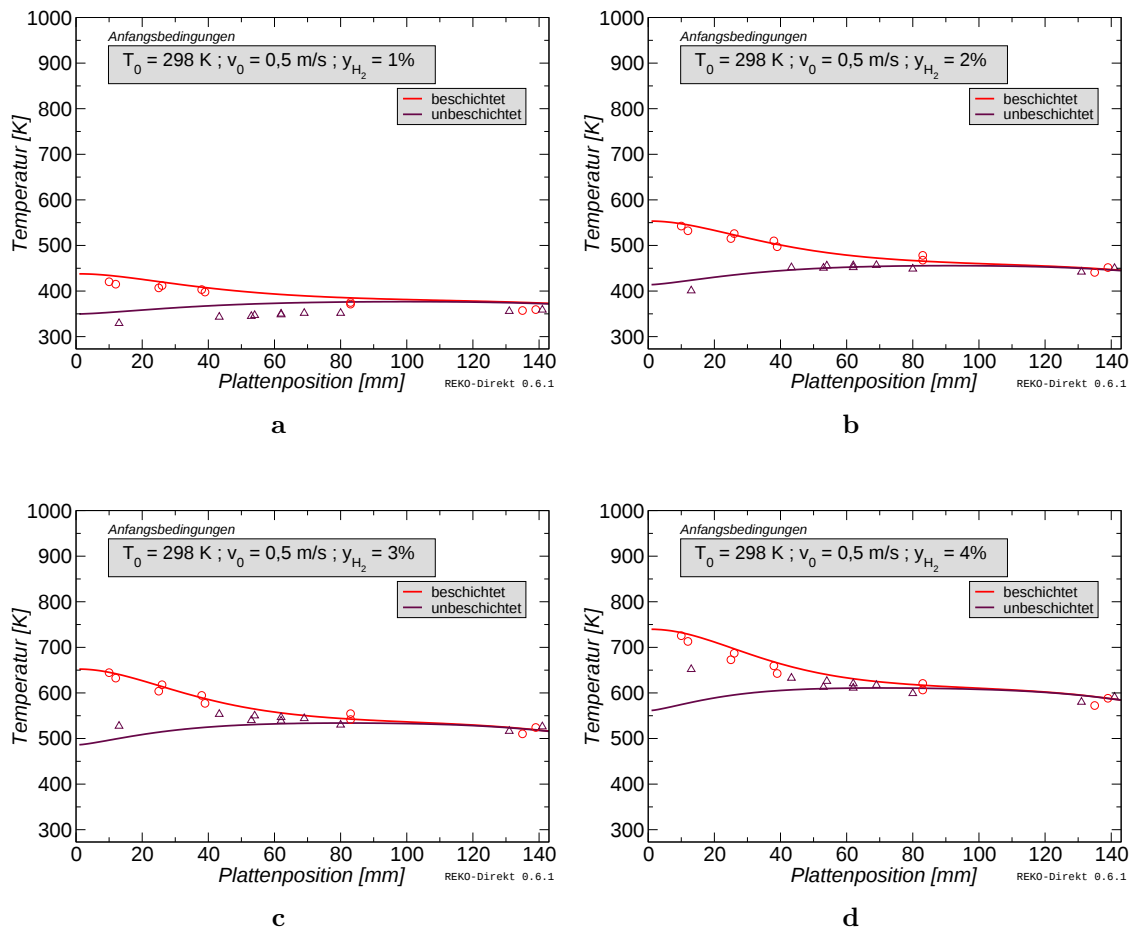


Abbildung 5.38: Temperaturverteilungen der beschichteten und unbeschichteten Platten bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,5\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von

(a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

Bei verringerter Strömungsgeschwindigkeit von $v_0 = 0,5 \text{ m/s}$ (Abbildung 5.38) zeigt sich ein ähnliches Bild zu der vorhergehenden Berechnung. Die Temperaturen der mit Katalysator beschichteten Platte werden in alle Fällen sehr gut berechnet, während die Temperaturen der unbeschichteten Platte bei hohen H_2 -Konzentrationen zu niedrig kalkuliert sind. Aufgrund des geringeren Temperaturniveaus ist das „Umschlagen“ bei der 3%-Messung nicht mehr so deutlich ausgeprägt, sodass hier die Rechnung insgesamt besser mit dem Experiment übereinstimmt. Bei weiterem Absenken der Strömungsgeschwindigkeit auf $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ findet der Vorgang des „Umschlages“ bei 3% nicht mehr statt (Abbildung 5.39). Im Anhang 10.2 befinden sich weiter Berechnungen mit einer erhöhten Eintrittstemperatur von $T_0 = 343 \text{ K}$. Die Ergebnisse bestätigen die oben dargestellten Phänomene. Zusammenfassend kann gesagt werden, dass durch das Einfügen einer unbeschichteten Platte das Temperaturniveau der Katalysatorplatte im Vergleich zu den Standardversuche deutlich abgesenkt wird. Es war nicht möglich durch Variation der Strahlungsparameter im Programm das „Umschlagen“ bei hohen H_2 -Konzentrationen nachzurechnen. Aber es wird darüber hinaus eine Überprüfung der Messergebnisse ebenfalls in Betracht gezogen.

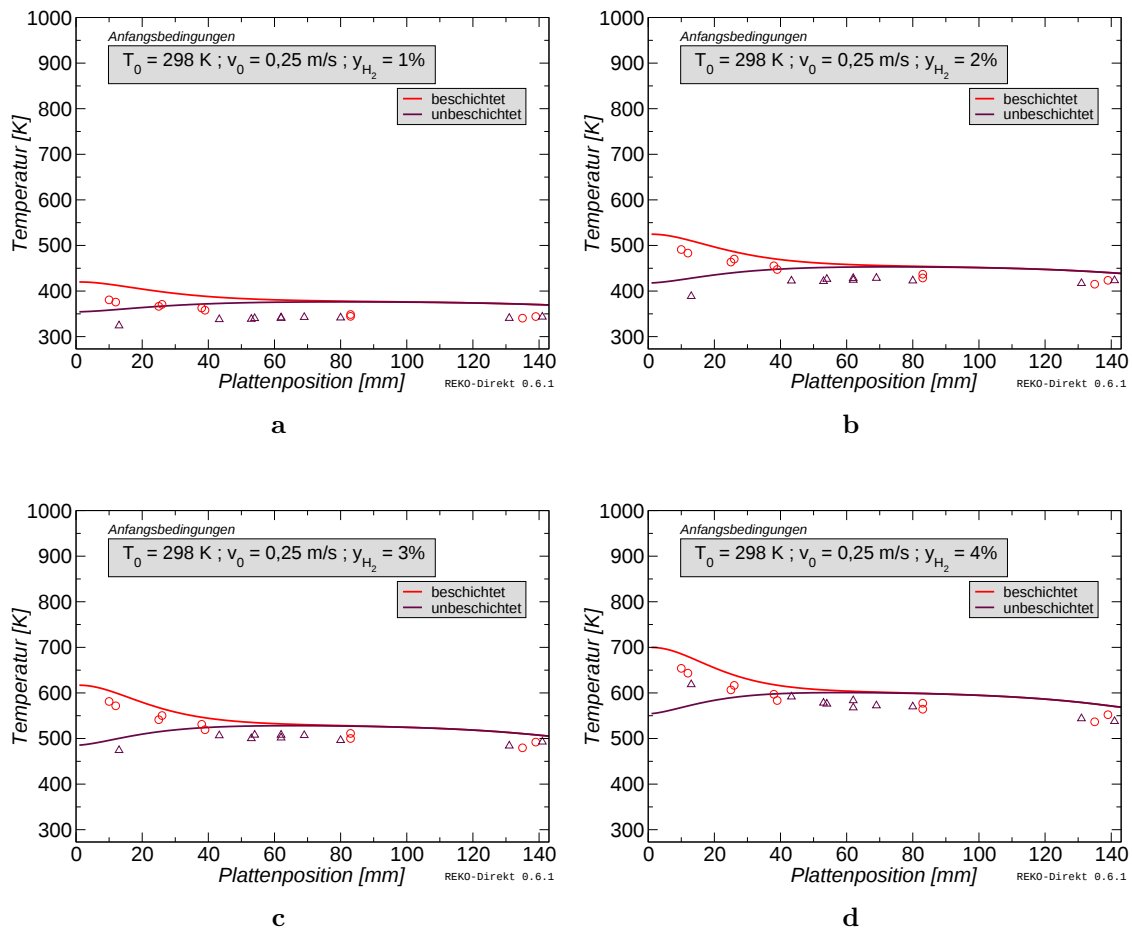


Abbildung 5.39: Temperaturverteilungen der beschichteten und unbeschichteten Platten bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von

(a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

6 Anwendungsrechnungen

Aufgrund der Skalierbarkeit der Ergebnisse lässt sich das Programm für Studien an einem vollständigen Rekombinator einsetzen. Hierzu werden Ergebnisse für den einzelnen Kanal entsprechend der Rekombinatorgröße hochgerechnet.

6.1 Berechnung der Umsatzrate

Da die Hersteller nur sehr begrenzt Daten zur Leistungsfähigkeit eines Rekombinators veröffentlichen, beschränkt sich die Validation auf den Vergleich der Umsatzraten der Rekombinatoren nach Siemens-Bauart. Siemens gibt in [FRAM 05] die Umsatzraten ihrer Rekombinatoren vom Typ FR90 für unterschiedliche Wasserstoff-Konzentrationen bekannt.

Die Plattendicke beträgt für alle Modelle $0,1\text{ mm}$. Die Plattenfläche beträgt für die Modelle FR90-100 bis FR90-960 $143 \cdot 143\text{ mm}^2$ und für den Rekombinator FR90-1500 $143 \cdot 290\text{ mm}^2$. Die Kanalbreite wird mit 10 mm angegeben. Die Berechnungen werden für alle Typen bei $T_0 = 298\text{ K}$ mit einer Strömungsgeschwindigkeit von $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ durchgeführt. Nur der Typ FR90-1500 wird mit einer höheren Strömungsgeschwindigkeit aufgrund der um 40% höheren Kaminhöhe von $v_0 = 1,12\text{ m/s}$ (siehe Tabelle 6.1) berechnet. Für jeden Typ wird eine Berechnung mit H_2 -Eintrittskonzentrationen von 1% bis 6% durchgeführt. Die von REKO-Direkt berechneten Umsatzraten werden für die verschiedenen Rekombinatormodelle nach Tabelle 6.1 hochskaliert. In Abbildung 6.1 sind die berechneten Umsatzraten des Rekombinators über die Wasserstoff-Konzentration aufgetragen. Die Kreissymbole entsprechen den von Siemens entnommen Daten.

Tabelle 6.1: Rekombinatormodelle [FRAM 05]

Modell	Anzahl der Bleche	Größe der Bleche	Gehäusehöhe
FR90-100	10	$143 \times 143\text{ mm}^2$	1000 mm
FR90-150	15	$143 \times 143\text{ mm}^2$	1000 mm
FR90-320	32	$143 \times 143\text{ mm}^2$	1000 mm
FR90-960	96	$143 \times 143\text{ mm}^2$	1000 mm
FR90-1500	150	$143 \times 290\text{ mm}^2$	1400 mm

Die Berechnungen von REKO-Direkt und die Vergleichswerte von Siemens zeigen einen linearen Zusammenhang der Umsatzrate mit der Wasserstoff-Konzentration. Die Abweichung der Berechnung bei den Typen FR90-100 bis FR90-960 liegt unterhalb von 10%, während die Abweichung bei dem großen Typ FR90-1500 zwischen 5% und 20% schwankt. Damit werden die Umsatzraten eines Rekombinators mit guter Übereinstimmung berechnet.

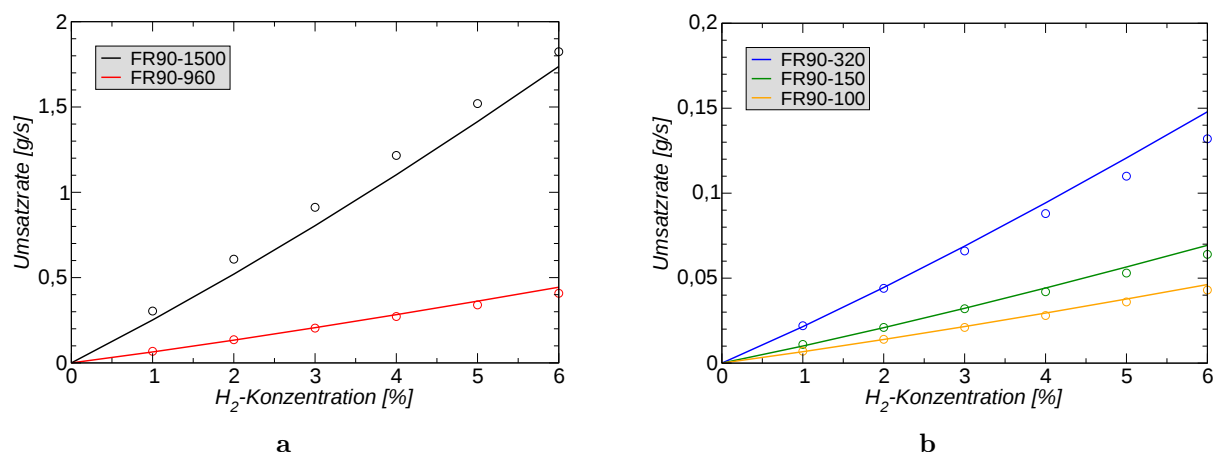


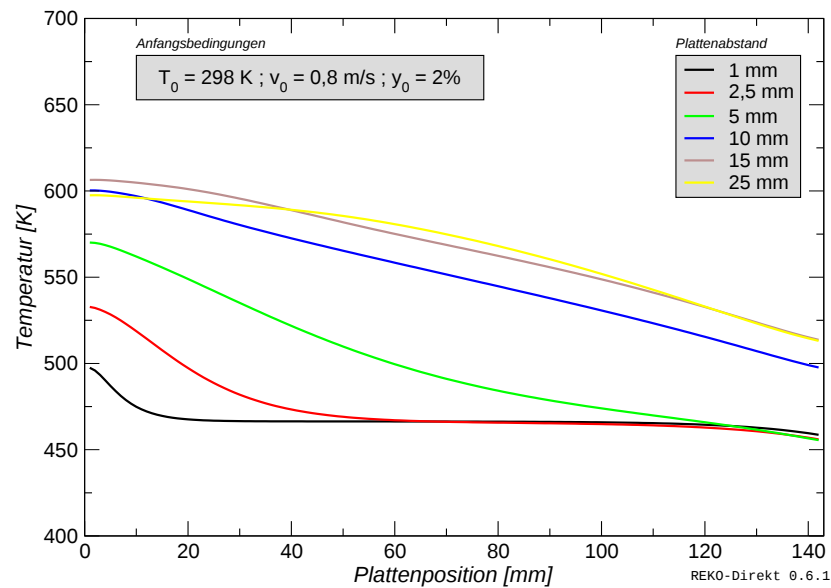
Abbildung 6.1: H_2 -Umsatzraten eines Rekombinators nach Siemensbauart vom Typ (a) FR90-1500, FR90-960 und (b) FR90-320, FR90-150 und FR90-100.

6.2 Parameterstudien

Mit Hilfe von Parameterstudien lässt sich der Aufbau eines Rekombinators optimieren. Sie sind ein schnelles Hilfsmittel, um die Auswirkungen von Änderungen, z.B. der Geometrie, beurteilen zu können. In diesem Kapitel werden zwei Beispielrechnungen vorgestellt, die einen Rekombinator mit unterschiedlichen Plattenabständen und Plattenhöhen berechnen.

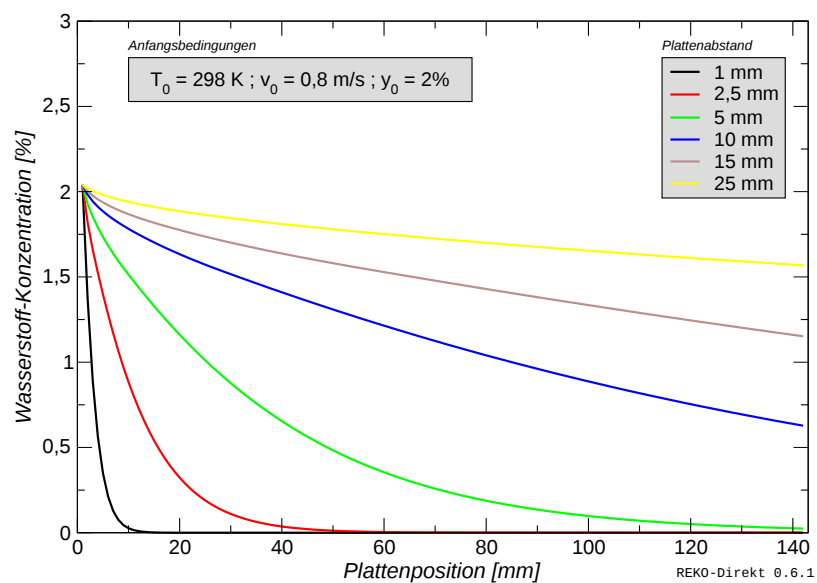
Zur Bewertung des Einflusses des Plattenabstandes auf die Plattentemperatur und die Konzentrationsverteilung im Gas werden sechs Berechnungen mit den Abständen 1 mm, 2 mm, 5 mm, 10 mm, 15 mm und 25 mm, wobei der Abstand 10 mm einem Standardrekombinator entspricht, miteinander verglichen. Durch die Verkleinerung des Strömungskanals nehmen die Plattentemperaturen ab. Zusätzlich steigt bei abnehmendem Plattenabstand der Strömungswiderstand, sodass die Naturkonvektion schwächer wird. In Abbildung 6.2 sind die Temperaturverteilungen der Berechnungen abgebildet. Rekombinatoren besitzen einen Plattenabstand von ungefähr 10 mm. Die Plattentemperaturen der kleineren Abstände besitzen ein deutlich geringeres Niveau. Wird der Plattenabstand vergrößert, so liegen die Temperaturen höher, da mehr Wasserstoff aufgrund des größeren Kanalvolumens zur Verfügung steht. Im Falle des Abstandes von 25 mm kann am Gas Eintritt ein Abfallen des Temperaturverlaufs beobachtet werden. Aufgrund des größeren Plattenabstandes nehmen die Strahlungsverluste zu, die die Temperaturen in der Nähe des Gaseintrittes sinken lassen. Für größere Plattenabstände als 25 mm nehmen die Fehler der Berechnungen zu, da der Strömungskanal nicht mehr als ebener Spalt angenähert werden kann.

In Abbildung 6.3 werden die Wasserstoffverteilungen der verschiedenen Rechnungen mit variierendem Plattenabstand vorgestellt. Bei großem Plattenabstand verringert sich die H_2 -Konzentration aufgrund des vergrößerten Volumens des Strömungskanals nur gering-



Abbildungung 6.2: Berechnete Temperaturverteilungen in der Platte mit unterschiedlichen Plattenabständen bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und $y_{H_2} = 2\%$.

fügig. Bei den kleiner werdenden Plattenabständen fällt die Wasserstoff-Konzentration auf null ab. Trotzdem ist die Umsatzrate aufgrund des geringen Wasserstoffangebots sehr gering.



Abbildungung 6.3: Berechnete Konzentrationsverteilungen im Gas mit unterschiedlichen Plattenabständen bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und $y_{H_2} = 2\%$.

Die Verkleinerung des Plattenabstandes zur Absenkung der Maximaltemperatur ist keine Option für einen realen Rekombinator. Denn aufgrund des hohen Strömungswiderstandes wird die Naturkonvektion abgeschwächt. Aber die Naturkonvektion ist die treibende Kraft eines Rekombinators. Durch Vergrößerung des Plattenabstandes kann die Maximaltemperatur am Gaseinlass durch Strahlungsverluste abgesenkt werden, jedoch wird der Wasserstoff im Gas nur geringfügig abgereichert. Der Zusammenhang zwischen Strahlungsverlust am Gaseinlass und Plattenabstand wird in Abbildung 6.4 veranschaulicht. Mit zunehmendem Plattenabstand steigt die Strahlungsverlustleistung nahezu linear an und kühlt somit verstärkt die Plattentemperatur am Gaseinlass.

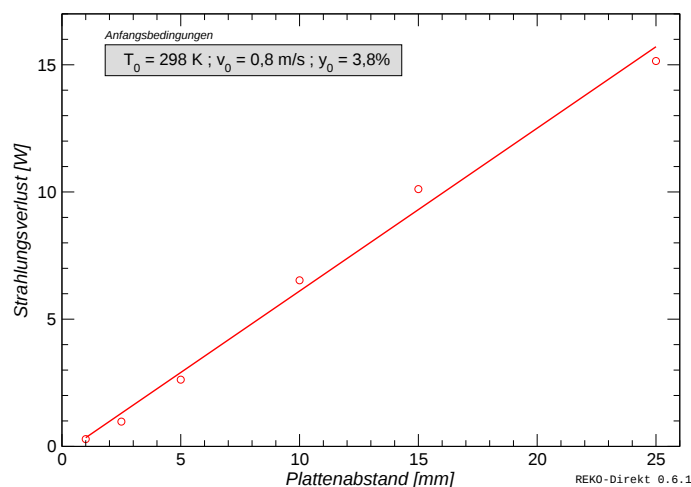


Abbildung 6.4: Strahlungsverlust am Gaseinlass in Abhängigkeit vom Plattenabstand

Bei einer Variation der Plattenhöhe bzw. der Länge des Strömungskanals sind im wesentlichen zwei Effekte zu beobachten. Eine Verlängerung führt einerseits zu einer nahezu bis vollständigen Wasserstoffumsetzung, andererseits bildet sich über der Plattenlänge ein ausgeprägter Temperaturgradient aus. Abbildung 6.5 zeigt die Temperaturverteilung bei einer Variation der Plattenhöhe innerhalb von zwei Größenordnungen. Zur besseren Vergleichbarkeit der Verteilungen sind die Temperaturen und Konzentrationen nicht über die Plattenhöhe in Millimetern, sondern in Prozent der Plattenhöhe aufgetragen. Die Konzentrationsverteilungen für unterschiedliche Plattenhöhen sind in Abbildung 6.6 dargestellt. Da sich mit zunehmender Plattenhöhe auch die katalytische Oberfläche vergrößert, wird mehr Wasserstoff umgesetzt.

Zusammenfassend kann für die Optimierung eines Rekombinators gesagt werden, dass ein Mittel zur Senkung der Maximaltemperatur die Vergrößerung des Plattenabstandes ist. Andererseits verringert sich dadurch der Abbau des Wasserstoffanteils im Gas. Diesem Effekt kann durch die Verlängerung der katalytischen Oberfläche in Strömungsrichtung entgegengewirkt werden. Zur Gewichtsreduzierung sollten die Platten sehr dünn gefertigt werden.

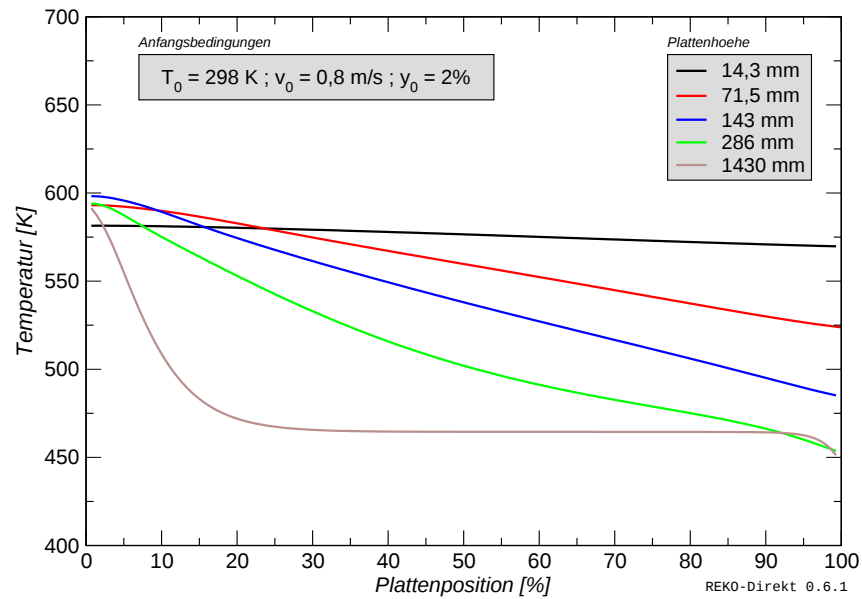


Abbildung 6.5: Berechnete Temperaturverteilungen in der Platte mit unterschiedlichen Plattenhöhen bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$ und $y_{H_2} = 2\%$.

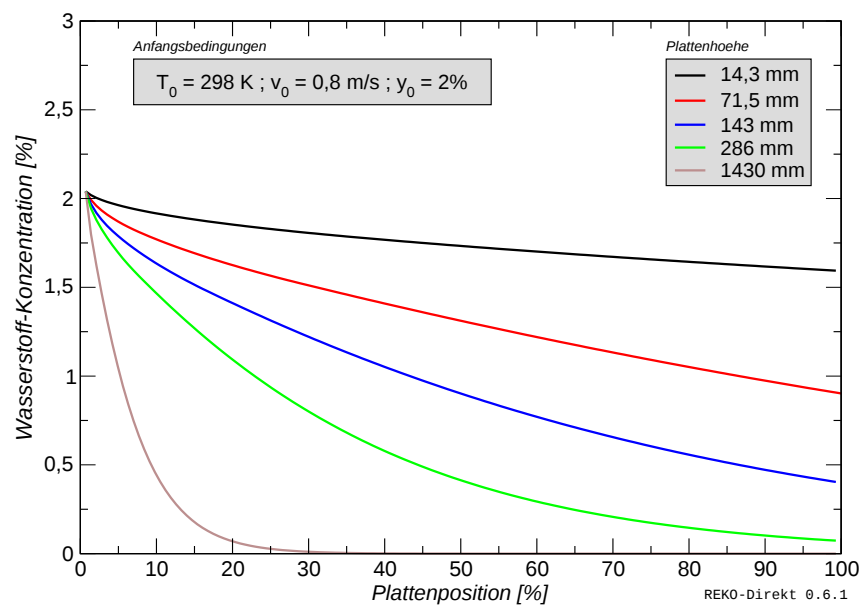


Abbildung 6.6: Berechnete Konzentrationsverteilungen im Gas mit unterschiedlichen Plattenhöhen bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,8 \text{ m/s}$ und $y_{H_2} = 2\%$.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Um ein hohes Maß an Sicherheit bei kerntechnischen Anlagen zu erlangen, werden mögliche Störfallszenarien und deren Auswirkungen mit Hilfe numerischer Codes durchgeführt und analysiert. Dabei stellt eine massive Wasserstofffreisetzung im Verlauf eines Kernschmelzstörfalls ein mögliches Szenario dar. Als wichtigste Maßnahme zur Beseitigung des Wasserstoffs dienen katalytische Rekombinatoren, die den explosionsgefährlichen Wasserstoff in einer exothermen Reaktion mit dem Atmosphärensauerstoff zu Wasserdampf umsetzen. Zur Modellierung des Betriebsverhaltens von Rekombinatoren in Hinsicht auf die Umsetzung des Wasserstoffs und die daraus resultierende Temperaturentwicklung wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Rekombinatorsimulation REKO-Direkt entwickelt.

Die physikalischen Prozesse werden in REKO-Direkt stationär und zweidimensional berechnet. Im Strömungskanal werden Enthalpieströme, Wärmeleitung im Gas, Wärmeübergang von den Platten in das Gas und Wärmestrahlung zwischen den Platten betrachtet. Die Wärmestrahlung wird als Quelle bzw. Senke modelliert, deren Wert sich aus dem Nettowärmestrahlungsaustausch zwischen sämtlichen Oberflächen, darunter auch Verluste durch den Gasein- und -auslass, berechnet. Das resultierende Gleichungssystem wird in eine Bandmatrix überführt und dann mit Hilfe eines direkten Lösungsalgorithmus gelöst. Da dieser Lösungsansatz keine räumlichen Iterationen benötigt, ist die Lösung sehr stabil und exakt.

REKO-Direkt berechnet die stationäre Temperaturverteilung auf den Katalysatorplatten sowie den Verlauf der Konzentrationen der beteiligten Gaskomponenten in Strömungsrichtung. Neben diesen beiden Größen liefert REKO-Direkt weitere nutzbringende Ergebnisse zur Reaktionskinetik und zum Wärmetransport. Dabei werden die Anteile von Konvektion, Leitung und Strahlung getrennt ausgegeben. Zudem ermöglicht das Programm Aussagen über die Möglichkeit von Zündungen infolge hoher Katalysatortemperaturen, da nicht wie in anderen Modellen mit gemittelten Temperaturen gerechnet wird, wodurch lokale Temperaturmaxima nicht berücksichtigt werden können.

Die Eintrittsbedingungen von Gemischzusammensetzung, Wasserdampfanteil, Starttemperatur des Gases und Strömungsgeschwindigkeit lassen sich variabel einstellen. Das Geometriedesign der Platten, die Größe des Strömungskanals sowie die Lage der katalytischen Oberflächen sind individuell justierbar, sodass sich eine Vielzahl an möglichen Störfallbedingungen und Rekombinatortypen simulieren lässt. Außer den Eintrittsbedingungen sind für unterschiedliche Rekombinatorgeometrien keine weiteren Parameteranpassungen wie in anderen existierenden Simulationen erforderlich.

Die Reaktionskinetik der katalytischen Reaktion wird erstmalig in diesem Rekombinatormodell mit einem Stofftransportansatz modelliert. Aufgrund der diffusionskontrollierten katalytischen Reaktion erlaubt der Stofftransportansatz im Gegensatz zum auf Oberflächenreaktion aufbauenden Arrhenius-Ansatz eine sehr genaue Berechnung der Konzentrationsverteilung im Strömungskanal.

Aufgrund der seit 1996 am Forschungszentrum Jülich durchgeführten experimentellen Untersuchungen an Rekombinatoren existiert eine umfangreiche Datenbank an Versuchsergebnissen, die unter einer Vielzahl an unterschiedlichen Randbedingungen erstellt wurde. REKO-Direkt wurde anhand dieser Datenbank umfassend validiert. Die vorhandenen Versuchsergebnisse, auch besondere Bedingungen wie unterschiedliche Dampfgehalte in der Atmosphäre oder die Reduzierung des Sauerstoffanteils, werden von der Simulation mit guter Übereinstimmung bestätigt. Damit wird ein vertieftes Verständnis der fundamentalen Prozesse innerhalb katalytischer Rekombinatoren angezeigt.

Mit Hilfe von REKO-Direkt sind Parameterstudien zur Optimierung von existierenden Rekombinatoren oder zur Entwicklung neuer Rekombinatorkonzepte denkbar. Begrenzte Umsatzraten, die für große Wasserstofffreisetzungen nicht ausreichend sind, oder zu hohe Katalysatortemperaturen, die zu einer unbeabsichtigten Zündung des Gasgemisches führen, sind bekannte wichtige Aufgaben, deren Lösung durch die Rekombinatorsimulation unterstützt werden kann.

Die experimentellen Untersuchungen wurden unter Zwangsdurchströmung durchgeführt. Zur genauen Vergleichbarkeit beruht der Ansatz zur Strömungsrechnung in REKO-Direkt auf erzwungener Konvektion. In Zukunft ist dieser Ansatz auf freie Konvektion umzustellen, um das Modell besser an die Bedingungen in einem Kernkraftwerk anzupassen. Als finaler Schritt kann REKO-Direkt in einen bestehenden Störfallcode, wie zum Beispiel den im Forschungszentrum Karlsruhe entwickelten Code GASFLOW, implementiert werden.

8 Literaturverzeichnis

- [ALLE 05] Allelein, H. J., Heitsch, M., Schwinges, B.: *Kompendium zur Wasserstoffproblematik und zur Wirksamkeit eines Systems autokatalytischer Rekombinatoren*. GRS-V-SR 2468-1/2005.
- [ARIS 95] Aris, R.: *Mathematical Modelling Techniques*. Dover Publications, 1995.
- [ATKI 01] Atkins, P. W.: *Physikalische Chemie*. Dritte Auflage. Weinheim: Wiley-VCH, 2001.
- [AVAK 02] Avakian, G.: *Hydrogen Recombiner: Theoretical parametric study*. Proc. 10th Int. Conf. on Nuclear Engineering, ICONE 10-22043, 2002.
- [BACH 02] Bachellerie, E., et al: *State-of-the-art report on passive autocatalytic recombiners - Handbook guide for implementing catalytic recombiners*. Technicatome Company Report, Technical Note TA-185706 Ind. A., 2002.
- [BAEH 98] Baehr, H. D., Stephan, K.: *Wärme- und Stoffübertragung*. Dritte Auflage. Berlin: Springer-Verlag, 1998.
- [BORD 03] Bordini, B., Fineschi, F., Ambrosini, W.: *BPARCO: A code for modelling hydrogen catalytic recombiners*. Grenoble, France: 1st European Hydrogen Energy Conference, 2.-5. September 2003.
- [BREI 00] Breitung, W., Royl, P.: *Procedure and tools for deterministic analysis and control of hydrogen behavior in severe accidents*. Nuclear Engineering and Design (202), S.249-268, 2000.
- [BRÖC 97] Bröckerhoff, P., Reinecke, E.-A.: *Entwicklung und Untersuchung von Sicherheitselementen zum Abbau von Wasserstoff mittels katalytischer Verfahren*. Berichte des Forschungszentrums Jülich, Jül-3353, 1997.
- [BROC 97] Brockmann, H.: *The use of generalized configuration factors for calculating the radiant interchange between nondiffuse surfaces*. Int. J. Heat Mass Transfer. Vol. 40, No. 18, pp. 4473-4486, 1997.
- [BRON 97] Bronstein, I. N., Semendjajew, K. A., Musiol, G., Mühlig, H.: *Taschenbuch der Mathematik*. Dritte Auflage. Frankfurt am Main: Verlag Harri Deutsch, 1997.
- [CHOR 93] Chorin, A. J., Marsden, J. E.: *A Mathematical Introduction to Fluid Mechanics*. Third Edition Berlin: Springer Verlag, 1993.
- [DRIN 05] Drinovac, P.: *Experimentelle Untersuchungen zu katalytischen Wasserstoffrekombinatoren für Leichtwasserreaktoren*. Diss. RWTH Aachen, 2005.
- [EDEL 04] Edelstahl Witten-Krefeld GmbH: *Datenblatt Remanit 4571*. 2004.

- [FINE 96] Fineschi, F., Bazzichi, M., Carcassi, M.: *A study on the hydrogen recombination rates of catalytic recombiners and deliberate ignition*. Nuclear Engineering and Design (166), S.481-494, 1996.
- [FRAM 05] Framatome ANP GmbH *Recombiner modelling in GASFLOW for EPR application*. SARNET workshop 23./24.6.2005.
- [FULL 66] Fuller, E. N., Schettler, P. D., Giddings, J. C.: *A new method for prediction of binary gas-phase diffusion coefficients*. Ind. Eng. Chem 58, 1966.
- [GERS 92] Gersten, K., Herwig, H.: *Strömungsmechanik*. Braunschweig: Vieweg-Verlag, 1992.
- [HÄMM 92] Hämmerlin, G., Hoffmann, K.-H.: *Numerische Mathematik*. Dritte Auflage. Berlin: Springer-Verlag, 1992.
- [HEIT 00] Heitsch, M.: *Fluid dynamic analysis of a catalytic recombiner to remove hydrogen*. Nuclear Engineering and Design (201), S.1-10, 2000.
- [HERW 00] Herwig, H.: *Wärmeübertragung A-Z - Systematische und ausführliche Erläuterungen wichtiger Größen und Konzepte*. Berlin: Springer-Verlag, 2000.
- [INCR 02] Incropera, F. P., DeWitt, D. P.: *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. Fifth Edition. New York: John Wiley & Sons, 2002.
- [KANZ 95] Kanzleiter, T., Seidler, M.: *Katalytische Rekombinatoren zum Abbau von Wasserstoff*. atw 40. Jg., Heft 6, 1995.
- [KEIL 99] Keil, F.: *Diffusion und chemische Reaktion in der Gas/Feststoff-Katalyse*. Berlin: Springer-Verlag, 1999.
- [KELM 03] Kelm, S.: *Experimentelle Untersuchungen zum Einfluss der Wärmestrahlung auf die Wärmeabgabe eines katalytischen Plattenrekombinatoren*. Studienarbeit, RWTH Aachen, 2003.
- [KLEI 00] Klein-Heßling, W., et al.: *COCOSYS V1.2 Manuals*. GRS-P-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 2000.
- [KLEN 04] Klenke, K., van Bennekom A.: *Rostfreie Stähle und deren Wärmebehandlung*. Krupp Edelstahlprofile, Siegen. Vortragsreihe Stahlwerkstoffe, deren spezifische Eigenschaften und Wärmebehandlung Block I, 2004.
- [KOST 87] Kostka, N., Hammeke, K.: *Ermittlung von Stoffdaten der Gase O₂, N₂, CO, CO₂, He, H₂O, H₂, CH₄, CH₃OH und C₂H₅OH und der Mischungen aus diesen Gasen*. Jülich: Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Jül-2112, 1987.
- [KUGE 03] Kugeler, K.: *Reaktorsicherheitstechnik*. Vorlesungsskript RWTH-Aachen, Lehrstuhl für Reaktorsicherheit und -technik, 2003.

- [MARK 93] Markandeya, S. G., Chakraborty, A. K.: *Modelling of catalytic recombiners for removal of hydrogen during severe accidents*. SMiRT-12, U04/3, Elsevier Science Publishers B.V., 1993.
- [MATE 05] Matela, T.: *Entwicklung einer Programmroutine zur Parameteroptimierung und Erstellung von Programmabläufen für das Wasserstoffrekombinator-Simulationsprogramm REKO-DIREKT*. Interner Bericht, Forschungszentrum Jülich GmbH, ISR-IB-2/2005, Studienarbeit, RWTH Aachen, 2005.
- [MOVA 94] Movahed, M.: *Recombiner model for lumped parameter codes validation and application*. International Workshop on Hydrogen Research for Reactor Safety, München, 19.-21. September 1994.
- [PLAN 59] Planck, M.: *The theory of heat radiation*. New York: Dover Publications, Inc., 1959.
- [POLI 05] Polifke, W., Kopitz, J.: *Wärmeübertragung - Grundlagen, analytische und numerische Methoden*. München: Pearson Studium, 2005.
- [REIN 99] Reinecke, E.-A.: *Reaktionskinetische Untersuchungen zur Auslegung von katalytischen Wasserstoffrekombinatoren*. Berichte des Forschungszentrums Jülich, Jül-3703, Diss. RWTH Aachen, 1999.
- [RENZ 03] Renz, U.: *Wärme- und Stoffübertragung*. Vorlesungsskript RWTH-Aachen, Lehrstuhl für Wärmeübertragung und Klimatechnik, 2003.
- [REYN 83] Reynolds, O.: *An experimental investigation of the circumstances which determine whether the motion of water shall be direct or sinuous, and of the law of resistance in parallel channels*. Paper 44, Royal Society, Phil. Trans., pp. 52-105, 1883.
- [RIED 66] Ried, R. C., Sherwood, T. K.: *The Properties of Gases and Liquids*. New York: McGraw-Hill, 1966.
- [SCHL 79] Schlichting, H.: *Boundary Layer Theory*. 7. Auflage. New York: McGraw-Hill, 1979.
- [SHER 97] Sher, R., Trotter, J. D., Leaver, D. E.: *Passive autocatalytic recombiner for mitigating hydrogen concentrations following design-basis accidents in nuclear power plants*. 5th Meeting on Nuclear Thermal Hydraulics, Operations and Safety, April 1997.
- [SIEG 02] Siegel, R., Howell, J.: *Thermal Radiation Heat Transfer*. Fourth Edition. New York: Taylor & Francis, 2002.
- [SIEM 92] Siemens AG *High-Capacity Catalytic Recombiners*. Firmenbroschüre, 1992.
- [SKEL 74] Skelland, A. H. P.: *Diffusional Mass Transfer*. New York: Wiley, 1974.
- [STEL 84] Stelzer, J. F.: *Stoffwertalgorithmen*. München: Karl Thiemig AG, 1984.

- [STRU 88] Struth, S.: *Untersuchungen zur Thermohydraulik des Druckentlastungsvorgangs bei Hochtemperaturreaktoren*. Diplomarbeit, Lehrstuhl für Reaktortechnik, RWTH Aachen, 1988.
- [TRAG 05] Tragsdorf, I. M.: *Entwicklung und Untersuchung von Katalysatorelementen für innovative Wasserstoff-Rekombinatoren*. Schriften des Forschungszentrums Jülich, Band 36, Diss. RWTH Aachen, 2005.
- [VDI 97] Verein Deutscher Ingenieure: *VDI Wärmeatlas*. Heidelberg: Springer Verlag, 1997.
- [VISU 03] Visual Numerics: *IMSL Fortran Library User's Guide MATH/LIBRARY Volume 1 of 2 - Mathematical Functions in Fortran*. Visual Numerics, Inc., 2003.
- [ZHON 01] Zhong, W. (Ed.): *Mitigation of hydrogen hazards in water cooled power reactors*. IAEA-TECDOC-1196, IAEA, Vienna, ISSN 1011-4289, 2001.

9 Nomenklatur

Lateinische Formelzeichen

a	Temperaturleitfähigkeit	$\left[\frac{m^2}{s}\right]$
a	Konstante	$[-]$
A	Fläche	$[m^2]$
c	Spezifische Wärmekapazität	$\left[\frac{J}{kg\,K}\right]$
c	Konzentration	$\left[\frac{mol}{m^3}\right]$ bzw. $[Vol. - \%]$
C	Wärmekapazität	$\left[\frac{J}{K}\right]$
d_h	Hydraulischer Durchmesser	$[m]$
D	Diffusionskoeffizient	$\left[\frac{m^2}{s}\right]$
E	Aktivierungsenergie	$\left[\frac{J}{mol}\right]$
E	Wärmestromdichte	$\left[\frac{W}{m^2}\right]$
F	Einstrahlzahl	$[-]$
F	Volumenkraft	$\left[\frac{N}{m^3}\right]$
F	Faktor	$[-]$
g	Erdbeschleunigung	$\left[g = 9,81\frac{m}{s^2}\right]$
G	Einstrahlung	$\left[\frac{W}{m^2}\right]$
Gr	Grashof-Zahl	$[-]$
h	Plattenhöhe	$[m]$
H	Enthalpie	$[J]$
$\dot{H}$	Enthalpiestrom	$[W]$
i	Maschenzahl (x-Richtung)	$[-]$
$\vec{i}$	Normalenvektor (x-Richtung)	$[-]$
$\vec{j}$	Normalenvektor (y-Richtung)	$[-]$
J	Radiosität	$\left[\frac{W}{m^2}\right]$
$\vec{k}$	Normalenvektor (z-Richtung)	$[-]$
k_1, k_2	Konstanten	$[-]$

K	Konstante	$[-]$
K_W	Wärmewiderstand	$\left[\frac{W}{K}\right]$
L	Charakteristische Länge	$[m]$
m	Masse	$[kg]$
M	Molare Masse	$\left[\frac{kg}{mol}\right]$
$\dot{m}$	Massenstrom	$\left[\frac{kg}{s}\right]$
$\dot{n}$	Stoffmengenrate	$\left[\frac{mol}{m^3 s}\right]$
n	Stoffmenge	$[mol]$
n	Maschenzahl (y-Richtung)	$[-]$
Nu	Nußelt-Zahl	$[-]$
p	Druck	$[Pa]$
Pr	Prandtl-Zahl	$[-]$
$\dot{q}''$	Flächenbezogener Wärmestrom	$\left[\frac{W}{m^2}\right]$
Q	Wärme	$[J]$
$\dot{Q}$	Wärmestrom	$[W]$
$\dot{r}$	Reaktionsrate	$\left[\frac{kg}{s}\right]$ bzw. $\left[\frac{mol}{m^2 s}\right]$
R	Allgemeine Gaskonstante	$\left[R = 8,314472 \frac{J}{mol K}\right]$
Re	Reynolds-Zahl	$[-]$
s	Weg	$[m]$
Sc	Schmidt-Zahl	$[-]$
Sh	Sherwood-Zahl	$[-]$
t	Zeit	$[s]$
T	Temperatur	$[K]$
U	Umfang	$[m]$
v	Geschwindigkeit	$\left[\frac{m}{s}\right]$
x	Weglänge (x-Koordinate)	$[m]$
y	Konzentration	$[Vol. - \%]$

y	Weglänge (y-Koordinate)	$[m]$
y	Plattenabstand	$[m]$
z	Plattentiefe	$[m]$
z	Weglänge (z-Koordinate)	$[m]$

Griechische Formelzeichen

α	Wärmeübergangskoeffizient	$\left[\frac{W}{m^2 K} \right]$
α	Absorptionsvermögen	$[-]$
β	Stoffübergangskoeffizient	$\left[\frac{m}{s} \right]$
δ	Grenzschichtdicke	$[m]$
δ	isobarer thermischer Ausdehnungskoeffizient	$\left[\frac{1}{K} \right]$
Δ	Differenz	$[-]$
ε	Emissionsgrad	$[-]$
η	Dynamische Viskosität	$[Pa \cdot s]$
η	Wirkungsgrad	$[-]$
λ	Wärmeleitfähigkeit	$\left[\frac{W}{m K} \right]$
ν	Kinematische Zähigkeit	$\left[\frac{m^2}{s} \right]$
ν	Diffusionsvolumen	$[-]$
φ	Wärmequellenfaktor	$[-]$
Φ	Viskose Dissipationsfunktion	$\left[\frac{1}{s^2} \right]$
ρ	Dichte	$\left[\frac{kg}{m^3} \right]$
ρ	Reflexionsvermögen	$[-]$
σ	Stefan-Boltzmann-Konstante	$\left[\sigma = 5,669 \cdot 10^{-8} \frac{W}{m^2 K^4} \right]$
τ	Schubspannung	$\left[\frac{N}{m^2} \right]$

Indizes

0	Anfangszustand
a	Auslass
aus	Auslass
e	Einlass
E	Enthalpie
ein	Einlass
F	Feststoff
G	Gas
ges	gesamt
H_2	Wasserstoff
H_2O	Wasserdampf
i	Komponente
j	Komponente
$krit$	kritisch
l	links
m	Mischung
max	Maximum
$mess$	gemessen
N_2	Stickstoff
O_2	Sauerstoff
p	Konstanter Druck
P	Platte
Q	Quelle
r	rechts
R	Reaktion
s	Schwarzer Körper
V	Verlust
x	x-Richtung

y	y-Richtung
zul	zulässig
α	Konvektion
ε	Strahlung
λ	Leitung

Abkürzungen

AECL	Atomic Energy of Canada Limited
ALWR	Advanced Light Water Reactor
ASTEC	Accident Source Term Evaluation Code
CANDU	Canadian-Deuterium-Uranium Reactor
CEA	Commissariat à l'Energie Atomique
CFD	Computational Fluid Dynamics
COCOSYS	Containment Code System
DIN	Deutsches Institut für Normung
DWR	Druckwasserreaktor
EDF	Electricité de France
EPRI	Electric Power Research Institute
FZJ	Forschungszentrum Jülich
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit
IMSL	International Mathematical and Statistical Libraries
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
ISR	Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik
LWR	Leichtwasserreaktor
NRC	Nuclear Regulatory Commission
PAR	Passive Autocatalytic Recombiner
PWR	Pressurized Water Reactor
REKO-3	Rekombinatorprüfstand im Forschungszentrum Jülich
REKO-Direkt	Rekombinator-Simulationsprogramm mit direkter Lösungsroutine
SWR	Siedewasserreaktor
VVER	(WWER) Wasser-Wasser-Energie-Reaktor

10 Anhang

In den folgenden Kapitel sind zusätzliche Vergleichsrechnungen aufgeführt, die zur Validierung des Programms dienen. Aufgrund der Übersichtlichkeit befinden sich die Rechnungen im Anhang.

10.1 Standardversuche mit $T_0 = 343\text{ K}$

Hier werden Vergleichsrechnungen durchgeführt die mit dem Kapitel 5.1 korrespondieren. Alle Rechnungen wurden mit erhöhter Gaseintrittstemperatur ($T_0 = 343\text{ K}$) durchgeführt. Die Konzentrationsverteilungen werden nicht aufgeführt, da hierfür keine Messdaten vorliegen.

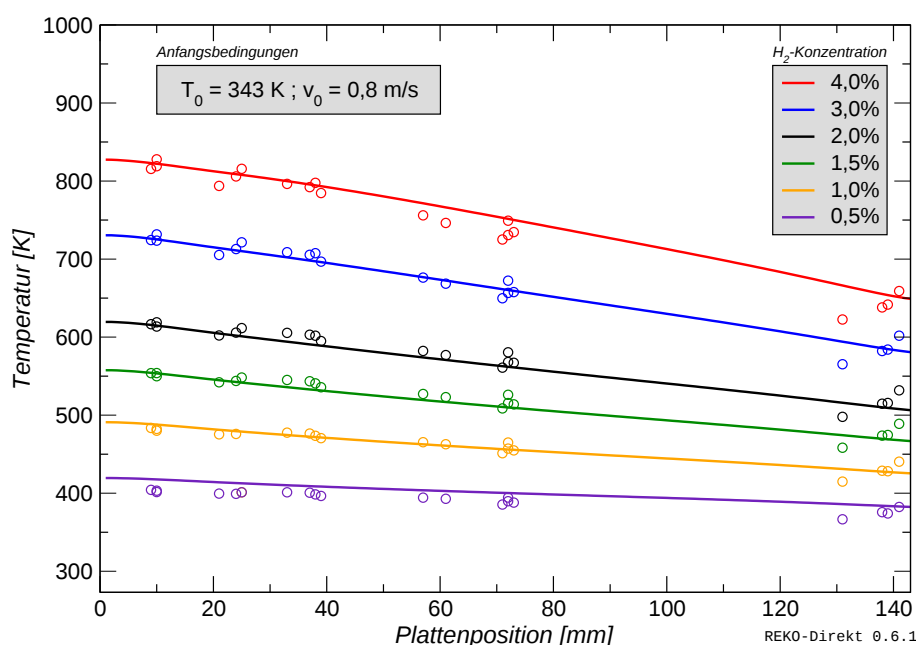


Abbildung 10.1: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 343\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

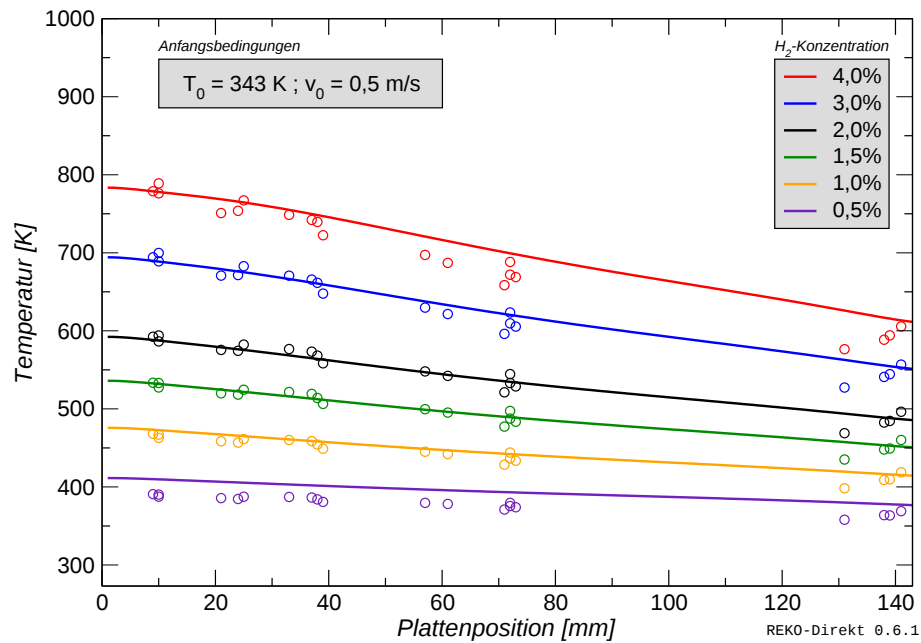


Abbildung 10.2: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0,5 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

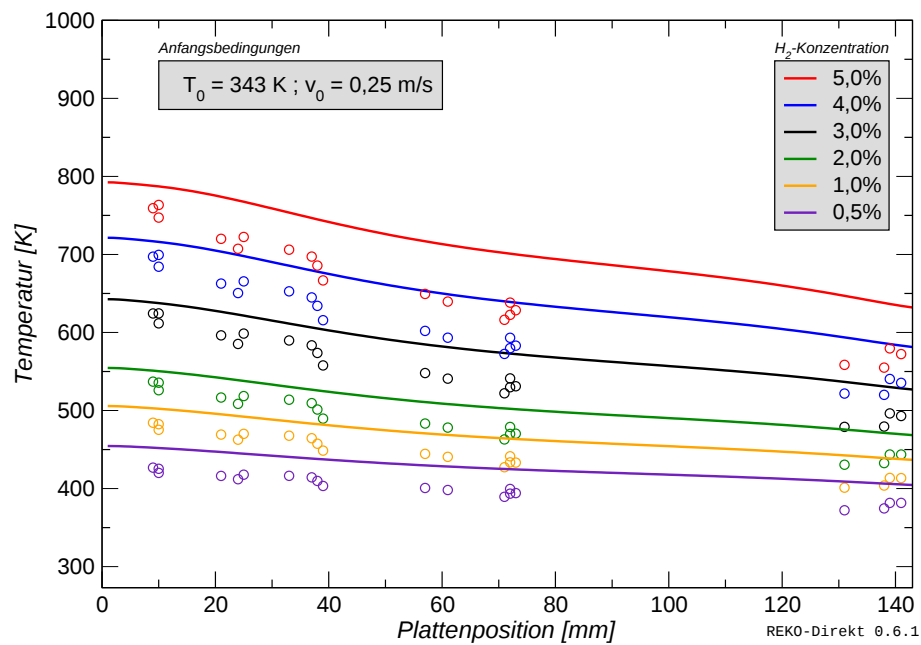


Abbildung 10.3: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

10.2 Wärmestrahlungsuntersuchungen mit $T_0 = 343\text{ K}$

Zu den Wärmestrahlungsuntersuchen liegen auch Messergebnisse vor, die mit einer Eintrittstemperatur von $T_0 = 343\text{ K}$ bestimmt wurden. Hier werden diese mit den entsprechenden Berechnungen verglichen.

Die Tendenz, für die Plattentemperaturen im Vergleich zum Experiment zu hohe Werte zu berechnen, ist möglicherweise auf einen systematischen Fehler im Experiment zurückzuführen. Die Heizleistung des Vorwärmers wird über die Gaseintrittstemperatur geregelt. Das zur Temperaturmessung eingesetzte Thermoelement steht dabei im Strahlungsaustausch mit den Katalysatorplatten, sodass systematisch eine zu hohe Gastemperatur angezeigt wird. Der Vorwärmer schaltet sich daraufhin ab, woraus eine geringere Strömungsgeschwindigkeit resultiert, was ein niedrigeres Temperaturniveau zur Folge hat.

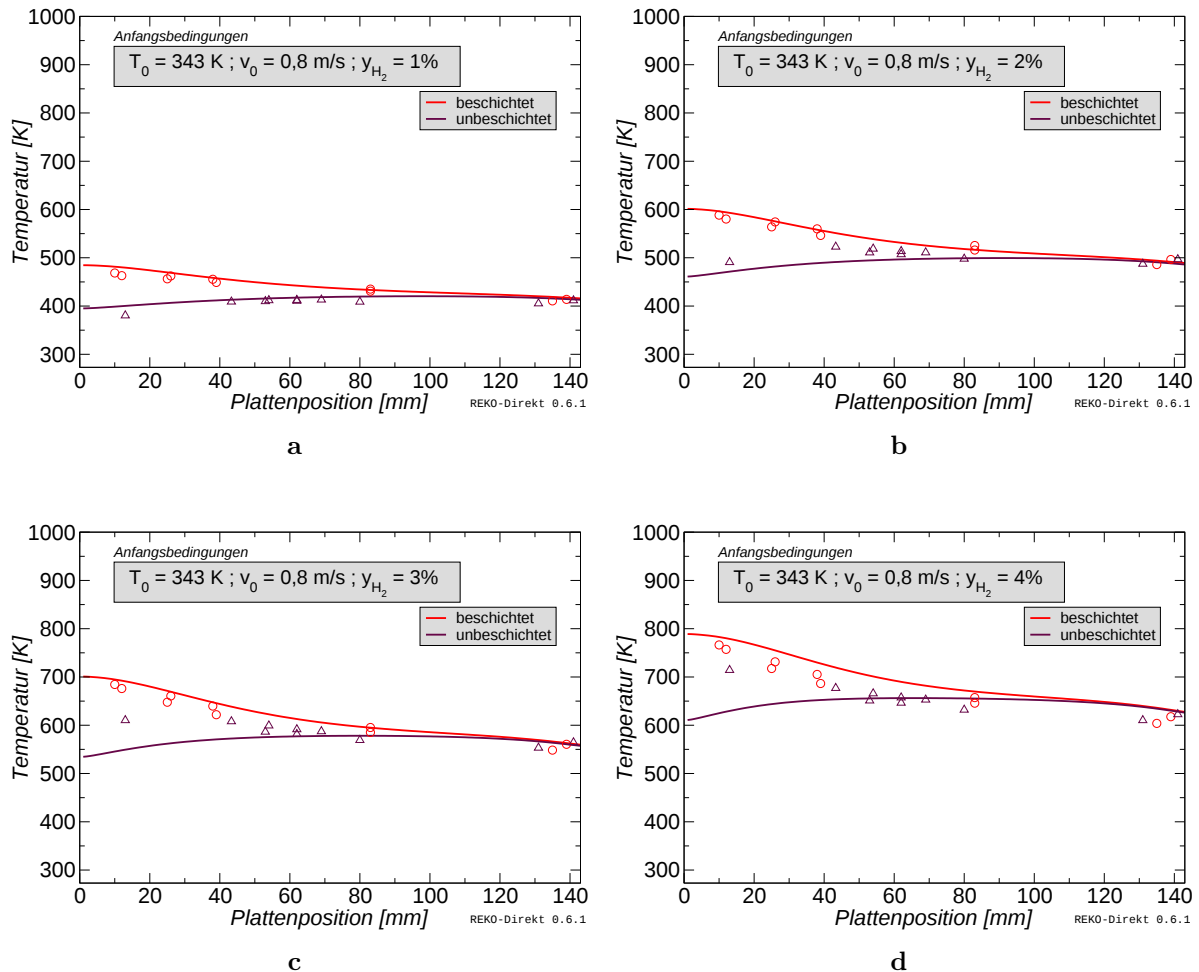


Abbildung 10.4: Temperaturverteilungen der beschichteten und unbeschichteten Platten bei $T_0 = 343\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von

(a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

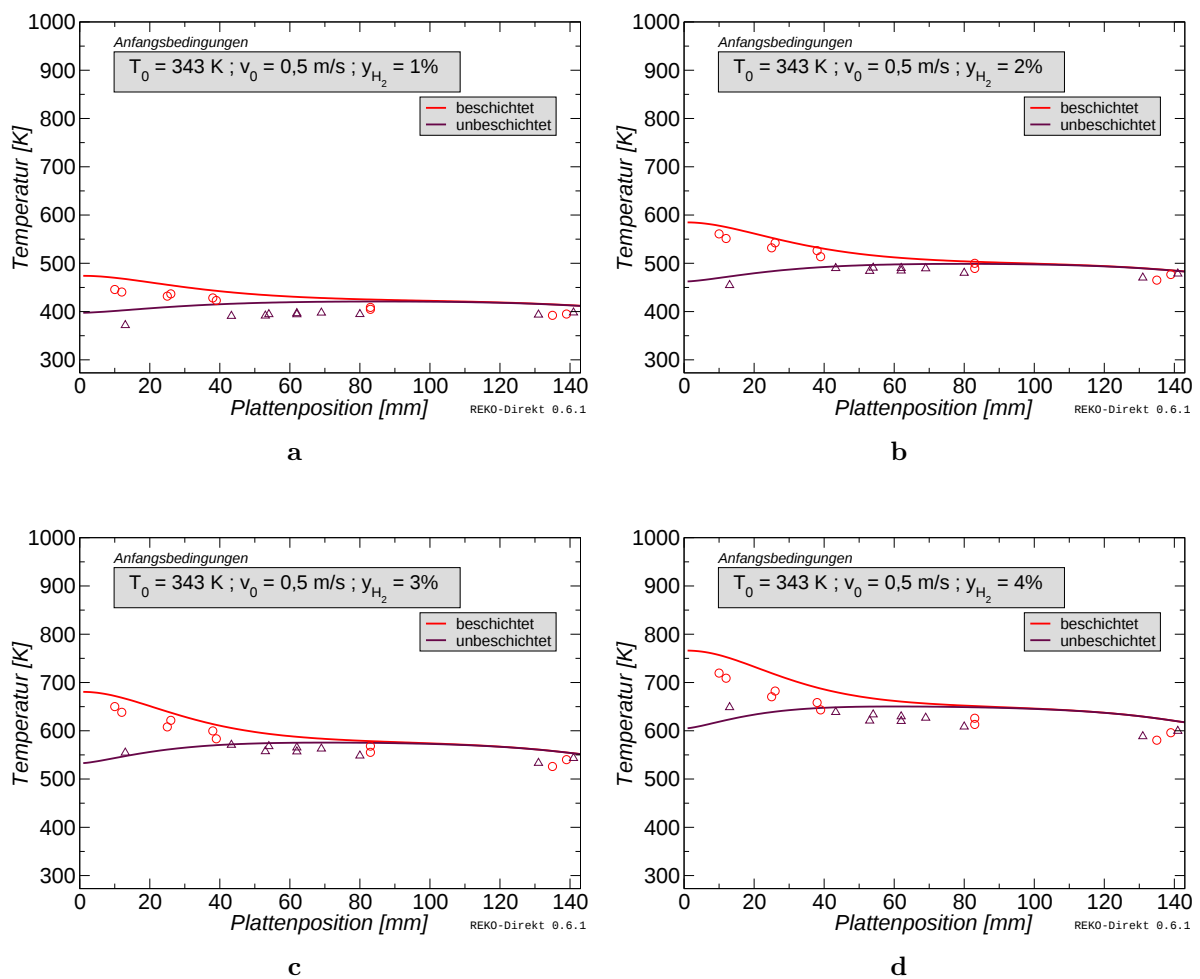


Abbildung 10.5: Temperaturverteilungen der beschichteten und unbeschichteten Platten bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0,5 \text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von

(a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

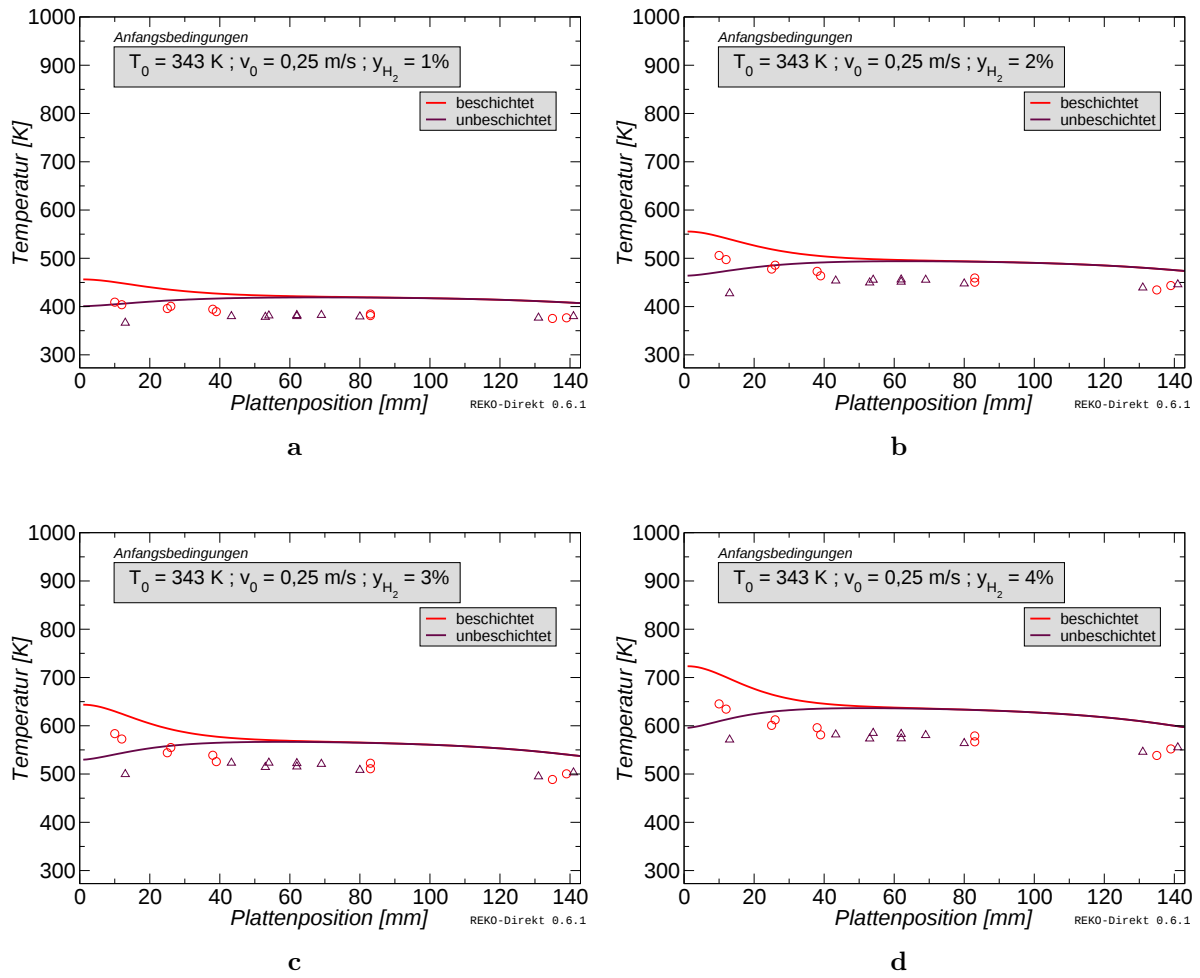


Abbildung 10.6: Temperaturverteilungen der beschichteten und unbeschichteten Platten bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ und mit einer H_2 -Eintrittskonzentration von
 (a) $y_0 = 1\%$, (b) $y_0 = 2\%$, (c) $y_0 = 3\%$ und (d) $y_0 = 4\%$.

10.3 Teilbeschichtung

Am Prüfstand REKO-3 wurden mit einer sogenannten Teilbeschichtung Messungen durchgeführt. Hierbei beginnt die Katalysatorschicht erst ab einer Plattenhöhe von 29 mm . Der Streifen unterhalb des Katalysators besteht nur aus dem Edelstahlsubstrat. Auch zu dieser Versuchsanordnung wurden Vergleichsrechnungen vorgestellt, die in den folgenden Abbildungen durchgeführt werden.

Der Temperaturrückgang im unbeschichteten Teil der Platten wird für H_2 -Konzentrationen oberhalb von 1% deutlich von der Simulation überschätzt. Messfehler aufgrund von Wärmeleitung in den Thermoelementen sind hier nicht auszuschließen.

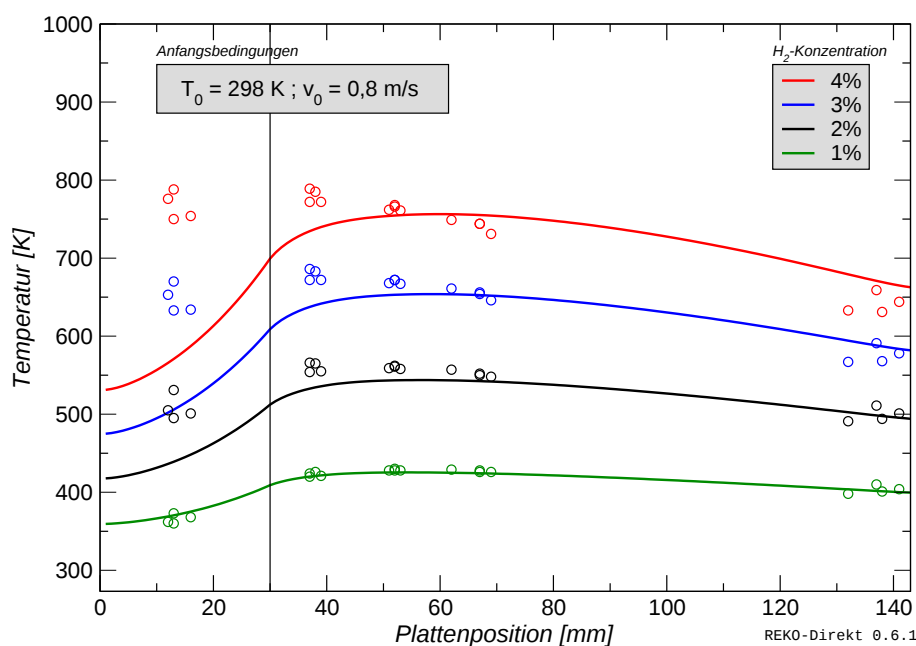


Abbildung 10.7: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298\text{ K}$, $v_0 = 0,8\text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

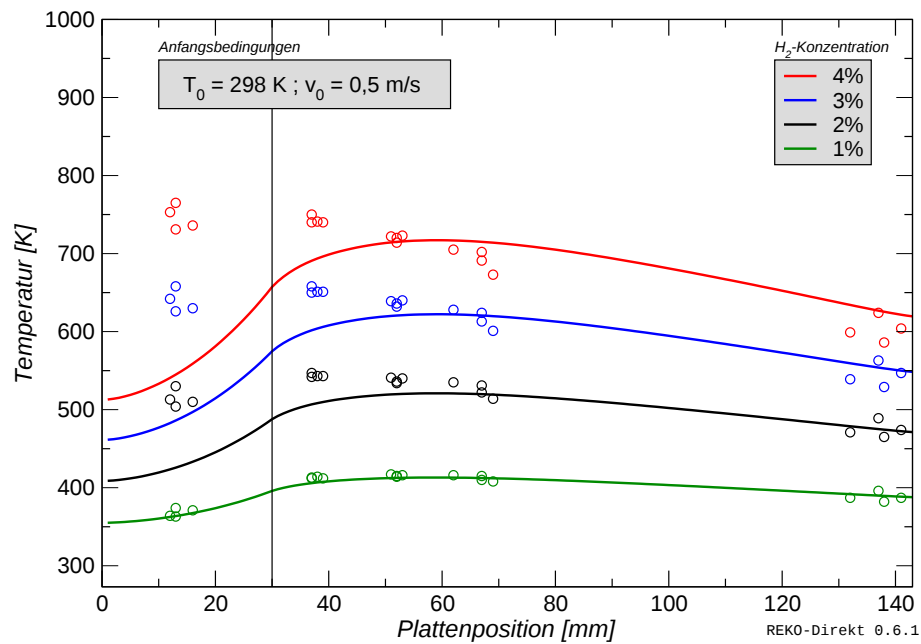


Abbildung 10.8: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,5 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

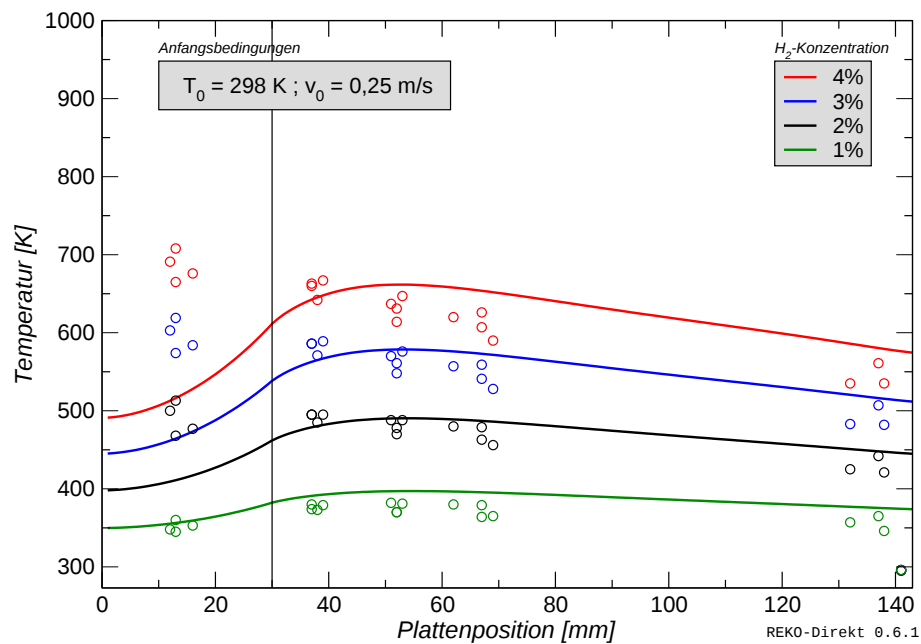


Abbildung 10.9: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 298 \text{ K}$, $v_0 = 0,25 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

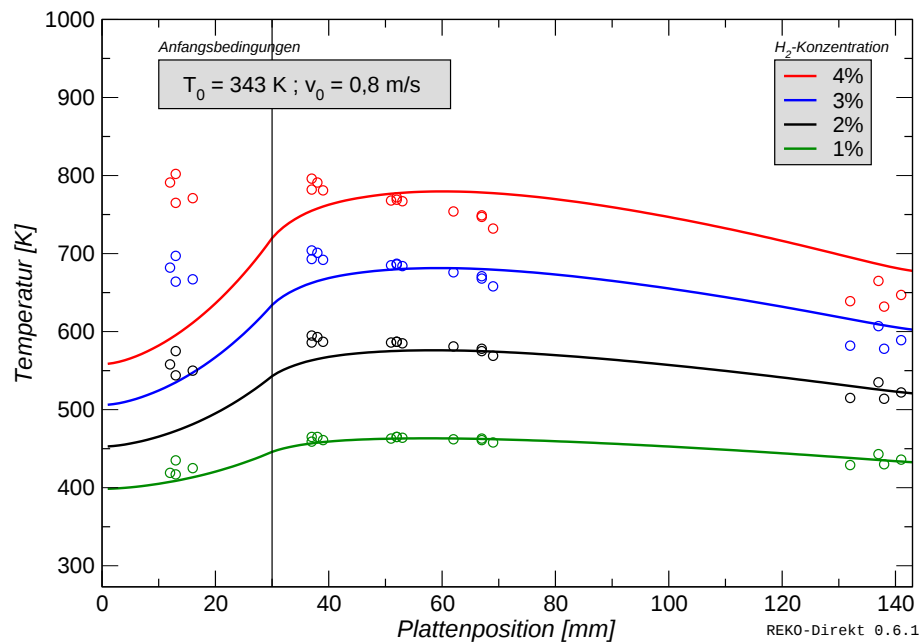


Abbildung 10.10: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0.8 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

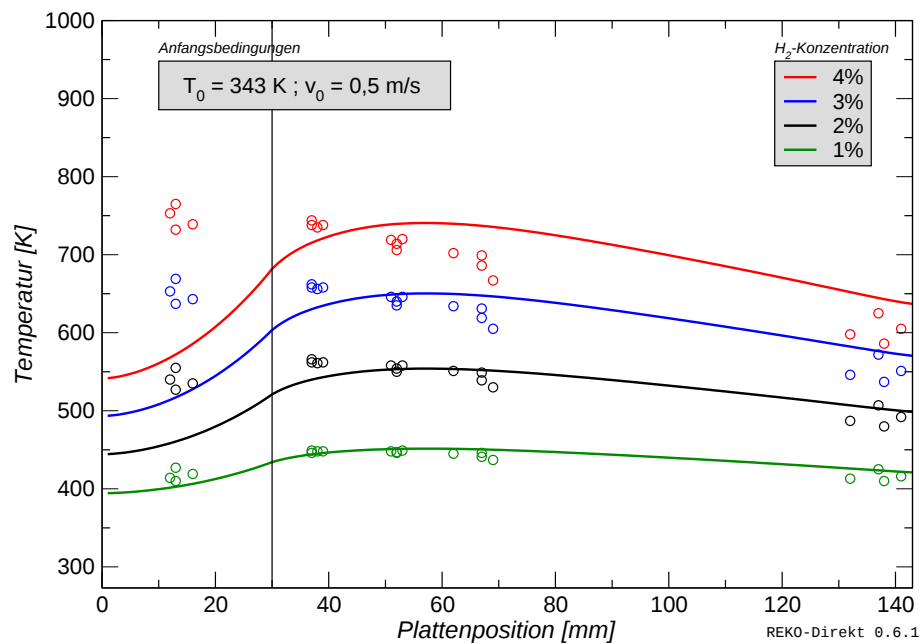


Abbildung 10.11: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0.5 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

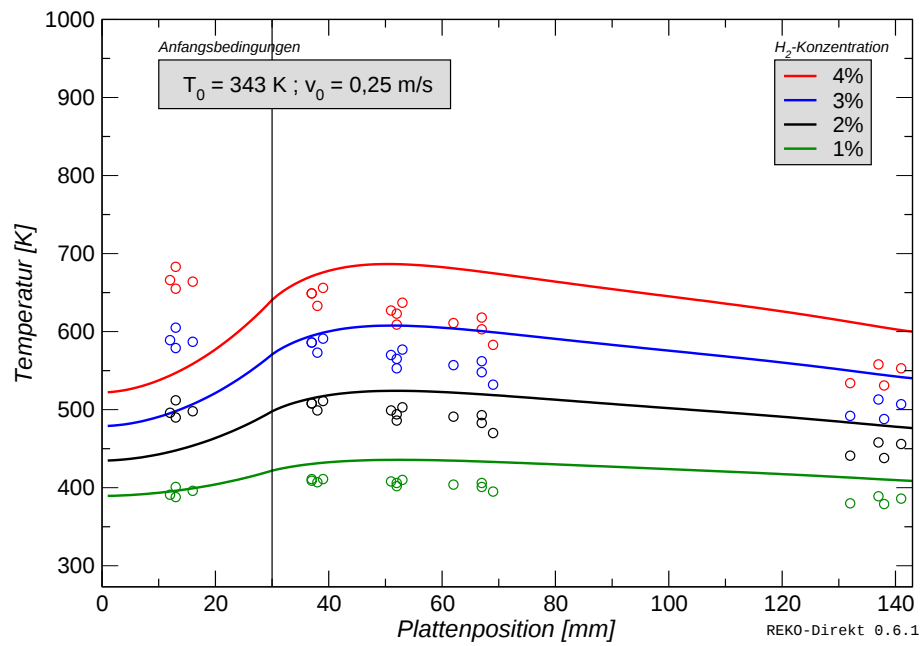


Abbildung 10.12: Temperaturverteilungen in der Platte bei $T_0 = 343 \text{ K}$, $v_0 = 0.25 \text{ m/s}$ und verschiedenen Anfangskonzentrationen

Danksagung

An erster Stelle möchte ich Herrn Prof. Dr.-Ing. Kurt Kugeler für die Betreuung und die Unterstützung dieser Arbeit danken.

Für die Übernahme des Korreferats und für die außergewöhnlich gute und intensive Zusammenarbeit während der Korrekturphase danke ich recht herzlich Herrn apl. Prof. Dr.-Ing. Elmar Achenbach.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr.-Ing. Ernst-Arndt Reinecke, der mich bei der Konzeption und Durchführung der Arbeit sowie der Erstellung der Dissertationsschrift betreute und mir in allen fachlichen Fragen stets zur Seite stand.

Meiner Kollegin Frau Dr.-Ing. Inga Maren Tragsdorf, meinen Kollegen Dipl.-Ing. Pere Drinovac und Dipl.-Ing. Stephan Struth danke ich für die anregenden fachlichen Diskussionen und für die Hilfe bei der Umsetzung dieser Arbeit.

Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei allen Mitarbeitern des Instituts für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik für die immer freundliche und hilfsbereite Unterstützung und die angenehme Arbeitsatmosphäre.

Ohne die ausdauernde und vielseitige Unterstützung meiner Eltern Doris und Helmut Böhm wäre die Umsetzung meiner Promotion kaum möglich gewesen. Besonders bei ihnen möchte ich mich von ganzem Herzen bedanken.

1. **Fusion Theory**
Proceedings of the Seventh European Fusion Theory Conference
edited by A. Rogister (1998); X, 306 pages
ISBN: 978-3-89336-219-6
2. **Radioactive Waste Products 1997**
Proceedings of the 3rd International Seminar on Radioactive Waste Products
held in Würzburg (Germany) from 23 to 26 June 1997
edited by R. Odoj, J. Baier, P. Brennecke et al. (1998), XXIV, 506 pages
ISBN: 978-3-89336-225-7
3. **Energieforschung 1998**
Vorlesungsmanuskripte des 4. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 20. bis 26. September 1998 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, K. Kugeler u. a. (1998),
500 Seiten
ISBN: 978-3-89336-226-4
4. **Materials for Advances Power Engineering 1998**
Abstracts of the 6th Liège Conference
edited by J. Lecomte-Beckers, F. Schubert, P. J. Ennis (1998), 184 pages
ISBN: 978-3-89336-227-1
5. **Materials for Advances Power Engineering 1998**
Proceedings of the 6th Liège Conference
edited by J. Lecomte-Beckers, F. Schubert, P. J. Ennis (1998),
Part I XXIV, 646, X pages; Part II XXIV, 567, X pages; Part III XXIV, 623, X
pages
ISBN: 978-3-89336-228-8
6. **Schule und Energie**
1. Seminar Energiesparen, Solarenergie, Windenergie. Jülich, 03. und
04.06.1998
herausgegeben von P. Mann, W. Welz, D. Brandt, B. Holz (1998), 112 Seiten
ISBN: 978-3-89336-231-8
7. **Energieforschung**
Vorlesungsmanuskripte des 3. Ferienkurses „Energieforschung“
vom 22. bis 30. September 1997 im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, K. Kugeler u. a. (1997),
505 Seiten
ISBN: 978-3-89336-211-0

8. **Liberalisierung des Energiemarktes**
Vortragsmanuskripte des 5. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 27. September bis 1. Oktober 1999 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, A. Kraft, K. Kugeler u. a. (1999), 350 Seiten
ISBN: 978-3-89336-248-6

9. **Models and Criteria for Prediction of Deflagration-to-Detonation Transition (DDT) in Hydrogen-Air-Steam-Systems under Severe Accident Conditions**
edited by R. Klein, W. Rehm (2000), 178 pages
ISBN: 978-3-89336-258-5

10. **High Temperature Materials Chemistry**
Abstracts of the 10th International IUPAC Conference, April 10 - 14 2000, Jülich
edited by K. Hilpert, F. W. Froben, L. Singheiser (2000), 292 pages
ISBN: 978-3-89336-259-2

11. **Investigation of the Effectiveness of Innovative Passive Safety Systems for Boiling Water Reactors**
edited by E. F. Hicken, K. Verfondern (2000), X, 287 pages
ISBN: 978-3-89336-263-9

12. **Zukunft unserer Energieversorgung**
Vortragsmanuskripte des 6. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 18. September bis 22. September 2000 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, S. Vögele, K. Kugeler u. a. (2000),
IV, 298 Seiten
ISBN: 978-3-89336-268-4

13. **Implementing Agreement 026**
For a Programme of Research, Development and Demonstration on Advanced
Fuel Cells: Fuel Cell Systems for Transportation. Annex X. Final Report 1997 -
1999
edited by B. Höhle; compiled by P. Biedermann (2000), 206 pages
ISBN: 978-3-89336-275-2

14. **Vorgespannte Guß-Druckbehälter (VGD) als berst sichere Druckbehälter für innovative Anwendungen in der Kerntechnik**
Prestressed Cast Iron Pressure Vessels as Burst-Proof Pressure Vessels for
Innovative Nuclear Applications
von W. Fröhling, D. Bounin, W. Steinwarz u. a. (2000) XIII, 223 Seiten
ISBN: 978-3-89336-276-9

15. **High Temperature Materials Chemistry**
Proceedings of the 10th International IUPAC Conference
held from 10 to 14 April 2000 at the Forschungszentrum Jülich, Germany
Part I and II
edited by K. Hilpert, F. W. Froben, L. Singheiser (2000), xvi, 778, VII pages
ISBN: 978-3-89336-259-2

16. **Technische Auslegungskriterien und Kostendeterminanten von SOFC- und PEMFC-Systemen in ausgewählten Wohn- und Hotelobjekten**
von S. König (2001), XII, 194 Seiten
ISBN: 978-3-89336-284-4
17. **Systemvergleich: Einsatz von Brennstoffzellen in Straßenfahrzeugen**
von P. Biedermann, K. U. Birnbaum, Th. Grube u. a. (2001), 185 Seiten
ISBN: 978-3-89336-285-1
18. **Energie und Mobilität**
Vorlesungsmanuskripte des 7. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 24. September bis 28. September 2001 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, J. Linßen, W. Pfaffenberger u. a. (2001),
205 Seiten
ISBN: 978-3-89336-291-2
19. **Brennstoffzellensysteme für mobile Anwendungen**
von P. Biedermann, K. U. Birnbaum, Th. Grube u. a. (2002)
PDF-Datei auf CD
ISBN: 978-3-89336-310-0
20. **Materials for Advances Power Engineering 2002**
Abstracts of the 7th Liège Conference
edited by J. Lecomte-Beckers, M. Carton, F. Schubert, P. J. Ennis (2002),
c. 200 pages
ISBN: 978-3-89336-311-7
21. **Materials for Advanced Power Engineering 2002**
Proceedings of the 7th Liège Conference
Part I, II and III
edited by J. Lecomte-Beckers, M. Carton, F. Schubert, P. J. Ennis (2002),
XXIV, 1814, XII pages
ISBN: 978-3-89336-312-4
22. **Erneuerbare Energien: Ein Weg zu einer Nachhaltigen Entwicklung?**
Vorlesungsmanuskripte des 8. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 23. bis 27. September 2002 in der Jakob-Kaiser-Stiftung, Königswinter
herausgegeben von J.-Fr. Hake, R. Eich, W. Pfaffenberger u. a. (2002),
IV, 230 Seiten
ISBN: 978-3-89336-313-1
23. **Einsparpotenziale bei der Energieversorgung von Wohngebäuden durch Informationstechnologien**
von A. Kraft (2002), XII, 213 Seiten
ISBN: 978-3-89336-315-5

24. Energieforschung in Deutschland

Aktueller Entwicklungsstand und Potentiale ausgewählter nichtnuklearer Energietechniken

herausgegeben von M. Sachse, S. Semke u. a. (2002), II, 158 Seiten, zahlreiche farb. Abb.

ISBN: 978-3-89336-317-9

25. Lebensdaueranalysen von Kraftwerken der deutschen Elektrizitätswirtschaft

von A. Nollen (2003), ca. 190 Seiten

ISBN: 978-3-89336-322-3

26. Technical Session: Fuel Cell Systems of the World Renewable Energy Congress VII

Proceedings

edited by D. Stolten and B. Emonts (2003), VI, 248 pages

ISBN: 978-3-89336-332-2

27. Radioactive Waste Products 2002 (RADWAP 2002)

Proceedings

edited by R. Odoj, J. Baier, P. Brennecke and K. Kühn (2003), VI, 420 pages

ISBN: 978-3-89336-335-3

28. Methanol als Energieträger

von B. Höhle, T. Grube, P. Biedermann u. a. (2003), XI, 109 Seiten

ISBN: 978-3-89336-338-4

29. Hochselektive Extraktionssysteme auf Basis der Dithiophosphinsäuren: Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Actinoiden(III)-Abtrennung

von S. A. H. Nabet (2004), VI, 198 Seiten

ISBN: 978-3-89336-351-3

30. Benchmarking-Methodik für Komponenten in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen

von Matthias Gebert (2004), 194 Seiten

ISBN: 978-3-89336-355-1

31. Katalytische und elektrochemische Eigenschaften von eisen- und kobalthaltigen Perowskiten als Kathoden für die oxidkeramische Brennstoffzelle (SOFC)

von Andreas Mai (2004), 100 Seiten

ISBN: 978-3-89336-356-8

32. Energy Systems Analysis for Political Decision-Making

edited by J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, R. Eich (2004), 180 pages

ISBN: 978-3-89336-365-0

33. **Entwicklung neuer oxidischer Wärmedämmschichten für Anwendungen in stationären und Flug-Gasturbinen**
von R. Vaßen (2004), 141 Seiten
ISBN: 978-3-89336-367-4
34. **Neue Verfahren zur Analyse des Verformungs- und Schädigungsverhaltens von MCrAlY-Schichten im Wärmedämmschichtsystem**
von P. Majerus (2004), 157 Seiten
ISBN: 978-3-89336-372-8
35. **Einfluss der Oberflächenstrukturierung auf die optischen Eigenschaften der Dünnschichtsolarzellen auf der Basis von a-Si:H und μ c-Si:H**
von N. Senoussaoui (2004), 120 Seiten
ISBN: 978-3-89336-378-0
36. **Entwicklung und Untersuchung von Katalysatorelementen für innovative Wasserstoff-Rekombinatoren**
von I.M. Tragsdorf (2005), 119 Seiten
ISBN: 978-3-89336-384-1
37. **Bruchmechanische Untersuchungen an Werkstoffen für Dampfkraftwerke mit Frischdampftemperaturen von 500 bis 650°C**
von L. Mikulová (2005), 149 Seiten
ISBN: 978-3-89336-391-9
38. **Untersuchungen der Strukturstabilität von Ni-(Fe)-Basislegierungen für Rotorwellen in Dampfturbinen mit Arbeitstemperaturen über 700 °C**
von T. Seliga (2005), 106 Seiten
ISBN: 978-3-89336-392-6
39. **IWV-3 Report 2005. Zukunft als Herausforderung**
(2005), 115 Seiten
ISBN: 978-3-89336-393-3
40. **Integrierter Photodetektor zur Längenmessung**
von E. Bunte (2005), XI, 110 Seiten
ISBN: 978-3-89336-397-1
41. **Microcrystalline Silicon Films and Solar Cells Investigated by Photoluminescence Spectroscopy**
by T. Merdzhanova (2005), X, 137 pages
ISBN: 978-3-89336-401-5
42. **IWV-3 Report 2005. Future as a challenge**
(2005), 115 pages
ISBN: 978-3-89336-405-3
43. **Electron Spin Resonance and Transient Photocurrent Measurements on Microcrystalline Silicon**
by T. Dylla (2005), X, 138 pages
ISBN: 978-3-89336-410-7

44. **Simulation und Analyse des dynamischen Verhaltens von Kraftwerken mit oxidkeramischer Brennstoffzelle (SOFC)**
von M. Finkenrath (2005), IV, 155 Seiten
ISBN: 978-3-89336-414-5
45. **The structure of magnetic field in the TEXTOR-DED**
by K.H. Finken, S.S. Abdullaev, M. Jakubowski, M. Lehnen, A. Nicolai, K.H. Spatschek (2005), 113 pages
ISBN: 978-3-89336-418-3
46. **Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapels der 5 kW Klasse**
von T. Wüster (2005), 211 Seiten
ISBN: 978-3-89336-422-0
47. **Die Normal-Wasserstoffelektrode als Bezugselektrode in der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle**
von M. Stähler (2006), VI, 96 Seiten
ISBN: 978-3-89336-428-2
48. **Stabilitäts- und Strukturmodifikationen in Katalysatordispersionen der Direktmethanolbrennstoffzelle**
von C. Schlumbohm (2006), II, 211 Seiten
ISBN: 978-3-89336-429-9
49. **Eduktvorbereitung und Gemischbildung in Reaktionsapparaten zur autothermen Reformierung von dieselähnlichen Kraftstoffen**
von Z. Porš (2006), XX, 182, XII Seiten
ISBN: 978-3-89336-432-9
50. **Spektroskopische Untersuchung der poloidalen Plasmarotation unter dem Einfluß statischer und dynamischer Ergodisierung am Tokamak TEXTOR**
von C. Busch (2006), IV, 81 Seiten
ISBN: 978-3-89336-433-6
51. **Entwicklung und Optimierung von Direktmethanol-Brennstoffzellstapeln**
von M. J. Müller (2006), 167 Seiten
ISBN: 978-3-89336-434-3
52. **Untersuchung des reaktiven Sputterprozesses zur Herstellung von aluminiumdotierten Zinkoxid-Schichten für Silizium-Dünnschichtsolarzellen**
von J. Hüpkes (2006), XIV, 170 Seiten
ISBN: 978-3-89336-435-0

53. **Materials for Advanced Power Engineering 2006**
Proceedings of the 8th Liège Conference
Part I, II and III
edited by J. Lecomte-Beckers, M. Carton, F. Schubert, P. J. Ennis (2006),
Getr. Pag.
ISBN: 978-3-89336-436-7

54. **Verdampfung von Werkstoffen beim Betrieb von
Hochtemperaturbrennstoffzellen (SOFC)**
von M. Stanislawski (2006), IV, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-438-1

55. **Methanol as an Energy Carrier**
edited by P. Biedermann, Th. Grube, B. Höhle (2006), XVII, 186 pages
ISBN: 978-3-89336-446-6

56. **Kraftstoffe und Antriebe für die Zukunft**
Vorlesungsmanuskripte des 1. Herbstseminars „Kraftstoffe und Antriebe für die
Zukunft“ vom 9.-13. Oktober 2006 an der TU Berlin
herausgegeben von V. Schindler, C. Funk, J.-Fr. Hake, J. Linßen (2006), VIII,
221 Seiten
ISBN: 978-3-89336-452-7

57. **Plasma Deposition of Microcrystalline Silicon Solar Cells: Looking Beyond
the Glass**
by M. N. van den Donker (2006), VI, 110 pages
ISBN: 978-3-89336-456-5

58. **Nuclear Energy for Hydrogen Production**
by K. Verfondern (2007), 186 pages
ISBN: 978-3-89336-468-8

59. **Kraft-Wärme-Kopplung mit Brennstoffzellen in Wohngebäuden im
zukünftigen Energiesystem**
von C. H. Jungbluth (2007), XI, 197 Seiten
ISBN: 978-3-89336-469-5

60. **Finite Element Simulation of Stress Evolution in Thermal Barrier Coating
Systems**
by P. Bednarz (2007), XIV, 121 pages
ISBN: 978-3-89336-471-8

61. **Modellierung der Prozesse in katalytischen Rekombinatoren**
von J. Böhm (2007), VI, 116 Seiten
ISBN: 978-3-89336-473-2

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Band / Volume 61
ISBN 978-3-89336-473-2

Energietechnik
Energy Technology