

EINFLUSS DER PORENDIFFUSION AUF KATALYTISCHE REAKTIONEN VIII.* MEHRDEUTIGE STATIONÄRE LÖSUNGEN IN ISOTHERMEN SYSTEMEN

P. MITSCHKA und P. SCHNEIDER

*Institut für theoretische Grundlagen der chemischen Technik,
Tschechoslowakische Akademie der Wissenschaften, Prag-Suchbát*

Eingegangen am 5. Mai 1970

Es wurden hinreichende Bedingungen für die Existenz einer eindeutigen Lösung der Transportgleichungen der isothermen Porendiffusion in einem Katalysatorkorn abgeleitet, in welchem eine Reaktion verläuft, die mit einer kinetischen Langmuir-Hinshelwood-Gleichung (eine monomolekulare Reaktion mit der sog. „dual-site“ Kinetik und eine bimolekulare reversible Oberflächenreaktion 1. Ordnung bezüglich der Oberflächenkonzentrationen beider Ausgangssubstanzen) beschrieben werden kann. Von der Analogie zwischen einem diffusionsbeeinflusstem Katalysatorkorn und einem idealen Rührkesselreaktor (bzw. einem katalytischen System mit Filmdiffusion) ausgehend, wurden die nötigen und hinreichenden Bedingungen der Eindeutigkeit für diese Anordnungen bestimmt.

Verlässlich beglaubigte Bedingungen für die Existenz ein- bzw. mehrdeutiger Lösungen des Problems der stationären Porendiffusion sind bisher nur für nichtisotherme Fälle bekannt, und dies vor allem für exotherme Reaktionen 1. Ordnung,¹⁻⁶ vereinzelt auch für andere kinetische Potenzansätze^{3,7}. Das analoge Problem für ein isothermes poröses Katalysatorkorn, in welchem eine Reaktion verläuft, deren Kinetik das Auftreten mehrdeutiger, rein konzentrationsbedingter Lösungen zuläßt⁸⁻¹⁰, wird nur von Luss^{11,12} gestreift. Ziel dieser Mitteilung ist es, einige in letzter Zeit in der Literatur in Vorschlag gebrachte Multiplizitätskriterien auf das Problem der stationären isothermen Porendiffusion anzuwenden und vollständigere Erkenntnisse über diese Erscheinungen zu gewinnen.

THEORETISCHER TEIL

Wie aus früheren Arbeiten^{9,10} hervorgeht, kann das Problem der stationären Porendiffusion in einem porösen Katalysator durch die dimensionslose Bilanzgleichung

* VII. Mitteilung: diese Zeitschrift 35, 1617 (1970).

einer einzigen (Schlüssel-)Komponente in der Form

$$\nabla^2 y = M^2 f(y) \quad (1)$$

mit den Randbedingungen

$$\text{äußere Katalysatoroberfläche:} \quad y = 1,$$

$$\text{im Symmetriepunkt des Katalysatorteilchens:} \quad y' = 0,$$

beschrieben werden. In der Gl. (1) steht $f(y)$ für die dimensionslose – auf die Geschwindigkeit der Reaktion bei den auf der äußeren Oberfläche vorherrschenden Bedingungen bezogene – kinetische Gleichung der sich in der porösen Struktur des Katalysators abspielenden Reaktion, welche einen oder mehrere (mit Vorteil dimensionslose) Parameter enthalten kann; y ist dann die dimensionslose Konzentration der Schlüsselkomponente im porösen Gerüst, die derart definiert wird, daß sie im Intervall $y \in (0,1)$ liegt.

Bedingungen für die Eindeutigkeit der Lösung der Gl. (1). Durch eine ganz allgemein geführte Analyse gewisser Eigenschaften der Funktion $f(y)$ aus der Gl. (1) können verschieden starke Kriterien abgeleitet werden, die in den Definitionsbereichen der Parameter der entsprechenden kinetischen Gleichung Gebiete festlegen, in welchen ohne Rücksicht auf den Wert des Moduls M immer nur eine einzige Lösung der Transportgleichung (1) existiert.

Falls auf der Abhängigkeit $f(y)$ bei einem gewissen Wert der dimensionslosen Konzentration y_m ein Maximum auftritt, dann garantiert die Forderung, daß dieses Maximum nicht im aus physikalischen Gründen zulässigen Intervall ($y \in (0,1)$) liegt, d.h. daß

$$y_m > 1 \quad \text{oder} \quad y_m < 0 \quad (2)$$

gilt, augenscheinlich die Eindeutigkeit der Lösung der Gl. (1). Eine sehr verbreitete Methode für die Darstellung des Einflusses der Porendiffusion auf die Geschwindigkeit der chemischen Reaktion ist das „Porenausnutzungsgradkonzept“^{13,4}, welches in seiner graphischen Form zu Abhängigkeiten des Nutzungsgrads η vom Modul M – u.U. mit weiteren Parametern – führt. In solchen Aufzeichnungen sichert die vorstehende Bedingung (2), daß in allen Fällen $\eta(M) < 1$ gilt und daß der Nutzungsgrad mit ansteigendem Wert des Moduls M monoton absinkt.

Eine weniger konservative Bedingung für die Eindeutigkeit der Lösung der Gl. (1) ergibt sich aus der Forderung, daß im Intervall der Konzentrationen $y \in (0,1)$ nicht einmal die Koordinate des Wendepunkts y_i der Abhängigkeit $f(y)$ liegt, d.h. daß

$$y_i > 1 \quad \text{oder} \quad y_i < 0 \quad (3)$$

gilt. Unter diesen Bedingungen kann der Nutzungsgrad dann auch schon Werte erreichen, die größer als 1 sind ($\eta > 100\%$).

Schließlich führt Aris⁴ an, daß eine die Parameter am wenigsten einschränkende Bedingung für die Eindeutigkeit der Lösung der Gl. (1) mit Hilfe der Funktion $h(y)$

$$h(y) \equiv f(y) - (y - 1) f'(y) \quad (4)$$

abgeleitet werden kann, u. zw. durch die Forderung, daß $h(y)$ für alle physikalisch zulässigen y ausschließlich positive Werte annehmen soll. Durch Analyse der Beziehung (4) ist leicht festzustellen, daß $h(y)$ ihren minimalen Wert gerade für die Koordinate des Wendepunkts y_i annimmt, so daß die von Aris⁴ in Vorschlag gebrachte Bedingung für die Eindeutigkeit der Gl. (1) wie folgt formuliert werden kann:

$$h(y_i) > 0 \quad \text{für } y_i \in (0,1). \quad (4a)$$

Es kann aufgezeigt werden, daß die Beziehung (4a) mit der von Luss¹² formulierten Eindeutigkeitsbedingung

$$\sup_{0 \leq y \leq 1} (y - 1) \frac{d \ln f(y)}{dy} \leq 1 \quad (4b)$$

übereinstimmt.

Zu gleichen Ergebnissen führt letzten Endes auch die Methode von Hlaváček, Marek und Kubiček³, die auf der (approximativen) Voraussetzung beruht, daß die raumverteilten Temperatur- und demnach auch die Konzentrations-Verhältnisse im Katalysatorkorn durch einen einzigen geeignet gewählten durchschnittlichen Wert der Temperatur oder aber der Konzentration erfaßt werden können.

Die soeben angeführten Bedingungen der Eindeutigkeit (2), (3) und (4a) können in einfacher Weise auf die bisher bekannten Fälle der isothermen Porendiffusion angewendet werden, bei denen die Existenz mehrdeutiger stationärer Lösungen vorausgesagt wurde⁸⁻¹⁰.

Reaktionen mit der sog. „dual-site“ Kinetik. Wenn in dem porösen Katalysatorkorn unter isothermen Bedingungen eine Reaktion verläuft, deren Kinetik mit dem sog. „dual-site“ Mechanismus erfaßt werden kann, dann ergibt sich $f(y)$ zu

$$f(y) = (1 + B)^2 y / (1 + By)^2, \quad (5)$$

wobei B einen dimensionslosen (Adsorptions)-Parameter darstellt ($B > -1$).

Für die Koordinaten des Maximums y_m und des Wendepunkts y_i auf einer solchen Abhängigkeit gilt

$$y_m = 1/B \quad (5a)$$

$$y_i = 2/B. \quad (5b)$$

Die Bedingungen für die Eindeutigkeit der Lösung der Gl. (1) mit dem kinetischen Ansatz (5) erhält man sodann in der Form der folgenden einfachen Beziehungen:

$$\text{aus der Bedingung (2): } B < 1 \quad (6a)$$

$$\text{aus der Bedingung (3): } B < 2 \quad (6b)$$

$$\text{aus der Bedingung (4a): } B < 8. \quad (6c)$$

Die Relationen (6a), (6b) und (6c) stellen somit drei verschiedene hinreichenden Bedingungen für die Existenz einer eindeutigen Lösung der Gl. (1) mit dem kinetischen Ansatz (5) dar, und dies für den gesamten Bereich des Moduls M .

Bimolekulare Reaktionen vom Langmuir-Hinshelwood-Typ. Für eine isotherme reversible bimolekulare Reaktion ist die dimensionslose Reaktionsgeschwindigkeit in der porösen Struktur $f(y)$ durch die zwei Parameter enthaltende Beziehung

$$f(y) = y \left(\frac{1+B}{1+By} \right)^2 \left(\frac{y+C}{1+C} \right) \quad (7)$$

gegeben, in der die Parameter B und C die Werte

$$B > -1$$

$$C \geq 0 \quad \text{oder} \quad C < -1$$

annehmen können.

Für die Koordinaten des Maximums und des Wendepunkts auf dieser Abhängigkeit gilt

$$y_m = C/(BC - 2), \quad (8a)$$

$$y_i = (2BC - 1)/B(BC - 2). \quad (8b)$$

Die Erfüllung der Forderung (2) führt zu der Beziehung

$$C < 2/(B - 1), \quad (9a)$$

die ein sehr konservatives Kriterium der Eindeutigkeit darstellt (siehe auch¹²). Die Eindeutigkeitsbedingung gemäß der Gl. (9a) ist in der Abb. 1 – in der Parameterebene B - C – graphisch festgehalten: in den Bereichen I existiert im ganzen Bereich des Moduls M nur eine einzige Lösung der Gl. (1) mit dem kinetischen Ansatz (7).

Aus der Relation (3) resultiert ein stärkeres Kriterium der Eindeutigkeit in der Form

$$C < (2B - 1)/B(B - 2), \quad (9b)$$

Aus der Abb. 1 ist ersichtlich, daß durch Auswertung dieses weniger konservativen Kriteriums der Bereich der eindeutigen Lösungen um die Bereiche II erweitert wird.

Ein die Parameter am wenigsten einschränkendes Eindeutigkeitskriterium ergibt sich aus der Arrisschen Beziehung (4a). Für den kinetischen Ansatz (7) resultiert die Beziehung

$$(2BC - 1)^3 - B(BC - 2)^3 > 0, \quad (9c)$$

Die Trennlinie $C_0 = C_0(B_0)$ (siehe Kurven 3,3' in der Abb. 1), welche der Lösung der Gleichung

$$(2B_0C_0 - 1)^3 - B_0(B_0C_0 - 2)^3 = 0 \quad (10)$$

entspricht, begrenzt in der Parameterebene $B - C$ die Eindeutigkeitsbereiche I bis III, in welchen allen die Relation (10) erfüllt ist. Die Gl. (10) kann in einfacher Weise direkt* gelöst werden, da nach Einführung des Parameters $\alpha = B_0C_0$ offensichtlich

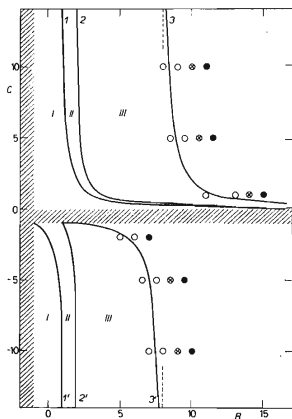


ABB. 1

Graphische Darstellung verschiedener Eindeutigkeitskriterien für eine isotherme bimolekulare Reaktion — kinetischer Ansatz (7)

1,1' Kurve $C = 2/(B - 1)$, Beziehung (9a). 2,2' Kurve $C = (2B - 1)/B(B - 2)$, Beziehung (9b). 3,3'-Graphisches Bild der Lösung der Gl. (10). Schraffiert sind die Bereiche, wo die Parameter B und C nicht definiert sind⁹ ($B < -1$, $C \in (0, -1)$). Die exakte (numerische) Lösung der Transportgleichung (1) und (7) in einem plattenförmigen Katalysatorpartikeln liefert: ○ eine eindeutige Lösung, ⊗ eine „kritische“ Lösung ● (drei) mehrdeutige Lösungen.

* Die Anwendung des Luss'schen Kriteriums (4b) auf eine bimolekulare irreversible Reaktion vom Langmuir-Hinshelwood-Typ (kinetischer Ansatz (7) für $C > 0$) führt hingegen zu einem System von Gleichungen¹², das mit einer Iterationsrechnung zu lösen ist.

$$B_0 = \left(\frac{2\alpha - 1}{\alpha - 2} \right)^3,$$

$$C_0 = \frac{\alpha}{B_0} = \alpha \left(\frac{\alpha - 2}{2\alpha - 1} \right)^3, \quad (11)$$

gilt.

Für $|C_0| \rightarrow \infty$, d.h. für $|\alpha| \rightarrow \infty$, nähert sich B_0 dem Wert $B_0 = 8$, was gut mit der formalen Überführung der kinetischen Gleichung (7) für $|C| \rightarrow \infty$ in den Ansatz (5) korrespondiert.

DISKUSSION

Übereinstimmung mit den Resultaten der exakten Berechnungen

Die Eignung der abgeleiteten Eindeutigkeitskriterien kann am besten durch Vergleich mit den Resultaten exakter (numerischer) Lösungen der entsprechenden Differentialgleichungen beurteilt werden, welche für eine Reihe von Parametern oder von Parameterkombinationen in der nahen Umgebung der am wenigsten einschränkenden Bedingungen ermittelt werden.

Für den kinetischen Ansatz (5) und für plattenförmige Katalysatorpartikel sind die Ergebnisse einer solchen „Abtastung“ in der Abb. 2 festgehalten. Aus dieser Abbildung geht hervor, daß der tatsächliche Übergang von ein- zu mehrdeutigen Lösungen bei einem kritischen Wert des Parameters B , u.zw. bei $B_{s1}^* = 9,65$, erfolgt. Eine genauere Bestimmung dieser Kenngröße scheint kaum sinnvoll zu sein, da deren Zahlenwert u.a. auch von der Genauigkeit der benutzten numerischen Methode abhängt. Eine Übereinstimmung auf ca. 20% mit der den Parameter B am wenigsten einschränkenden Bedingung $B_0 = 8$ (siehe Gl. (6c)) ist zwar schlechter als bei dem von Drott und Aris⁵ detailliert durchgerechnetem Fall einer exothermen Reaktion 1. Ordnung, wo mittlere Abweichungen von etwa +3% festgestellt wurden, ist aber für Zwecke einer ersten Orientierung noch gut ausreichend.

Aus den Ergebnissen der exakten Lösung des gleichen Problems für Katalysator-kügelchen¹⁰ ergibt sich weiters, daß der kritische Wert B_{sph}^* noch höher liegen wird als bei den plattenförmigen Katalysatorpartikeln, was mit den von anderen Autoren³ beobachteten Trends übereinstimmt.

Zusammenfassend kann also festgestellt werden, daß es durch Analyse gewisser Eigenschaften der Funktion $f(y)$ bei einem System mit verteilten Parametern – beschrieben durch die Gl. (1) – möglich ist lediglich *hinreichende* Bedingungen für die Eindeutigkeit der stationären Lösungen zu gewinnen; die verschiedenen Bedingungen unterscheiden sich in ihrer Stärke (in ihrem Konservatismus) im Vergleich zu den exakt ermittelten kritischen Werten (siehe z.B. die Beziehungen (6a), (6b))

und (6c) in Bezug zu B_{sl}^* bzw. B_{spb}^*). Die Zahlenwerte der tatsächlichen kritischen Parameter können in diesem Falle nur durch exakte Lösung der kompletten Differentialgleichung bestimmt werden, woraus automatisch hervorgeht, daß sich diese Kenngrößen z.B. für verschiedene Korngeometrien unterscheiden werden.

Bei der zwei Parameter enthaltenden kinetischen Gleichung (7) für eine bimolekulare Reaktion vom Langmuir-Hinshelwood-Typ würde eine präzisere systematische Ermittlung der entsprechenden Wertepaare der kritischen Daten (z.B. in Form der Abhängigkeit $B^* = B^*(C^*)$) einen enormen Maschinenzeitbedarf erfordern. Wir beschränkten uns deshalb nur auf eine teilweise Beglaubigung der Erfüllung der abgeleiteten Eindeigkeitskriterien durch Berechnungen für ausgewählte Kombinationen der Parameter B und C , und dies wiederum nur für die Plattengeometrie der Katalysatorpartikel (siehe Abb. 1).

Wie aus der Abb. 1 ersichtlich, führt die Bedingung (9c) auch in diesem komplizierteren Fall gleichfalls zu einer mäßig konservativen Trennlinie zwischen den Bereichen ein- und mehrdeutiger Lösungen.

Zur Verwirklichbarkeit der kritischen Parameterwerte

Im Zusammenhange mit den Möglichkeiten des Auftretens und der experimentellen Ermittlung von Nutzungsgraden, die höher als 1 liegen, gegebenenfalls mit der Erreichung von Bedingungen, bei denen sogar mehrdeutige Lösungen auftreten

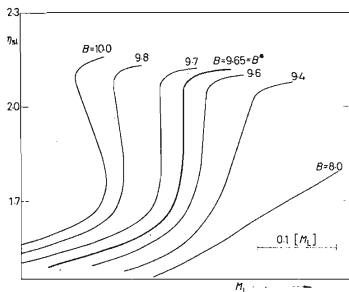


ABB. 2

Ergebnisse der exakten numerischen Lösung der Gl. (1) für den kinetischen Ansatz (5) für ein plattenförmiges Katalysatorpartikel-Ermittlung von B^* durch „Abtastung“ des Parameterbereichs.

Die Skalen für M_L sind gegenseitig verschoben.

könnten, wird oft die Frage der Verwirklichbarkeit der entscheidenden Parameterwerte diskutiert. So wurde z.B. für den einfachsten Fall einer exothermen Reaktion 1. Ordnung mehrmals festgestellt (siehe z.B.¹³), daß die maximal erreichbaren, praktisch aber an der Grenze der physikalischen Möglichkeiten des Systems feste katalytisch aktive Phase reagierendes Gas liegenden Werte der zuständigen Parameter immer noch für die Erreichung von Bereichen mehrdeutiger Lösungen viel zu niedrig sind. Für diese Überlegungen zeugt auch die Tatsache, daß bisher keine umfangreicheren Experimentaldatensätze mit $\eta > 1$ veröffentlicht wurden.

Aus den im vorhergehenden berechneten Bedingungen der Eindeutigkeit bei isothermen diffusionsbeeinflussten Reaktionen mit der sog. „dual-site“ Kinetik oder mit einer isothermen bimolekularen Reaktion scheint demgegenüber hervorzugehen, daß es bei diesen Systemen unter wesentlich realistischeren Bedingungen möglich sein sollte, sowohl Nutzungsgrade höher als 1 zu erzielen als auch Bedingungen für das Auftreten mehrdeutiger Lösungen zu erreichen.

Als Beispiel zu diesen Erwägungen können die Ergebnisse der Studie von Padberg¹⁴ über die katalytische Kohlenmonoxidation mit Luftsauerstoff herangezogen werden, da es möglich ist die ursprünglichen Daten mit Hilfe einer dem Ansatz (7) analogen kinetischen Gleichung für eine bimolekulare Reaktion zu korrelieren. Die Experimentalbedingungen — genügender Sauerstoffüberschuß, starke Adsorption von CO in Vergleich mit der Adsorption anderer Reaktionspartner ($K_{\text{CO},128^\circ\text{C}} = 340 \text{ atm}^{-1}$, $K_{\text{O}_2,128^\circ\text{C}} = 2,3 \text{ atm}^{-1}$) — ermöglichen dann den Übergang zu einer einfacheren kinetischen Gleichung im Sinne des sog. „dual-site“ Mechanismus, analog dem Ansatz (5). Die Diffusionsbeeinflussung dieses Typs von Reaktionen ist vor allem durch den Parameter B charakterisiert. Unter den vorangeführten Vereinfachungen ergibt sich seine Definition zu $B = K_{\text{CO}} p_{\text{CO},i}$, wo $p_{\text{CO},i}$ den Partialdruck des Kohlenmonoxids an der äußeren Katalysatoroberfläche bezeichnet. Für hohe Werte des Parameters B kann der Ansatz (5) in einem gewissen Konzentrationsbereich durch eine kinetische Potenzgleichung mit negativer Reaktionsordnung (siehe¹⁵) ersetzt werden.

Die Bedingung $B > 1$, die die Existenz von Nutzungsgraden größer als 1 zuläßt, sollte für dieses System ähnlich wie die Bedingung $B > B_{s1}^* = 9,65$, die das Auftreten von mehrdeutigen Lösungen in einem plattenförmigen Katalysatorteilchen garantiert, unter verhältnismäßig realen Bedingungen zu erfüllen sein, z.B. schon bei einer 0,3 bzw. 3%igen Konzentration von Kohlenmonoxid in Luft (bei 1 atm Gesamtdruck). Nutzungsgrade, die den Wert von 100% überschreiten, wurden bei der Kohlenmonoxidoxidation tatsächlich auch experimentell beobachtet¹⁶ (Katalysator: Pt auf Alumosilikat, „Modellkontaktnanordnung“^{17,18}, 124°C , $p_{\text{CO},i} \approx 10^{-2} \text{ atm}$).

Analogie zwischen Porendiffusion und idealem Rührkessel, bzw. Filmdiffusion

Wie bekannt, kann die mathematische Beschreibung verschiedener physikalischer Systeme mit chemischer Reaktion praktisch identisch oder im beträchtlichem Ausmaß analog sein (siehe z.B.^{4,19}). Derartige formale Ähnlichkeiten können oft zur Übertragung von Erkenntnissen aus einer Anordnung auf andere analoge Fälle ausgenützt werden.

Da die Beziehungen für die Eindeutigkeit der Lösungen der Gl. (1) ausschließlich aus den Eigenschaften der Funktion $f(y)$ abgeleitet wurden, scheint die Annahme

berichtigt zu sein, daß die gewonnenen Ergebnisse auch in anderen Systemen mit chemischer Reaktion gelten werden, insofern diese Anordnungen mit einer der Bilanzgleichung (1) analogen Gleichung erfaßt werden können.

So kann die Bilanzgleichung der Schlüsselkomponente einer sich in einem idealen Rührkessel abspielenden (katalytischen) Reaktion z.B. in der Form

$$(1 - y) = Da f(y) \quad (12)$$

geschrieben werden.

Ähnlich gilt

$$(1 - y) = \Phi f(y) \quad (13)$$

für den Fall einer auf der äußeren Oberfläche eines nichtporösen Katalysatorpartikels verlaufenden durch Filmdiffusion beeinflussten isothermen Reaktion.

In den Gl. (12) und (13) bezeichnet $f(y)$ wiederum die dimensionslose kinetische Gleichung, die – bis auf die Definition der in ihr auftretenden Parameter – formal z.B. mit den Ansätzen (5) oder (7) übereinstimmen kann.

Sobald die wahre Kinetik der verlaufenden Reaktion eine derartige ist, daß ihre dimensionslose Version die Form der Gl. (5) annimmt, müßte der gemäß des Kriteriums (6c) bestimmte Grenzwert (d.h. $B_0 = 8$) gleichfalls einen Trennpunkt zwischen den Bereichen der ein- und der mehrdeutigen Lösungen der in Erwägung gezogenen Fälle angeben.

Die Richtigkeit dieser Überlegungen kann aus den Ergebnissen von Arbeiten nachgewiesen werden, welche sich mit derartigen Systemen befaßten: Für den Fall des idealen Rührkessels ist es die Arbeit von Matsura und Kato (siehe Abb. 4 in²⁰), für eine isotherme katalytische Oberflächenreaktion mit Filmdiffusion dann die Ergebnisse laut Horák und Jiráček^{21,22}.

Zum Unterschied von der Porendiffusion (System mit verteilten Parametern), bei der die Erfüllung der Bedingung (4a) nur eine hinreichende Bedingung für die Eindeutigkeit der stationären Lösung darstellt, liefert bei den zweitangeführten Fällen (Systeme mit konzentrierten Parametern) die Erfüllung des gleichen Kriteriums eine Bedingung, die für die Eindeutigkeit der Lösung nötig und hinreichend ist ($B_0 = 8 = B^*$). Die aus der Beziehung (4a) bestimmten Grenzwerte stellen bei einem System mit konzentrierten Parametern direkt die kritischen Werte der Parameter dar. Bei Systemen mit verteilten Parametern kann der tatsächliche kritische Wert lediglich durch exakte Lösung des kompletten Systems der entsprechenden (Differential-) Gleichungen festgelegt werden.

VERZEICHNIS DER SYMBOLE

- B dimensionsloser Parameter
 C dimensionsloser Parameter
 Da Damköhler-Kennzahl, Gl. (12)

- $f(y)$ dimensionslose kinetische Gleichung
 $h(y)$ Funktion, Gl. (4)
 K Adsorptionsgleichgewichtskonstante
 M (Thiele)- Modul, Gl. (1)
 p Partialdruck
 y dimensionslose Konzentration der Schlüsselkomponente
- η Nutzungsgrad
 Φ Parameter²¹, Gl. (13)

LITERATUR

1. Weisz P. B., Hicks J. S.: Chem. Eng. Sci. 17, 265 (1962).
2. Luss D., Amundson N. R.: Chem. Eng. Sci. 22, 253 (1967).
3. Hlaváček V., Marek M., Kubiček M.: Chem. Eng. Sci. 23, 1083 (1968).
4. Aris R.: Chem. Eng. Sci. 24, 149 (1969).
5. Drott D. W., Aris R.: Chem. Eng. Sci. 24, 541 (1969).
6. Creswell D. L.: Chem. Eng. Sci. 25, 267 (1970).
7. Marek M., Hlaváček V.: diese Zeitschrift 33, 506 (1968).
8. Roberts G. W., Satterfield C. N.: Ind. Eng. Chem. Fundamentals 5, 217 (1966).
9. Schneider P., Mitschka P.: diese Zeitschrift 31, 3677 (1966).
10. Mitschka P., Schneider P.: diese Zeitschrift 35, 1617 (1970).
11. Luss D., Amundson N. R.: Ind. Eng. Chem. Fundamentals 6, 457 (1967).
12. Luss D.: Chem. Eng. Sci. 23, 1249 (1968).
13. Emig G.: Fortschr. Chem. Forsch. 13, 451 (1970).
14. Padberg G.: *Dissertation*. Universität Münster 1965.
15. Padberg G., Wicke E.: Chem. Eng. Sci. 22, 1035 (1967).
16. Mitschka P.: Unveröffentlichte Ergebnisse (1968).
17. Hugo P., Paratella A.: Vorgetragen auf der Tagung *Simposio di Dinamica della Reazione Chimica, Padova 1966*.
18. Hugo P., Müller R.: Chem. Eng. Sci. 22, 901 (1967).
19. Horn F.: Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 74, 81 (1970).
20. Matsuura T., Kato M.: Chem. Eng. Sci. 22, 171 (1967).
21. Horák J., Jiráček F.: diese Zeitschrift 35, 1773 (1970).
22. Horák J.: Private Mitteilung.

Übersetzt vom Autor (P. M.).