Int. J. Heat Mass Transfer. Vol. 6, pp. 719–725. Pergamon Press 1963. Printed in Great Britain.

BERECHNUNGEN ZUM EINFLUSS DES STOFFTRANSPORTES BEI WANDREAKTIONEN IM RINGSPALT

H. J. SCHMIDT†
Institut für Technische Chemie der Technischen Hochschule, Hannover

(*Received* 5 *December* 1962)

Zusammenfassung—In Fortsetzung der theoretischen Untersuchungen von G. Damköhler über den Einfluss von Strömung und Diffusion auf den Umsatz bei einer heterogenen Wandreaktion in einem zylindrischen Rohr wurden ähnliche Berechnungen für einen Strömungsreaktor mit ringförmigem Querschnitt durchgeführt. Der mathematische und rechnerische Aufwand ist in diesem Falle erheblich grösser. Es wurden die gleichen vereinfachenden Annahmen wie bei Damköhler benutzt. Damit konnten für beliebige Reaktionsgeschwindigkeiten alle Fälle berechnet werden, bei denen als Reaktionsort nur das innere Rohr oder nur das äussere Rohr oder aber auch beide begrenzenden Wände des Ringspaltes angenommen werden. Diese Rechnung wird für einen Fall im Einzelnen dargestellt, während für die übrigen Fälle nur die Endergebnisse mitgeteilt werden.

FORMELZEICHEN

- c, Konzentration, [mol/cm³];
- c_A, Anfangskonzentration, [mol/cm³];
- c_E, Endkonzentration, [mol/cm³];
- D, Diffusionskoeffizient, [cm/s];
- k', Reaktionsgeschwindigkeitskonstante der heterogenen Wandreaktion 1. Ordnung, [cm/s];
- q, Radienverhältnis bei Ringspalt $q = r_a/r_i$;
- r, Zylinderkoordinate;
- r_i, innerer Radius im Ringspalt, [cm];
- r_a, äusserer Radius im Ringspalt, [cm];
- r_0, charakteristischer Radius im Ringspalt (nach Festlegung r_i oder r_a), [cm];
- x, Längskoordinate;
- $\bar{v}$, mittlere Strömungsgeschwindigkeit, [cm/s];
- β, Kennzahl für den Einfluss der Querdiffusion beim Ringspalt $\beta = (k' \,.\, r_i)/D$;
- μ_n, Eigenwerte der Bessel- u. Neumann-Funktionen;
- ρ, Verhältnis r/r_i;
- τ', dimensionslose Verweilzeit; beim Ringspalt $\tau' = \dfrac{D \cdot L}{\bar{v} \cdot r_i^2}$.

† Jetzt bei der Lurgi-Gesellschaft für Wärmetechnik mbH, Frankfurt/Main.

1. PROBLEMSTELLUNG

Es SIND bisher nur wenige Fälle bekannt, bei denen unter gewissen Voraussetzungen die exakte mathematische Vorausberechnung des Umsatzes von Wandreaktionen in stationären Strömungsreaktioren gelingt, wenn die Raumdiffusion und Strömungsform Einfluss auf diesen nehmen [1–5]. In allen diesen Fällen wurde für den Reaktor zylinderförmige Geometrie angenommen.

Angeregt durch eine Experimentalarbeit [2] wurde bei der Untersuchung der diesem Problem zugrunde liegenden partiellen Differentialgleichung:

$$D\left(\frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial c}{\partial r} + \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}\right) - \bar{v} \cdot \frac{\partial c}{\partial x} = 0 \qquad (1)$$

festgestellt, dass unter gewissen Voraussetzungen auch die Berechnung eines Reaktors mit ringförmigem Querschnitt gelingt. Die dabei benutzten vereinfachenden Voraussetzungen sind die gleichen wie bei G. Damköhler [3], L. Grätz [4] und bei F. Paneth und K. F. Herzfeld [5]. Sie seien hier noch einmal kurz wiederholt:

1. Die Reaktion findet nur an der den Reaktor begrenzenden Wand statt.

2. Die Reaktion ist raumbeständig, d.h.

$$\partial v/\partial x = 0. \tag{2}$$

3. Die Reaktion verläuft nach dem Geschwindigkeitsgesetz 1. Ordnung.

4. Die Strömung ist reibungsfrei und nicht turbulent, d.h.

$$\partial v/\partial r = 0. \tag{3}$$

5. Die Diffusion parallel zur Strömungsrichtung wird vernachlässigt, d.h.

$$\partial^2 c/\partial x^2 = 0. \tag{4}$$

6. Der Diffusionskoeffizient wird als konstant angenommen.

2. LÖSUNGSWEG

Teilt man die Gleichung (1) durch D und führt man einen reduzierten Radius ρ ein, indem man r durch eine charakteristische Länge r_o dividiert

$$\rho = r/r_o, \tag{5}$$

so erhält man nach Vernachlässigung der Längsdiffusion:

$$\frac{\partial^2 c}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial c}{\partial \rho} - \frac{\bar{v} \cdot r_o^2}{D} \cdot \frac{\partial c}{\partial x} = 0. \tag{6}$$

Die Lösung dieser partiellen Differentialgleichung unter Berücksichtigung der später noch zu behandelnden Randbedingungen gelingt durch den Ansatz:

$$c(\rho, x) = \sum_{n=1}^{\infty} f_n(\rho) \cdot g_n(x) \tag{7}$$

wobei $f_n(\rho)$ nur Funktionen von ρ und $g_n(x)$ nur Funktionen von x sind.

Damit folgt aus Gleichung (6):

$$\sum_{n=1}^{\infty} g_n \left(\frac{\partial^2 f_n}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial f_n}{\partial \rho} \right) = \frac{\bar{v} \cdot r_o^2}{D} \sum_{n=1}^{\infty} f_n \cdot \frac{\partial g_n}{\partial x}. \tag{8}$$

Subtrahiert man von dieser Gleichung

$$\sum_{n=1}^{\infty} \mu_n^2 \cdot f_n \cdot g_n,$$

so erhält man:

$$\sum_{n=1}^{\infty} g_n \left(\frac{\partial^2 f_n}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial f_n}{\partial \rho} - \mu_n^2 \cdot f_n \right) = \sum_{n=1}^{\infty} f_n \left(\frac{\bar{v} \cdot r_o^2}{D} \cdot \frac{\partial g_n}{\partial x} - \mu_n^2 \cdot g_n \right) \tag{9}$$

wobei μ_n Konstanten sind, deren Bedeutung später erläutert wird. Diese Gleichung wird erfüllt, wenn sowohl

$$\frac{\bar{v} \cdot r_o^2}{D} \cdot \frac{\mathrm{d} g_n}{\mathrm{d} x} - \mu_n^2 \cdot g_n = 0, \tag{10}$$

als auch

$$\frac{\mathrm{d}^2 f_n}{\mathrm{d} \rho} + \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\mathrm{d} f_n}{\mathrm{d} \rho} - \mu_n^2 \cdot f_n = 0 \tag{11}$$

ist.

Man erhält auf diese Weise zwei gewöhnliche Differentialgleichungen. Die Lösung von (10) ergibt sich durch einfache Integration:

$$g_n = A \cdot \exp\left(-\frac{D}{\bar{v} \cdot r_o^2} \cdot \mu_n^2 \cdot x \right). \tag{12}$$

Die Lösung der Gleichung (11), die eine Bessel'sche Differentialgleichung darstellt, ist bekannt [6, 7] und lautet:

$$f_n = B_n \cdot J_o(\mu_n \cdot \rho) + C_n \cdot Y_o(\mu_n \cdot \rho) \tag{13}$$

wobei J_o die Bessel'sche Funktion nullter Ordnung und Y_o die Neumann'sche Funktion nullter Ordnung ist.

Aus (12) und (13) ergibt sich damit für (7):

$$c(\rho, c) = A \cdot \sum_{n=1}^{\infty} [B_n \cdot J_o(\mu_n \cdot \rho) + C_n \cdot Y_o(\mu_n \cdot \rho)] \cdot \exp\left(-\frac{D}{\bar{v} \cdot r_o^2} \mu_n^2 \cdot x \right). \tag{14}$$

Mit der Randbedingung, dass beim Eintritt in den Reaktor, d.h. an der Stelle $x = 0$, die Konzentration über den ganzen Querschnitt gleich der Anfangskonzentration c_A sein soll:

$$c = c_A, \text{ für } x = 0, \tag{15}$$

und alle ρ

ergibt sich:

$$c_A = A \cdot \sum_{n=1}^{\infty} [B_n \cdot J_0(\mu_n \cdot \rho) + C_n \cdot Y_0(\mu_n \cdot \rho)]. \tag{16}$$

Zweckmässig setzt man für A:

$$A = c_A \tag{17}$$

so dass man die Bedingung erhält:

$$\sum_{n=1}^{\infty} [B_n \cdot J_0(\mu_n \cdot \rho) + C_n \cdot Y_0(\mu_n \cdot \rho)] = 1 \tag{18}$$

von der später noch Gebrauch gemacht wird.

Die Integrationskonstanten B_n und C_n müssen durch weitere Randbedingungen festgelegt werden. Sie ergeben sich durch den Ort, an dem die Reaktion stattfindet, und durch die Grösse der Reaktionsgeschwindigkeit.

An dieser Stelle ist es zweckmässig, die charakteristische Grösse r_0 festzulegen. Für sie bietet sich entweder der Radius r_i des Innenrohres oder der des Aussenrohres r_a an. Beide lassen sich in gleicher Weise für die Rechnung verwenden. Obwohl beide Berechnungsmöglichkeiten durchgeführt worden sind, soll hier nur diejenige mit r_i als Bezugsgrösse dargestellt werden. Ausgedrückt in der Grösse $\rho = (r/r_i)$ ist dann der Radius des Innenrohres $\rho_i = 1$ und der des Aussenrohres $\rho_a = q > 1$, q ist also das Radienverhältnis des Ringspaltes.

3. RANDBEDINGUNGEN FÜR VERSCHIEDENE FÄLLE

Betrachtet man eine heterogene Wandreaktion in einem Ringspalt, so sind folgende Fälle möglich:

1. Die Reaktion findet nur am Innenrohr statt, und das Verhältnis von Reaktionsgeschwindigkeit zu Diffusionsgeschwindigkeit strebt gegen unendlich. Es gilt dann die Randbedingung:

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=q} = 0, \tag{19}$$

d.h. an der Aussenwand besteht kein Konzentrationsgefälle in radialer Richtung; sowie

$$c_{\rho=1} = 0. \tag{20}$$

2. Die Reaktion findet nur am Innenrohr statt, und die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k' für die heterogene Reaktion ist beliebig. Dabei ergeben sich die Randbedingungen:

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=q} = 0 \tag{21}$$

und

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=1} = \beta \cdot c_{\rho=1} \text{ mit} \tag{22}$$

$$\beta = \frac{k' \cdot r_i}{D}. \tag{23}$$

3. Die Reaktion findet nur an der Aussenwand statt, das Verhältnis von Reaktionsgeschwindigkeit zu Diffusionsgeschwindigkeit strebt gegen unendlich ($\beta \to \infty$):

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=1} = 0. \tag{24}$$

$$c_{\rho=q} = 0. \tag{25}$$

4. Die Reaktion findet nur an der Aussenwand statt, und die Reaktionsgeschwindigkeit ist beliebig:

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=1} = 0. \tag{26}$$

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=q} = -\beta \cdot c_{\rho=q}. \tag{27}$$

5. Die Reaktion findet an der Innen- und Aussenwand statt, und das Verhältnis von Reaktionsgeschwindigkeit zu Diffusionsgeschwindigkeit strebt gegen unendlich ($\beta \to \infty$):

$$c_{\rho=1} = 0. \tag{28}$$

$$c_{\rho=q} = 0. \tag{29}$$

6. Die Reaktion findet an der Innen- und Aussenwand statt, und die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante ist beliebig, jedoch für beide Wände gleich:

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=1} = \beta \cdot c_{\rho=1}. \tag{30}$$

$$(\mathrm{d}c/\mathrm{d}\rho)_{\rho=q} = -\beta \cdot c_{\rho=q}. \tag{31}$$

4. DURCHFÜHRUNG DER BERECHNUNG FÜR EINEN FALL

Die Lösung des gestellten Problems soll anhand des Falles 1 aufgezeigt werden. Die Lösungen der anderen Fälle ergeben sich entsprechend.

Aus der Gleichung (13) folgt:

$$(\mathrm{d}f_n/\mathrm{d}\rho) = -B_n \cdot \mu_n \cdot J_1(\mu_n \cdot \rho) - C_n \cdot \mu_n \cdot Y_1(\mu_n \cdot \rho) \tag{32}$$

und weiter aus (13), (19), (20) und (32), da $g_n(x)$ immer von null verschieden ist:

$$B_n \cdot J_1(\mu_n \cdot q) + C_n \cdot Y_1(\mu_n \cdot q) = 0 \tag{33}$$

und

$$B_n \cdot J_o(\mu_n) + C_n \cdot Y_o(\mu_n) = 0. \tag{34}$$

Aus (33) erhält man für die Integrationskonstante C_n:

$$C_n = -B_n \cdot \frac{J_1(\mu_n \cdot q)}{Y_1(\mu_n \cdot q)} \tag{35}$$

und damit zusammen mit (34) eine Bestimmungsgleichung für die Werte μ_n, die man als Eigenwerte bezeichnet und die, in die (13) eingesetzt, die Randbedingungen (19) und (20) erfüllen:

$$J_o(\mu_n) - \frac{J_1(\mu_n \cdot q)}{Y_1(\mu_n \cdot q)} \cdot Y_o(\mu_n) = 0. \tag{36}$$

Führt man zur Abkürzung folgenden Ausdruck ein:

$$J_p(x) - \frac{J_1(\mu_n \cdot q)}{Y_1(\mu_n \cdot q)} \cdot Y_p(x) \equiv Z_p(x) \tag{37}$$

so geht (33) unter Berücksichtigung von (35) über in:

$$Z_1(\mu_n \cdot q) \equiv 0 \tag{38}$$

und aus (36) folgt:

$$Z_o(\mu_n) = 0. \tag{39}$$

Zur Bestimmung der einzelnen Werte für B_n wird folgendermassen vorgegangen:

Aus den Beziehungen (18) und (35) erhält man:

$$\sum_{n=1}^{\infty} B_n \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) = 1. \tag{40}$$

Multipliziert man diese Gleichung mit $\rho \cdot Z_o(\mu_m \cdot \rho)$, wobei μ_m ein beliebiger anderer Eigenwert als μ_n sein soll, und integriert in den Grenzen zwischen 1 und q, so ergibt sich:

$$\sum_{n=1}^{\infty} B_n \int_1^q \rho \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) \cdot Z_o(\mu_m \cdot \rho)\, d\rho = \int_1^q \rho \,.\, Z_o(\mu_m \cdot \rho)\, d\rho. \tag{41}$$

Das linke Integral der (41) ist nach der Theorie der Besselfunktionen [8]:

$$\begin{aligned}\int_1^q \rho \cdot Z_o(\mu_n \,.\, \rho) \cdot Z_o(\mu_m \cdot \rho)\, d\rho &= \frac{q}{\mu_n^2 - \mu_m^2}\,[\mu_n \cdot Z_1(\mu_n \cdot q) \cdot Z_o(\mu_m \cdot q) \\ &\quad - \mu_m \cdot Z_o(\mu_n \cdot q) \cdot Z_1(\mu_m \cdot q)] \\ &\quad - \frac{1}{\mu_n^2 - \mu_m^2}\,[\mu_n \cdot Z_1(\mu_n) \cdot Z_o(\mu_m) \\ &\quad - \mu_m \cdot Z_o(\mu_n) \cdot Z_1(\mu_m)]\end{aligned} \tag{42}$$

und wird wegen (38) und (39) null:

$$\int_1^q \rho \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) \cdot Z_o(\mu_m \cdot \rho)\, d\rho = 0, \quad \text{für } n \neq m. \tag{43}$$

Ist n jedoch gleich m, so folgt:

$$\int_1^q \rho \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot \rho)\, d\rho = \frac{q^2}{2}\,[Z_o^2(\mu_n \cdot q) + Z_1^2(\mu_n \cdot q)] - \tfrac{1}{2}\,[Z_o^2(\mu_n) + Z_1^2(\mu_n)]. \tag{44}$$

Die linke Seite von (41) ergibt daher:

$$\sum_{n=1}^{\infty} B_n \int_1^q \rho \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) \cdot Z_o(\mu_m \cdot \rho)\, d\rho = B_n \left[\frac{q^2}{2} \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot q) - \tfrac{1}{2} \cdot Z_1^2(\mu_n)\right]. \tag{45}$$

Wegen

$$\int_1^q \rho \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho)\, d\rho = \frac{q}{\mu_n} \cdot Z_1(\mu_n \cdot q) - \frac{1}{\mu_n} \cdot Z_1(\mu_n) \tag{46}$$

erhält man dann:

$$B_n \left[\frac{q^2}{2} Z_o^2(\mu_n \cdot q) - \tfrac{1}{2} Z_1^2(\mu_n)\right] = -\frac{1}{\mu_n} Z_1(\mu_n), \tag{47}$$

oder

$$B_n = \frac{2 \cdot Z_1(\mu_n)}{\mu_n \cdot Z_1^2(\mu_n) - \mu_n \cdot q^2 \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot q)}. \tag{48}$$

Damit ist:

$$f_n(\rho) = \frac{2 \cdot Z_1(\mu_n)}{\mu_n \cdot Z_1^2(\mu_n) - \mu_n \cdot q^2 \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot q)} \cdot Z_o(\mu_n \,.\, \rho). \tag{49}$$

Aus (14) mit (35) und (48) folgt:

$$c(\rho, x) = c_A \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \cdot Z_1(\mu_n)}{\mu_n \cdot Z_1^2(\mu_n) - \mu_n \cdot q^2 \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot q)} Z_o(\mu_n \cdot \rho) \exp\left(-\frac{D}{\bar{v} \cdot r_i^2)} \mu_n^2 \cdot x\right). \quad (50)$$

Die mittlere Konzentration c_E als Querschnittsmittel bei $x = L$ ist gegeben durch:

$$c_E = \frac{\int_1^q c \cdot \rho \cdot \mathrm{d}\rho}{\int_1^q \rho \cdot \mathrm{d}\rho}. \quad (51)$$

Setzt man

$$\frac{D \cdot L}{\bar{v} \cdot r_i^2} = \tau' \quad (52)$$

so erhält man schliesslich für das Konzentrationsverhältnis c_E/c_A:

$$\frac{c_E}{c_A} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{(q^2 - 1) \cdot \mu_n^2 \left[q^2 \cdot \frac{Z_o^2(\mu_n \cdot q)}{Z_1^2(\mu_n)} - 1\right]} \cdot \exp(-\mu_n^2 \cdot \tau'). \quad (53)$$

Im Zusammenhang seien hier noch die Bestimmungsgleichungen für die Eigenwerte μ_n und die Definition der Zylinderfunktion $Z_p(x)$ für diesen Fall wiederholt:

$$Z_o(\mu_n) = 0 \quad (38)$$

$$Z_p(x) \equiv J_p(x) - \frac{J_1(\mu_n \cdot q)}{Y_1(\mu_n \cdot q)} \cdot Y_p(x). \quad (36)$$

5. ENDERGEBNISSE FÜR DIE ÜBRIGEN FÄLLE

Für die Fälle 2 bis 6 sollen hier nur die Endergebnisse aufgeführt werden und zwar jeweils c als Funktion von x und ρ, das Konzentrationsverhältnis c_E/c_A, die Bestimmungsgleichung für die Eigenwerte μ_n und die Definition der Zylinderfunktion $Z_p(x)$ entsprechend den Gleichungen (50), (53), (39) und (37) des Falles 1.

Fall 2 (Reaktion am Innenrohr; Geschwindigkeitskonstante k' beliebig):

$$c(\rho, x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \cdot Z_1(\mu_n)}{\mu_n [Z_o^2(\mu_n) + Z_1^2(\mu_n) - q^2 \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot q)]} \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) \exp\left(-\frac{D}{\bar{v} \cdot r_i^2} \cdot \mu_n^2 \cdot x\right). \quad (54)$$

$$\frac{c_E}{c_A} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{(q^2 - 1) \cdot \mu_n^2 \cdot \left[q^2 \cdot \frac{Z_o^2(\mu_n \cdot q)}{Z_o^2(\mu_n)} + \frac{\mu_n^2}{\beta^2} - 1\right]} \cdot \exp(-\mu_n^2 \cdot \tau') \quad (55)$$

$$\mu_n \cdot Z_1(\mu_n) = -\beta \cdot Z_o(\mu_n) \quad (56)$$

$$Z_p(x) \equiv J_p(x) - \frac{J_1(\mu_n \cdot q)}{Y_1(\mu_n \cdot q)} \cdot Y_p(x). \quad (57)$$

Fall 3 (Reaktion am Aussenrohr; $\beta \to \infty$):

$$c(\rho, x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \cdot q \cdot Z_1(\mu_n \cdot q)}{\mu_n[q^2 \cdot Z_1^2(\mu_n \cdot q) - Z_o^2(\mu_n)]} \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) \cdot \exp\left(-\frac{D}{\bar{v} \cdot r_i^2)} \cdot \mu_n^2 \cdot x\right) \quad (58)$$

$$\frac{c_E}{c_A} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{(q^2 - 1) \cdot \mu_n^2 \left[1 - \frac{Z_n^2(\mu_n)}{q^2 \cdot Z_1^2(\mu_n \cdot q)}\right]} \cdot \exp(-\mu_n^2 \cdot \tau') \quad (59)$$

$$Z_o(\mu_n \cdot q) = 0 \quad (60)$$

$$Z_p(x) \equiv J_p(x) - \frac{J_1(\mu_n)}{Y_1(\mu_n)} \cdot Y_p(x). \quad (61)$$

Fall 4 (Reaktion am Aussenrohr; Geschwindigkeitskonstante k' beliebig):

$$c(\rho, x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \cdot q \cdot Z_1(\mu_n \cdot q)}{\mu_n [q^2 \cdot Z_o^2(\mu_n \cdot q) + q^2 \cdot Z_1^2(\mu_n \cdot q) - Z_0^2(\mu_n)]} \cdot Z_o(\mu_n \cdot \rho) \cdot \exp\left(-\frac{D}{\bar{v} \cdot r_i^2} \mu_n^2 \cdot x\right) \quad (62)$$

$$\frac{c_E}{c_A} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{(q^2-1)\cdot\mu_n^2\left[\frac{\mu_n^2}{\beta^2}+1-\frac{Z_o^2(\mu_n)}{q^2\cdot Z_1^2(\mu_n\cdot q)}\right]} \exp(-\mu_n^2\cdot\tau') \quad (63)$$

$$\mu_n\cdot Z_1(\mu_n\cdot q) = \beta\cdot Z_o(\mu_n\cdot q) \quad (64)$$

$$Z_p(x) \equiv J_p(x) - \frac{J_1(\mu_n)}{Y_1(\mu_n)}\cdot Y_p(x). \quad (65)$$

Fall 5 (Reaktion am Innen- und Aussenrohr; $\beta\to\infty$):

$$c(\rho, x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{\mu_n\,[q\cdot Z_1(\mu_n\cdot q)+Z_1(\mu_n)]} \cdot Z_o(\mu_n\cdot\rho)\cdot\exp\left(-\frac{D}{\bar v\cdot r_i^2}\cdot\mu_n^2\cdot x\right) \quad (66)$$

$$\frac{c_E}{c_A} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4\,[q\cdot Z_1(\mu_n\cdot q)-Z_1(\mu_n)]}{(q^2-1)\cdot\mu_n^2\,[q\cdot Z_1(\mu_n\cdot q)+Z_1(\mu_n)]} \cdot\exp(-\mu_n^2\cdot\tau') \quad (67)$$

$$Z_o(\mu_n\cdot q) = 0 \quad (68)$$

$$Z_p(x) \equiv J_p(x) - \frac{J_o(\mu_n)}{Y_o(\mu_n)} Y_p(x). \quad (69)$$

Fall 6 (Reaktion am Innen- und Aussenrohr; Geschwindigkeitskonstante beliebig):

$$c(\rho, x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2[q\cdot Z_1(\mu_n\cdot q)-Z_1(\mu_n)]}{\mu_n\,[q^2\cdot Z_o^2(\mu_n\cdot q)+q^2\cdot Z_1^2(\mu_n\cdot q)-Z_1^2(\mu_n)-Z_o^2(\mu_n)]} Z_o(\mu_n\cdot\rho)\exp\left(-\frac{D}{\bar v\cdot r_i^2}\cdot\mu_n^2\cdot x\right) \quad (70)$$

$$\frac{c_E}{c_A} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{(q-1)^2\cdot\mu_n^2\left(\frac{\mu_n^2}{\beta^2}+1\right)}\cdot\exp(-\mu_n^2\cdot\tau') \quad (71)$$

$$\mu_n\cdot Z_1(\mu_n) = -\beta\cdot Z_o(\mu_n) \quad (72)$$

$$Z_p(x) \equiv J_p(x) - \frac{J_1(\mu_n)+J_1(\mu_n\cdot q)}{Y_1(\mu_n)+Y_1(\mu_n\cdot q)}\cdot Y_p(x). \quad (73)$$

Mit Hilfe der für die einzelnen Fälle angegebenen Beziehungen lässt sich dann der Einfluss von Strömung und Diffusion auf den Umsatz bei heterogenen Wandreaktion 1. Ordnung in Strömungsreaktoren mit ringförmigem Querschnitt für die jeweils gültigen Bedingungen rechnerisch erfassen. So kann man entweder bei Kenntnis aller reaktionskinetischer Daten den Umsatz in einem bestimmten Reaktor berechnen, oder umgekehrt lassen sich auch diese kinetischen Daten aus gemessenen Umsatzwerten ermitteln. Es mag noch einmal besonders darauf hingewiesen werden, dass bei diesen Rechnungen die Längsdiffusion vernachlässigt wurde. Dies bewirkt eine Unstetigkeit in der mathematischen Formulierung bei $x = 0$, die den physikalischen Tatsachen nicht entspricht. Diese Ungenauigkeit kann sich aber nur bei kleinen Bodenstein-Zahlen $[Bo = (\bar v\cdot L/2\cdot D)]$ auswirken.

Die für die Fälle 1 und 2 berechneten Beziehungen wurden von G. Boettger und F. Fetting [2] zur Auswertung experimenteller Daten benutzt, die beim heterogenen Zerfall von Nickeltetracarbonyl in einem Reaktor erhalten wurden. Obwohl bei den durchgeführten Versuchen die den Berechnungen zugrunde liegenden vereinfachenden Annahmen nicht streng eingehalten werden konnten, liess sich jedoch eine befriedigende Auswertung der Versuchsergebnisse durchführen. Damit erwies sich, dass die hier abgeleiteten Formeln geeignet sind, Umsätze in derartigen Reaktoren zu berechnen.

Für alle hier angeführten Fälle wurden die entsprechenden Berechnungen auch mit dem Aussenradius r_a anstelle des Innenradius r_i als charakteristischem Radius durchgeführt. Die dabei erhaltenen Ergebnisse können vom Autor bezogen werden.

LITERATUR

1. H. J. Schmidt, *Chem. Ing. Techn.* **34**, 841 (1962).
2. G. Boettger und F. Fetting, *Chem. Ing. Techn.* **34**, 834 (1962).
3. G. Damköhler, in Eucken-Jakob: *Der Chemie-Ingenieur* Band III/1, S. 414 ff. Akadem. Verlagsges. (1937).
4. L. Grätz, *Ann. Phys.* **18**, 79 (1883).
5. F. Paneth und K. F. Herzfeld, *Z. Elektrochem.* **37**, 577 (1931).
6. E. Kamke, *Differentialgleichungen* I. Lösungsmethoden u. Lösungen, S. 437 ff., Akadem. Verlagsges (1961).
7. E. Jahnke und F. Emde, *Tafeln für höhere Funktionen*, 2. Aufl. Teubner (1938).
8. G. N. Watson, *Theory of Bessel-Functions*, S. 134 ff. Cambridge (1922).

Abstract—Continuing G. Damköhler's theoretical investigations concerning the influence of mass transfer on the conversicn of heterogenous chemical reactions in cylindrical tubes similar calculations were performed for a reactor with annular cross-section. The mathematical treatment and the calculations are more complicated for these geometrical conditions. The same simplifying assumptions were made as by Damköhler. For any reaction rate all cases could be calculated where the reaction takes place at the inner or outer wall or both walls. The calculations are presented in detail for one case, whereas only the final results are given for the other cases.

Résumé—Les recherches théoretiques de G. Damköhler sur l'influence du transport de masse dans la conversion des réactions chimiques hétérogènes dans des tubes cylindriques ont été poursuivies et on a fait des calculs analogues pour un réacteur à section annulaire. Dans ces conditions géométriques, le problème théorique et les calculs sont plus compliqués. On a fait les mêmes hypothèses simplificatrices que Damköhler. Pour chaque taux de réaction, tous les cas peuvent être caclulés, que la réaction se fasse sur la paroi intérieure, la paroi extérieure ou les deux. Les calculs sont présentés en détail dans un cas, pour les autres, seuls les résultats finaux sont donnés.

Аннотация—На основании теоретических исследований Г. Дамкёлера о влиянии переноса массы на химические превращения при гетерогенных реакциях в цилиндрических трубах были проведены подобные решения для реактора с кольцевым сечением. При данной геометрии математическая обработка и вычисления сильно усложняются. Приняты упрощающие предположения Дамкёлера, которые дают возможность рассчитать все случаи при любой скорости реакции на внутренней, наружной или на обеих стенках канала. Для одного случая приводится подробный расчет, а для других даются только конечные результаты.