

Beschleunigung des Stoffaustausches von Gas-Flüssigkeits-Reaktionen durch Schallwellen am Beispiel der Fetthärtung

Achim Bartsch

Technische Universität Hamburg-Harburg, FSP 6-05, Eißendorfer Str. 38, 21073 Hamburg

Z. Naturforsch. **50a**, 228–234 (1995); received November 14, 1994

Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. Ewald Wicke gewidmet

Acceleration of mass transfer in gas/liquid-reactions by sonic vibrations: fat hydrogenation as a test reaction

A method for increasing the mass transfer in gas/liquid-reactions by application of sonic vibration is described. The operating frequencies have been chosen such that the surfaces of the gas bubbles vibrate in resonance. At these operating frequencies (up to 1000 Hz), the damping of sound waves by the bubbly liquid is low, which is important in large-scale applications. Hydrogenation of soybean oil in a bubble column has been carried out as a test reaction. An increase in mass transfer from dispersed bubbles to the liquid in terms of $k_L a_G$ of up to 36% has been effected by a relatively small amount of sonic power.

Key words: Mass transfer, Fat hydrogenation, Gas, Liquid, Sound, Surface waves.

1. Einleitung

Bei Gas-Flüssigkeits-Reaktionen ist der Stoffübergang des Gases in die Flüssigkeit meist der geschwindigkeitsbestimmende Schritt. Verbesserungen des Stoffaustausches werden normalerweise durch Reaktoreinbauten und/oder durch den Einsatz von Rührern erreicht. In der Vergangenheit hat man auch versucht, durch Anwendung von Schallwellen eine Erhöhung des Stoffübergangs zu bewirken. In der sog. "resonant bubble column" (s. z. B. [1, 2]) wird die gesamte Gas-Flüssigkeits-Säule zu Resonanzschwingungen angeregt, wodurch starke Stoffaustauschverbesserungen hervorgerufen werden können. Dieses Verfahren ist allerdings für industrielle Zwecke nicht geeignet, da man größere Reaktoren, d. h. hohe Gas-Flüssigkeits-Säulen, bei niedrigen Frequenzen (< 10 Hz) und großen Amplituden ($> 0,5$ m) beschallen müßte, um nennenswerte Effekte auf den Stoffaustausch zu erzielen.

Ein zweiter Weg, der in der Vergangenheit eingeschlagen wurde, war der Einsatz von Ultraschall hoher Energie in Gas-Flüssigkeits-Systemen. So wurde u. a. versucht, die Hydrierung pflanzlicher Öle (Fetthärtung) mit Ultraschall hoher Energie zu beschleunigen [3, 4]. Es wurden hohe Umsatzsteigerungen gemessen, die allerdings nicht auf eine Verbesserung des

Stoffaustausches zurückzuführen sind [5]. Eigene Untersuchungen haben ergeben, daß eine Erhöhung der Gesamtreaktionsgeschwindigkeit durch Ultraschallwellen hoher Energie auf eine Temperaturerhöhung des Reaktionsgemisches zurückzuführen ist. Vergleichende Messungen mit und ohne Einwirkung von Ultraschall hoher Energie zeigten bei strenger Einhaltung von isothermen Bedingungen keine Unterschiede in den Gesamtreaktionsgeschwindigkeiten. Da Reaktionsbedingungen vorlagen, bei denen der flüssigkeitsseitige Stofftransport die Reaktion kontrollierte, ergaben diese Versuche, ebenso wie in [5], daß der Stofftransport durch Ultraschall nicht wesentlich beeinflusst wird. Zusätzlich müssen zwei wesentliche Kritikpunkte angeführt werden, wenn man an einen Einsatz von Ultraschall in größeren Reaktoren denkt. Zum einen ist die pro Reaktionsvolumen eingesetzte Energie von einigen 100 Watt pro Liter für industrielle Zwecke viel zu hoch, und zum anderen wird Ultraschall in Gas-Flüssigkeits-Dispersionen sehr stark gedämpft [6, 7], so daß Ultraschall für eine Beschallung größerer Reaktoren nicht geeignet ist.

Dieser Arbeit liegt die Idee zugrunde, daß zur Erhöhung des Stoffaustausches gezielt die Gasbläschen selbst durch Schallwellen zum Schwingen angeregt werden sollen und so die Grenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit sowie die unmittelbare Umgebung der Gasbläschen intensiv bewegt werden. Es werden Bedingungen mitgeteilt, unter denen Schallwellen den

Reprint requests to Dr. A. Bartsch.

0932-0784 / 95 / 0200-0228 \$ 06.00 © – Verlag der Zeitschrift für Naturforschung, D-72027 Tübingen



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Stoffaustausch von Gas-Flüssigkeits-Reaktionen beschleunigen.

2. Grundlagen

2.1. Auswahl des Intensitäts- und Frequenzbereichs

Ob ein Gasbläschen in einem Schallfeld aus einer es umgebenden Flüssigkeit Gas aufnimmt oder an sie abgibt, hängt wesentlich von Schalldruck und Frequenz der Schallwelle sowie von der Bläschengröße ab. Anhand von Abb. 1 soll verdeutlicht werden, wie sich Gasbläschen einer Gas-Flüssigkeits-Dispersion in einem Schallfeld verhalten. Näheres hierzu sowie die Berechnungsgrundlagen für die einzelnen Kurven findet man bei Neppiras [8]. Das Diagramm wurde berechnet für Wasserstoff-Bläschen (Druck: 1 bar) in mit Wasserstoff gesättigtem Sojaöl bei 180 °C bei einer Anregungsfrequenz von 5000 Hz. Übt man auf ein Gasbläschen mit einem Radius r_B einen so geringen Schallwechseldruck P_A aus, daß man im Gebiet der stabilen Kavitation bleibt (Punkt A in Abb. 1), so wird das Bläschen in der Unterdruckphase der Schallwelle größer und in der Überdruckphase kleiner. Die Schallwelle bewirkt dann also eine Volumenschwingung des Bläschens. Erhöht man den Schalldruck und überschreitet die Schwelle zur sog.

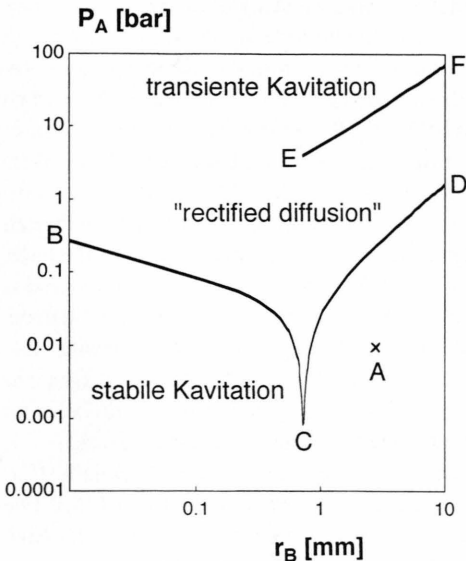


Abb. 1. Schwellenwerte des Schalldrucks zur "rectified diffusion" und zur transienten Kavitation in Abhängigkeit vom Bläschenradius r_B .

"rectified diffusion" (Linie B–C–D in Abb. 1), so nimmt das Gasbläschen Gas aus der Flüssigkeit auf und der mittlere Bläschenradius wird größer. Im Gebiet der "rectified diffusion" wird gearbeitet, wenn man eine Flüssigkeit entgasen will. Das Minimum der Kurve B–C–D liegt bei dem Bläschenradius, bei dem das Bläschen bei der hier angelegten Anregungsfrequenz von 5000 Hz die größte Amplitude der Volumenschwingung durchführt, d. h. die Anregungsfrequenz gleich der Resonanzfrequenz der Volumenschwingung ist.

Bei wesentlich höheren Schalldrücken (ab etwa 10 bar), tritt transiente Kavitation ein, d. h. innerhalb einer oder weniger Perioden wächst der Bläschenradius sehr stark an und das Bläschen kollabiert anschließend.

Zur Erhöhung des Stoffaustausches von Gas-Flüssigkeits-Reaktionen durch Anregung zur transienten Kavitation sind die erforderlichen Schalldrücke ab etwa 10 bar nur mit erheblichem Aufwand zu erreichen. Im Gebiet der "rectified diffusion" erzielt man das Gegenteil des gewünschten Effekts: die Flüssigkeit wird entgast. Der Schalldruck sollte also kleiner als der Schwellenwert des Schalldruckes zur "rectified diffusion" sein.

Bei der Auswahl einer geeigneten Frequenz zur Beschallung der Gas-Flüssigkeits-Dispersion muß in größeren Reaktoren berücksichtigt werden, daß eine Schallwelle im Frequenzbereich unterhalb der Resonanzfrequenz der Volumenschwingung der Gasbläschen nur wenig, bei und oberhalb dieser Frequenz jedoch sehr stark (Größenordnung 10 dB/cm) geschwächt wird (s. z. B. [6, 7]). Die Bläschenradien der meisten Gas-Flüssigkeits-Systeme liegen im Bereich von 0,5–2 mm, die dazu gehörenden Resonanzfrequenzen im Bereich von 2–7 kHz. Während also Ultraschall wegen zu starker Schalldämpfung zur Beschallung größerer Reaktionsvolumina ungeeignet ist, sind Schallwellen mit Frequenzen im Bereich bis 2000 Hz in größeren Anlagen sinnvoll einzusetzen.

2.2. Schwingungsformen von Gasbläschen in Flüssigkeiten

Gasbläschen können in Flüssigkeiten Schwingungen der Moden $n=0, 2, 3, 4, \dots$ durchführen (s. Abbildung 2). Die Schwingungsmoden $n=1$ kommt in der Natur nicht vor, da für eine solche Schwingung die rücktreibende Kraft fehlt. Die Resonanzfrequenz ν_{res} der Volumenschwingung (Mode $n=0$, Abb. 2) kann

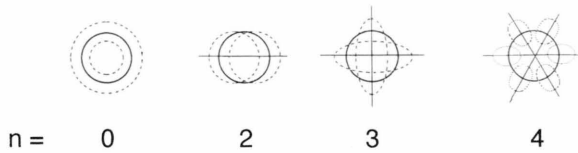


Abb. 2. Schwingungsformen (bzw. -Moden) von Gasbläschen.

bei hier in Frage kommenden Bläschengrößen nach der Minnaert-Formel ((1) in [9]) berechnet werden. Sie ist abhängig vom Bläschenradius r_B , vom Verhältnis γ der Wärmekapazitäten C_p/C_v des Gases, von der Dichte der Flüssigkeit ϱ_L und vom Druck P_0 des Gases. Es gilt

$$v_{\text{res}} = v_0 = \frac{1}{2\pi r_B} \sqrt{\frac{3\gamma P_0}{\varrho_L}}. \quad (1)$$

Alle anderen möglichen Schwingungsformen (Moden $n = 2, 3, 4, \dots$ in Abb. 2) sind Oberflächenschwingungen. Die Resonanzfrequenzen dieser Schwingungen sind nach Lamb [10] gegeben durch:

$$v_n = \frac{1}{2\pi r_B} \sqrt{\frac{(n^2 - 1)(n + 2)\sigma}{\varrho_L r_B}}. \quad (2)$$

Sie hängen vom Schwingungsmodus n , der Oberflächenspannung σ sowie von ϱ_L und r_B ab.

Die Resonanzfrequenzen der niedrigen Schwingungsmoden ($n = 2$ bis 6) liegen für die meisten Gas/Flüssigkeits-Systeme unterhalb von 1000 Hz. Es wurde daher experimentell überprüft, ob sich durch Anregung der Oberflächenschwingungen der Gasbläschen der Stoffaustausch beschleunigen läßt.

3. Experimenteller Teil

Als Beispielreaktion wurde die Fetthärtung gewählt, weil sie über einen weiten Temperatur- und Druckbereich diffusionskontrolliert verläuft und die Meßbedingungen leicht und reproduzierbar einstellbar sind.

Der hierzu gebaute Schallreaktor (s. Abbildung 3) besteht aus einer normalen Blasensäule aus Glas (Innendurchmesser 46 mm, Höhe 850 mm), in die von unten Schall eingestrahlt wird. Der Schall wird erzeugt durch einen elektrodynamischen Baßlautsprecher (Gauß 4542), dessen Membran gegen eine aufgeschnittene und umgedrehte Aluminium-Dose

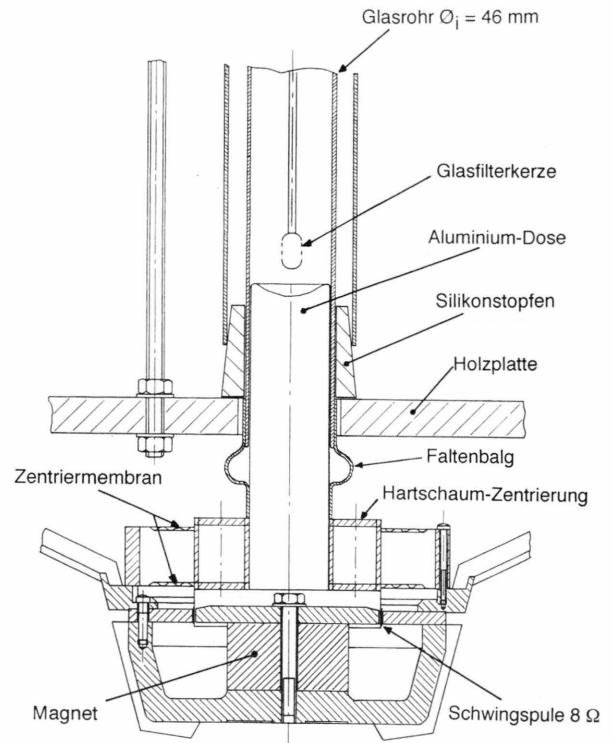


Abb. 3. Teilansicht des verwendeten Schallreaktors.

(handelsübliche Spraydose, Außendurchmesser 45 mm) ausgetauscht wurde. Die Aluminium-Dose wird durch eine Hartschaum-Zentrierung, die in die Spulenhaltung geklebt wurde, gehalten. Ein Faltenbalg (Typ V6-67 SIMRIT® NBR, H. Reuss, Hamburg) dichtet zwischen Aluminium-Dose und Glasrohr. Der Wirkungsgrad dieses Systems, d. h. das Verhältnis von eingebrachter elektrischer Energie zur abgegebenen Schallenergie, ist sehr gering ($< 1\%$), u. a. deshalb, weil die akustische Anpassung des Schallgebers an das Gas-Flüssigkeits-System noch nicht optimiert wurde.

Das Gas wird durch eine Filterkerze (Porosität D1, Schott, Mainz) in die Flüssigkeit eingeleitet. Das untere zugeschmolzene Ende der Filterkerze befindet sich etwa 1 cm oberhalb der Aluminium-Dose.

Das verwendete pflanzliche Öl war Sojaöl (Fa. HOBUM, Hamburg) mit einer Jodzahl von 135,1. Die Fettsäurezusammensetzung ist aus Tab. 1 ersichtlich (Angaben der Fa. HOBUM, Hamburg).

Die Dichte des Sojaöls wurde pyknometrisch bestimmt. Die Meßdaten lassen sich im Temperaturbe-

Tab. 1. Fettsäurezusammensetzung des verwendeten Sojaöls.

	C14	C16	C16:1	C18:0	C18:1	C18:2	C18:3	C20	C20:1	C22:0
%	0,1	10,6	0,1	3,6	20,5	55,7	8,7	0,2	0,2	0,3

reich von 100°–180°C durch die Geradengleichung

$$\varrho_L(\vartheta) = 0,9307 - \vartheta \cdot 6,576 \cdot 10^{-4} \quad [\text{g/ml}] \quad (3)$$

beschreiben (Temperatur ϑ in [°C]).

Die Oberflächenspannung σ_L des Sojaöls wurde im gleichen Temperaturbereich mit einem Tensiometer (nach Lecomte du Noüy, Typ 8551, Fa. Krüss, Hamburg) bestimmt. Die Gleichung

$$\sigma_L(\vartheta) = 36,1 - \vartheta \cdot 0,0571 \quad [\text{mN/m}] \quad (4)$$

gibt die gemessene Temperaturabhängigkeit wieder.

Bei den im folgenden beschriebenen Hydrierungen wurden jeweils 570 g Sojaöl am technischen Nickel-Katalysator (Typ G53, Südchemie, München) bei 180°C und 1 bar Gesamtdruck gehärtet. Die Strömungsgeschwindigkeit des Wasserstoffs (Reinheit 5,0) betrug 1 l/min.

4. Ergebnisse

4.1. Einfluß von Schall auf den Umsatz

In Abb. 4a ist am Beispiel der Hydrierung von Sojaöl (Katalysatorkonzentration 1 Gew.%) die Umsatzsteigerung aufgetragen, die durch den Einsatz von Schall bei verschiedenen Frequenzen erreicht wurde. Die Nulllinie entspricht also dem Umsatz an Wasserstoff ohne Schalleinwirkung. Dieser lag bei 45%.

Das erhaltene Umsatzspektrum zeigt bei einigen Frequenzen Maxima, die durch Säulenresonanzschwingungen und durch Resonanzschwingungen der Bläschenoberfläche bzw. durch Kombination der beiden Schwingungsarten hervorgerufen werden. Die Maxima bei 52 und 94 Hz können, wie man während des Experimentes schon an einer intensiven Bewegung des Flüssigkeitsspiegels ausmachen konnte, Säulenresonanzen zugesprochen werden. Die Ausnutzung der Säulenresonanzen ist aus den in der Einleitung erwähnten Gründen für Anwendungen in größerem Maßstab nicht geeignet. Da die Resonanzfrequenz der Oberflächenschwingungen der Bläschen jedoch unabhängig von der Höhe der Gas-Flüssigkeits-Dispersion

ist, eignet sich diese Bewegungsform für die industrielle Anwendung.

Um den Einfluß der Resonanzschwingungen der Säule und den der Resonanzschwingungen der Bläschenoberflächen auf den Umsatz zu erfassen, wurde von folgender Überlegung ausgegangen: Bei Anregung einer Säulenresonanz muß der Schallgeber relativ wenig Arbeit aufwenden, um einen hohen Schalldruck zu erzeugen. Bei frequenzunabhängigem Energieeintrag werden daher im Fall der Säulenresonanz die höchsten Schalldrücke gemessen. In Abb. 4b sind nun die bei der Hydrierung gemessenen Schalldrücke in Abhängigkeit von der Frequenz aufgetragen. Ein Vergleich mit dem Umsatzspektrum (Abb. 4a) zeigt, daß offenbar auch das Umsatzmaximum bei 164 Hz durch Säulenresonanz verursacht wurde.

Bei Anregung von Schwingungen der Bläschenoberflächen schwingt die Oberfläche des Bläschens gegen die inkompressible Flüssigkeit. Je höher die Auslenkung, um so stärker nichtlinear schwingt die Oberfläche. Bei Resonanz ist die Auslenkung am größten, dann werden mithin verstärkt nichtlineare Anteile im Schallfeld gemessen. Im Fourier-Spektrum sind also im Resonanzfall der Oberflächenschwingungen die höheren Harmonischen stärker als sonst vertreten.

Als Maß für die Nichtlinearitäten – und damit auch für die Intensität der Schwingungen der Bläschenoberflächen – wird hier der in der Lautsprechertechnik häufig verwendete Klirrfaktor herangezogen. Der Klirrfaktor K ist das Verhältnis der Schalldruckamplitudenquadrate der höheren Harmonischen P_n , $n = 2, 3, \dots$ zu den Amplitudenquadraten aller Harmonischen P_n , $n = 1, 2, \dots$. Es gilt daher:

$$K = \sqrt{\frac{P_2^2 + P_3^2 + P_4^2 + \dots + P_n^2}{P_1^2 + P_2^2 + P_3^2 + P_4^2 + \dots + P_n^2}} \quad (5)$$

Je höher der Klirrfaktor ist, um so stärker nichtlinear schwingt ein System. Da die Bläschenoberflächen bei Resonanz verstärkt nichtlinear schwingen, sind die Frequenzen, bei denen der Klirrfaktor ein Maximum hat, Resonanzschwingungen der Bläschenoberflächen zuzuordnen. In Abb. 4c ist der Klirrfaktor gegen die Frequenz aufgetragen. Vergleicht man diese Darstellung mit der Frequenzabhängigkeit der Umsatzsteigerung (s. Abb. 4a), so wird deutlich, daß die Umsatzsteigerung von 50% bei 259 Hz sowie die Umsatzmaxima bei 223 und 141 Hz auf Resonanzschwingungen der Bläschenoberflächen zurückzuführen sind.

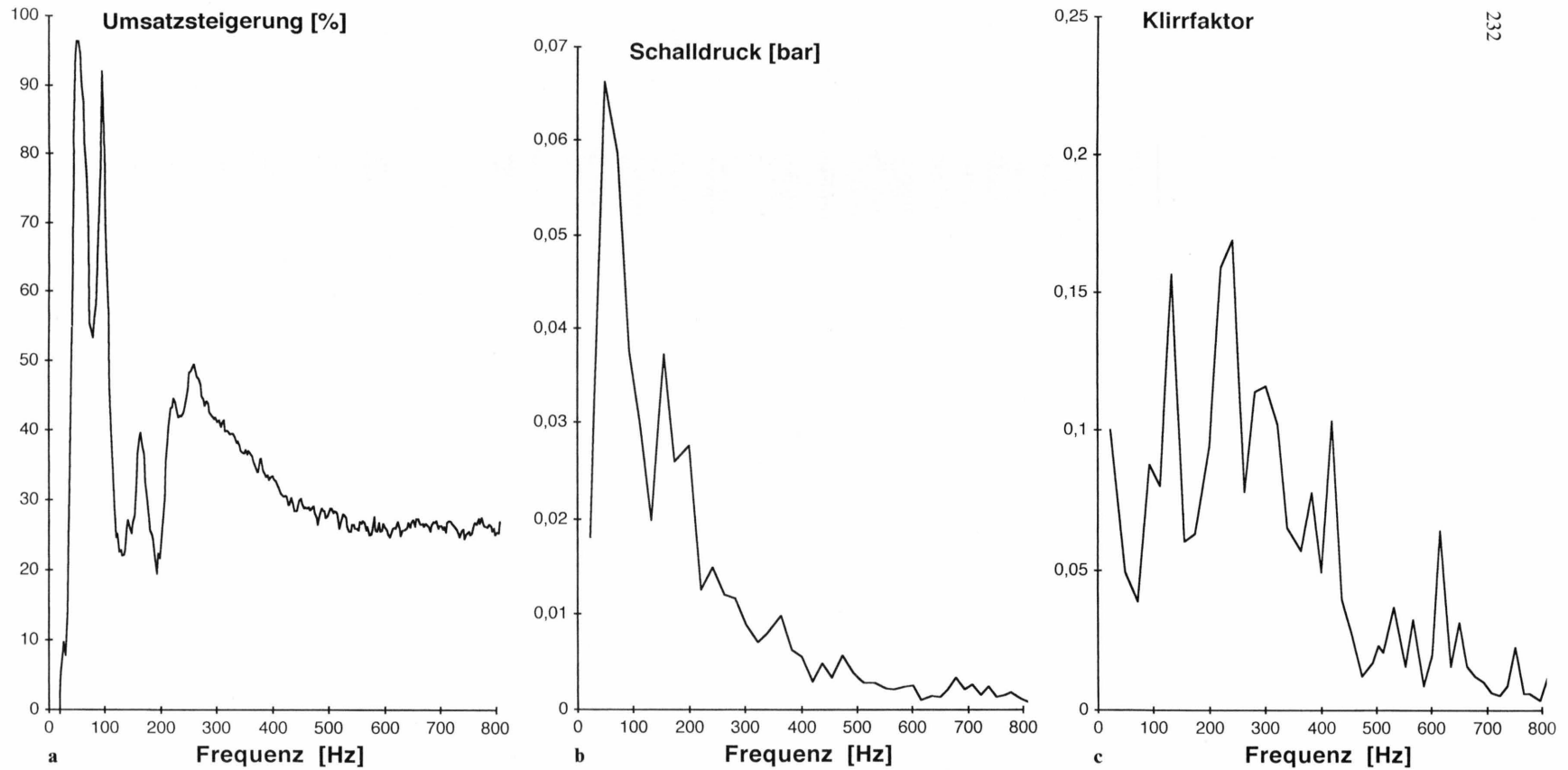


Abb. 4. Umsatzsteigerung durch Schall (a), Schalldruck (b) und Klirrfaktor (c) bei der Härtung von Sojaöl in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz.

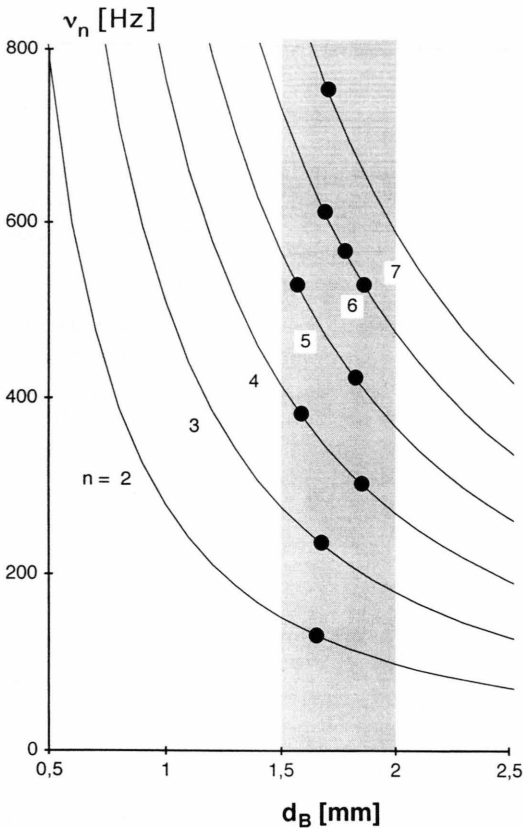


Abb. 5. Resonanzfrequenzen der Oberflächenschwingungen $n = 2$ bis 7 in Abhängigkeit vom Bläschenradius (H_2 in Sojaöl, $180^\circ C$, 1 bar) und Ermittlung von Bläschenradien mit Frequenzdaten aus Abbildung 4c.

4.2. Bestimmung von Bläschengrößen

Den Frequenzen, bei denen Klirrfaktormaxima auftreten, lassen sich, wie in Abb. 5 gezeigt, Bläschen-durchmesser zuordnen. Zu dieser Darstellung sind die Resonanzfrequenzen der einzelnen Oberflächenschwingungen für $n = 2$ bis 7 als Funktion des Bläschen-durchmessers aufgetragen, wie sie sich nach der Lamb-Formel für das System Wasserstoff in Sojaöl bei $180^\circ C$ und 1 bar ergibt. Zur Bestimmung eines Bläschen-durchmessers wurden die Frequenzbereiche, denen ein Klirrfaktormaximum zuzuordnen ist (s. Abb. 4c), eingezeichnet. Er liegt zwischen 1,5 und 2 mm. Eine grobe Abschätzung des Bläschen-durchmessers durch Beobachtung sowie anhand theoretischer Überlegungen (s. z.B. [11]) bestätigen die Brauchbarkeit der hier vorgeschlagenen Bestimmungsmethode.

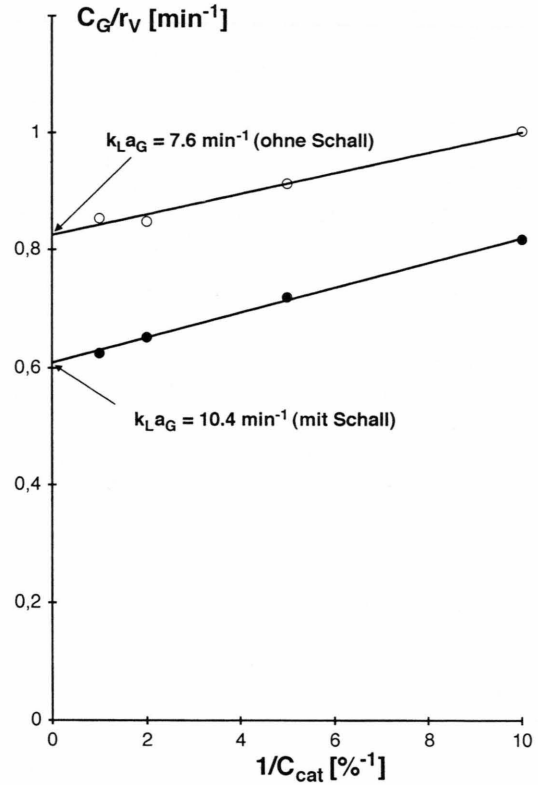


Abb. 6. Ermittlung von Stoffaustauschwerten aus Umsatzmessungen bei verschiedenen Katalysatorkonzentrationen mit und ohne Schalleinwirkung.

4.3. Stoffaustauschmessungen

Zur Bestimmung von Stoffaustauschwerten, d.h. von $k_L a_G$ -Werten, wurden Umsatzmessungen unter den gleichen Reaktionsbedingungen wie oben, jedoch mit verschiedenen Katalysatorkonzentrationen durchgeführt.

Die Katalysatorkonzentrationen C_{cat} wurden im Bereich von 0,1 bis 1% variiert. Es wurden Messungen mit Einwirkung von Schall, und zum Vergleich Messungen ohne Schalleinwirkung durchgeführt. Bei der gewählten Frequenz von 230 ± 20 Hz sollten Oberflächenwellen, jedoch keine Säulenresonanzen angeregt werden.

Bei der Auswertung der Messungen wurde – wie allgemein üblich bei der Fetthärtung (s. z.B. [12, 13]) – davon ausgegangen, daß eine Reaktion 1. Ordnung vorliegt und der gasseitige Stofftransportwiderstand

vernachlässigbar ist. Die gewünschten $k_L a_G$ -Werte lassen sich dann bestimmen nach

$$\frac{C_G}{r_v} = \frac{H}{k_L a_G} + \frac{AH}{C_{cat}} \left(\frac{1}{k_c} + \frac{1}{k} \right). \quad (6)$$

C_G	H_2 -Konzentration in der Gasphase [mol/m ³],
r_v	Reaktionsgeschwindigkeit [mol/(m ³ · min)]
k_L	Stofftransportkoeffizient (flüssigkeitsseitig) [m/min],
k_c	Stofftransportkoeffizient am Katalysator [m/min],
a_G	Oberfläche der Gasblasen [m ² /m ³],
H	H_2 -Löslichkeit $\{[\text{mol/m}^3 (\text{Gasphase})]/[\text{mol/m}^3 (\text{Öl-Phase})]\}$,
a_{cat}	Katalysatoroberfläche [m ² /m ³],
C_{cat}	Katalysatorkonzentration [%],
A	Proportionalitätskonst. zw. a_{cat} und C_{cat} [(m ³ · %)/m ²].

Trägt man, wie in Abb. 6 geschehen, C_{gas}/r_v gegen $1/C_{cat}$ auf, so erhält man als Ordinatenabschnitt den

Wert für $H/k_L a_G$. Mit einer H_2 -Löslichkeit von 6,27 (geschätzt nach Werten aus [14]) erhält man für die Messung ohne Schalleinwirkung einen $k_L a_G$ -Wert von 7,6 min⁻¹. Mit Schalleinwirkung ergibt sich ein $k_L a_G$ -Wert von 10,4 min⁻¹. Zusätzlich läßt sich aus Abb. 6 erkennen, daß das Geschehen am Katalysator selbst durch die Schalleinwirkung nicht beeinflusst wird, da die Steigungen und somit auch die k_c - und die k -Werte in etwa gleich sind.

Die Beschleunigung des Stofftransports durch Schalleinwirkung beträgt 36% bei einer eingebrachten Schalleistung von wenigen Milliwatt. Der geringe Aufwand an Schallenergie wird darauf zurückgeführt, daß durch Schalleinwirkung die Bläschen gezielt zum Schwingen angeregt werden können, wobei energie-günstig Resonanzeffekte auszunutzen sind, die im ge-rührten Reaktor nicht zur Verfügung stehen.

- [1] G. J. Jameson, Trans. Instn. Chem. Engrs. **44**, T91 (1966).
- [2] M. H. I. Baird, Chem. Eng. Sci. **18**, 685 (1963).
- [3] K. J. Moulton, S. Koritala, and E. N. Frankel, JAOCS **60**, 1257 (1983).
- [4] P. J. Wan, M. wa Muanda, and J. E. Covey, JAOCS **69**, 876 (1992).
- [5] S. V. Jadhav and V. G. Pangarkar, JAOCS **66**, 362 (1989).
- [6] E. Silberman, J. Acoust. Soc. Amer. **29**, 925 (1957).
- [7] A. Prosperetti, Appl. Sci. Res. **38**, 145 (1982).
- [8] E. A. Neppiras, Ultrasonics **18**, 201 (1980).
- [9] M. Minnaert, Phil. Mag. (Ser. 7) **16**, 253 (1933).
- [10] H. Lamb, Hydrodynamics, Cambridge University Press, 6th. ed., (1975), S. 475.
- [11] K. Akita and F. Yoshida, Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev. **13**, 84 (1974).
- [12] J. M. Smith, Chemical Engineering Kinetics, McGraw-Hill Book Co., Singapore u.a. 3rd. ed. **1981**, p. 432.
- [13] J. W. E. Coenen, in J. H. de Boer (ed.), The Mechanism of Heterogeneous Catalysis, S. 126, Elsevier Publishing Company, New York, 1960.
- [14] L. Bern, M. Hell, and N.-H. Schön, JAOCS **52**, 182 (1975).