

에탄 열분해 반응이 동반된 관형 반응기에서의 열전달 및 화학반응 특성 연구

신 찬 영,¹ 안 준*²

¹국민대학교 일반대학원 기계공학과

²국민대학교 기계공학부

THE CHARACTERISTICS OF HEAT TRANSFER AND CHEMICAL REACTION FOR THERMAL CRACKING OF ETHANE IN TUBULAR REACTOR

C.Y. Shin¹ and J. Ahn*²

¹Dept. of Mechanical Engineering, Graduate school, Kookmin Univ.

²School of Mechanical Engineering, Kookmin Univ.

Thermal cracking is commonly modeled as plug flow reaction, neglecting the lateral gradients present. In this paper, 2-dimensional computational fluid dynamics including turbulence model and molecular reaction scheme are carried out. This simulation is solved by means of coupled implicit scheme for stable convergence of solution. The reactor is modeled as an isothermal tube, whose length is 1.2 m and radius is 0.01 m, respectively. At first, the radial profile of velocity and temperature at each point are predicted in its condition. Then the bulk temperature and conversion curve along the axial direction are compared with other published data to identify the reason why discussed variations of properties are important to product yield. Finally, defining a new non-dimensional number, Effect of interaction with turbulence, heat transfer and chemical reaction are discussed for design of thermal cracking furnace.

Key Words : 열분해(Thermal Cracking), 관형 반응기(Tubular reactor), 국소 Peclet 수(Local Peclet number)

1. 서 론

석유화학산업에서 중요한 생산물 중 하나로 에틸렌(C_2H_4)을 꼽을 수 있다. 에틸렌은 이중결합을 가지는 불포화 탄화수소로 반응성이 좋아 특정 제품을 쉽게 제조할 수 있는 특징을 가지고 있다. 그에 따라 에틸렌은 석유화학과정에서 제품을 생산하기 위한 단일 분자 중간체로서 아주 중요한 역할을 하고 있다.

에틸렌을 생산하는 공정으로는 크게 두 가지로 구분 지을 수 있다. 첫 번째는 에탄(C_2H_6)을 원료로 한 탈수소 반응(dehydrogenation)이고, 다음으로 원유를 분별증류 할 때 생성

되는 액체상태의 탄화수소인 나프타를 수증기 분해(steam cracking) 하는 것이다. 기본적으로 에틸렌 생산은 알칸(alkane)을 포함한 그 이상의 분자량을 가진 탄화수소에서 열 분해를 통해 분자량을 작게하는 과정을 기본으로 하고 있다. 두 방법에서 에틸렌을 얻기 위한 공급원료의 상(phase)에 차이는 있으나, 기본적인 반응 메커니즘은 흡열반응이며 가열로(furnace) 내 고온의 연소가스를 통해 열을 관형 반응기로 공급하는 방식을 동일하게 채택하고 있다. 따라서 관내에 유동현상과 화학반응, 관형 반응기(tubular reactor)로 들어오는 열전달 특성에 대한 이해는 에틸렌 생산에 있어 효율을 향상시키는데 필수적인 요소이다.

현재까지 에탄 열분해를 통한 에틸렌 생산에 많은 연구들이 진행되었다. Froment(1976)에 의해 에탄과 에탄 / 프로판 혼합물 각각에 대하여 열분해에 대한 모형 plant 규모의 실험이 진행되었으며, 각 반응에 대해 molecular reaction scheme으로 불리는 반응 모델이 제안되었다. 더불어 각 반응에 대한

Received: February 16, 2016, Revised: March 7, 2016,

Accepted: March 7, 2016.

* Corresponding author, E-mail: jahn@kookmin.ac.kr

DOI http://dx.doi.org/10.6112/ksce.2016.21.1.043

© KSCFE 2016

아레니우스 상수(Arrhenius parameter)와 활성화 에너지(activation energy)도 함께 제안되었다[1].

에탄 열분해에 대한 아레니우스 상수의 제안과 함께 관형 반응기에 대한 수치해석적 연구도 뒤따라 진행되었다. Froment(1979)는 관형 반응기 내의 유동 형태를 층류로 가정하고 화학종 보존과 에너지 보존에 대하여 2차원 해석을 진행하였다[2]. Srivastava(2006) 또한 같은 층류 가정과 함께 등온 벽 조건에서 차원 비교(1차원 모델과 2차원 모델의 해석결과 비교 및 타당성)를 진행하였으며, 레이놀즈 수(Reynolds number) 변화에 따른 에틸렌 생산량을 비교하였다[3].

반응 메커니즘 규명으로 인해 에탄 열분해에 대한 수학적 모델링이 가능해졌음에도 불구하고, 최근까지도 plug 유동과 층류 유동과 같이 이상적인 상황에 국한되어 수치해석이 진행되고 있다. 실제 대부분의 연구들은 RTD(residence time distribution)과 같은 실험을 통해 진행되고 있으며[6] 측정 방법의 한계 등의 이유로 열전달 및 물질전달 특성, 화학반응 특성 등을 규명하는데 한계점을 드러내고 있다.

따라서 본 연구는 등온 벽 조건에서 에탄 열분해 반응이 동반된 관형 반응기의 열전달 및 반응특성을 STAR-CCM+ 10.04 버전을 활용하여 전산유체역학 해석을 진행하고자 한다. 유동현상과 화학반응뿐만 아니라 900°C 근방에서 작동하는 관형 반응기의 특징을 생각하여 고온영역에서의 화학종에 대한 물질치 변화를 고려하였으며, Re 수를 고려하여 난류의 영향 또한 고려하였다.

2. 해석대상 및 반응 메커니즘

본 연구를 진행하기 위하여 Fig. 1과 같이 해석대상을 설정하였다. 해석대상으로는 지름 0.02 m, 길이 1.2 m의 관형 반응기를 선정하였다. 또한 계산영역은 계산시간의 단축을 위해 반응기 중심을 축대칭으로 한 2차원 평면으로 설정하였다. 대부분의 전달현상과 화학반응은 벽면 근처에서 발생하기 때문에 벽 근처에 격자가 집중되어야 한다. 하지만 120배 정도인 계산영역의 aspect ratio와 반경 방향으로 위치할 격자수를 생각해 본다면 무한히 많은 격자가 생성될 것이며, 그에 대한 계산 비용 또한 증가될 것으로 예측하였다. 따라서 본 연구는 다각형 격자(polygonal mesh)를 생성하고 stretching ratio를 1.1로 설정하여 큰 aspect ratio를 극복하고자 노력하였다. 또한 벽면 근처는 따로 사각형 격자를 생성하여 벽면 효과가 해석에 충분히 반영될 수 있도록 격자를 생성하였다.

해석결과에 신뢰도를 높이기 위하여 벽면에서부터 첫 번째로 위치한 격자의 y^+ 를 0.03으로 설정하였다. 화학반응 전산유체역학 해석에 있어서 적합한 첫 번째 격자의 y^+ 는 알려져 있지 않은 상태이며, 열전달에 적합한 최소 $y^+ < 5$ 기준을 감

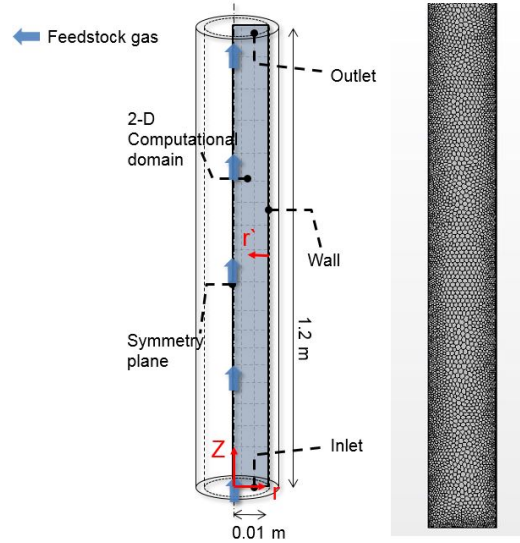


Fig. 1 The Computational domain and mesh

안하여 위와 같이 설정하였다. 계산영역에서 반경방향으로 평균 70개의 격자가 구성되었으며 생성된 총 격자수는 189,826개로 2차원 해석에 무난하고 적합한 격자를 생성하였다.

경계조건으로는 입구 속도를 3.1 m/s, Re 수 4300, 온도는 600°C, C_2H_6 99%로 설정하였다. 제시된 입구 경계 조건은 pre-heater를 통해 미리 가열되어 가열로 내로 들어올 때의 조건이며 출구 조건으로는 작동 압력인 절대 압력 1 atm이다. 실제 에탄 열분해 시 관 벽에 코크(coke)의 생성을 막기 위해 수증기를 반응기 내로 함께 주입해주지만, 본 연구에서 코크의 생성은 반응 메커니즘에 포함시키지 않아 수증기의 영향은 고려하지 않았다. 벽 경계조건으로 non-slip 조건을 사용하였으며 950°C 등온 벽으로 설정하였다.

실제 가열로 내 관형 반응기 표면에 열유속 분포는 가열로 내 버너(burner)의 위치에 의해 좌우되며 그에 따라 축 방향으로 다른 반응기 벽 온도를 갖게 된다. 하지만 반응기 벽에 축방향 온도 구배가 존재할 경우, 화학반응과 벽으로 부터의 열전달 간에 상관관계를 직접적으로 알기 어려워 이론적 측면에서 등온 벽 조건으로 설정하였다. 마지막으로 2차원 상황에서 반응기 중심선을 기준으로 축대칭 해석을 진행하였다.

3. 수치해석 방법

3.1 지배방정식 및 이산화

$$\nabla \cdot (\rho \vec{u}) = 0 \quad (1)$$

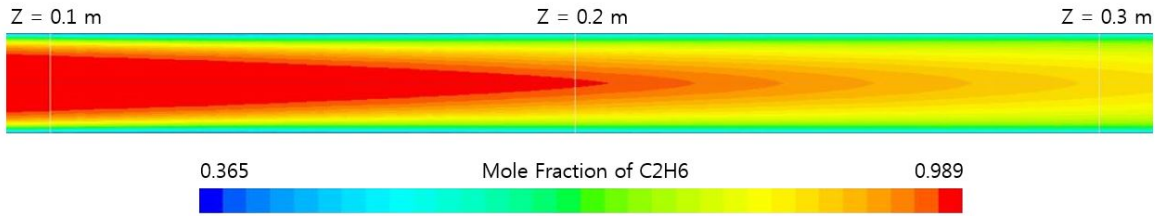


Fig. 2 The Contour of mole fraction to ethane(C₂H₆)

관형 반응기 내 유동의 정상상태와 온도에 대한 밀도 변화를 표현하기 위하여 질량 보존법칙을 식 (1)과 같이 설정하였다. 앞서 언급한 바와 같이 에탄 열분해는 고온 기체 상태 반응이다. 따라서 전체 화학종에 대한 이상기체가정이 적용되었으며, 고온영역에서 밀도변화를 이상기체 상태방정식을 통해 계산하게 된다.

$$\nabla \cdot (\rho \vec{u} \otimes \vec{u}) = -\nabla P + \nabla \cdot (\mu \nabla \vec{u}) \quad (2)$$

운동량 보존방정식을 식 (2)와 같이 Navier-Stokes equation 사용하였다. 다음은 에너지 보존방정식이다.

$$\nabla \cdot (\rho u c_p T) = \nabla \cdot (k \nabla T) + S_h \quad (3)$$

연구에 사용된 모든 정상상태 지배방정식은 coupled implicit solver로 계산되었다. coupled implicit solver란 정상상태 해석을 진행할 때, pseudo-transient term을 생성하여 마치 비정상 해석 형태로 특정 pseudo-time에서의 해가 이 항을 0으로 만들 때 까지 진행하는 방법이다. 위 방법은 정상상태 해석에서 수렴성이 낮은 문제를 조금 더 효율적으로 풀기 위한 방법으로 제안되었으며 이산화 과정 시 비정상 항과 동일하게 처리하여 본 연구에서는 implicit scheme으로 이산화 하였다[5].

3.2 반응 및 난류 모델

화학반응에 대한 화학종 보존방정식은 식 (4)-(6)에 표현하였다.

$$\nabla \cdot (\rho u Y_i - D_i \nabla Y_i) = S_i \quad (4)$$

$$S_i = k_r [C_i]^n \quad (5)$$

$$k_r = A e^{-E/RT} \quad (6)$$

식 (4)는 전체에 대한 각 화학종 분율(fraction)을 대류, 확

산 그리고 반응에 의한 생성항으로 구분하였으며, 생성항을 농도와 반응속도상수(k_r)의 곱으로 표현하였다. 그리고 반응속도상수는 Arrhenius equation을 통해 frequency factor(A)와 activation energy(E)에 대한 함수의 곱으로 표현하였다. 각 반응에 대한 Arrhenius parameters는 Table 1에 나타나있다[1].

관형 반응기 내부에서 유동의 난류성분이 매우 작은 스케일(small scale)과 높은 진동수(high frequency)를 가지기 때문에 유동장 전 영역에서 가장 작은 스케일의 움직임까지 해석하는 것은 수치해석적으로 막대한 비용을 요구한다[4]. 따라서 난류 변동성분에 대한 Reynolds time-averaging을 통해 난류를 해석하였고 난류모델로는 standard k-ε model이 사용되었다.

4. 해석결과 및 고찰

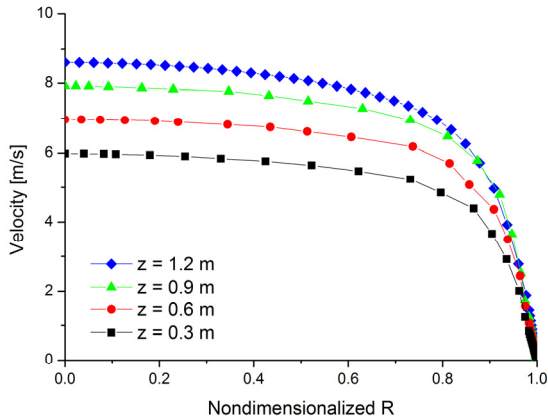
본 연구에서는 물성치 변화를 고려한 전산유체역학 해석이 주요하게 진행 되었다. 앞 절에서도 설명한바와 같이 이상기체 상태 방정식을 이용하여 밀도 변화를 계산하였으며, 각 화학종에 따른 분자량과 열전도도(thermal conductivity)값을 설정 해주었다. 그리고 1000 K이상에서 작동하기 때문에 비열의 변화도 중요한 요소로 작용하여 NASA polynomial coefficients를 통해 온도에 따른 비열 변화를 해석에 적용하였다.

Fig. 2는 축 방향 입구로부터 0.1 m에서 0.3 m까지의 에탄의 몰분율을 나타내고 있다. 벽으로 부터의 관형 반응기 중심까지 열이 전달되며 화학반응으로 인해 에탄이 감소하고 있는 형태를 보여주고 있으며, 전체 반응장이 축 대칭 형태를 띄고 있음을 알 수 있다.

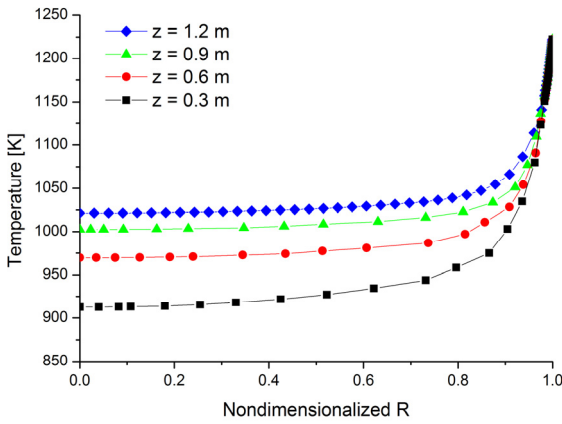
Fig. 3는 각 위치별 축 방향 속도(a) 및 온도(b) 분포를 나

Table 1 Boundary conditions

	A(sec ⁻¹)	E(kcal/kmol)
C ₂ H ₆ ↔ C ₂ H ₄ + H ₂	4.65x10 ¹³	65,210
2C ₂ H ₆ → C ₃ H ₈ + CH ₄	3.85x10 ¹¹	65,250
C ₃ H ₆ ↔ C ₂ H ₂ + CH ₄	9.81x10 ⁸	36,920
C ₂ H ₂ + C ₂ H ₄ → C ₄ H ₆	1.03x10 ¹²	41,260
C ₂ H ₄ + C ₂ H ₆ → C ₃ H ₆ + CH ₄	7.08x10 ¹³	60,430



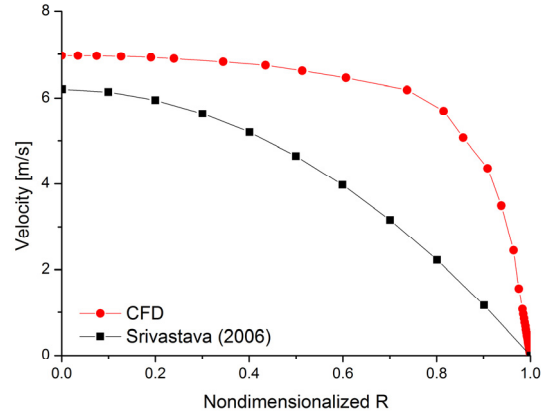
(a)



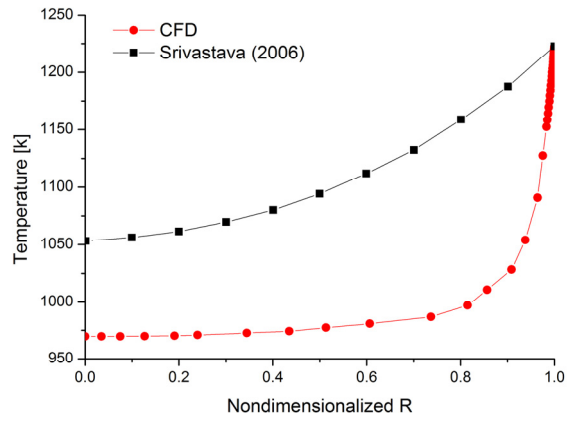
(b)

Fig. 3 The radial profile of velocity (a) and temperature (b) at each point

타내고 있다. Fig. 3(a)에서 중심($r = 0$)에서의 속도가 출구($z = 1.2$)쪽으로 진행함에 따라 증가함을 알 수 있는데, 다음과 과 같은 현상은 열분해에 의한 속도 증가로 해석할 수 있다. 에탄 열분해는 단일 분자에 대해 강한 흡열반응에 의한 분자량 감소를 특징으로 가지고 있는데, 유동 중인 분자의 질량변화는 속도의 증가로 나타난다. 또한 고온 영역에서 밀도의 감소가 고려된 결과로 생각되며 입구 속도 3.1 m/s에서 평균 출구 속도(u_{mean}) 6.64 m/s로 본 해석 조건에서는 두 배 이상의 출구 속도 증가를 확인할 수 있다. 또한 Fig. 3(b)는 관형 반응기 내로 공급된 열에 의한 유체의 온도 상승을 보여주고 있는데 1223.15 K의 벽 온도와 반응기 길이를 고려해봤을 때, 유체의 온도가 크게 상승하지 않는 모습을 보여주고 있다. 그 이유는 에탄 열분해의 강한 흡열성 때문으로 분석되며 구간 온도의 큰 변화가 존재하지 않으므로 화학반응이 종료되지 않음을 간접적으로 알 수 있다.



(a)



(b)

Fig. 4 The radial profile of velocity (a) and temperature (b) at $z = 0.6$ m

Fig. 4-5를 통해 운동량 방정식 고려와 고온상태의 영향력을 평가할 수 있다. Srivastava(2006)는 본 연구와 같은 해석 영역 및 경계조건에 대해 2차원 FDM 방식의 수치해석을 진행하였다. 먼저 같은 Re 수에 대하여 층류가정을 하고 반경 방향 속도 분포를 최대속도와 반지름의 이차함수로 가정하였으며, 운동량 보존법칙을 제외한 화학종 보존과 에너지 보존 방식만을 풀어 다음과 같은 결과를 도출하였다[3].

$$T_{bulk} = \frac{1}{\rho c_p u_{mean} A} \int_A \rho(r) c_p(r) u(r) T(r) dA \quad (7)$$

먼저 Fig. 4(a)을 통해 $Z = 0.6$ 에서 반경방향 속도와 온도 분포를 비교 가능하다. 속도분포를 통해 유동형태 간에 확인한 차이를 볼 수 있다. 속도분포에 차이는 유동의 혼합에 영향을 미치며 열확산에 기여를 한다. 난류성분에 의한 열확산

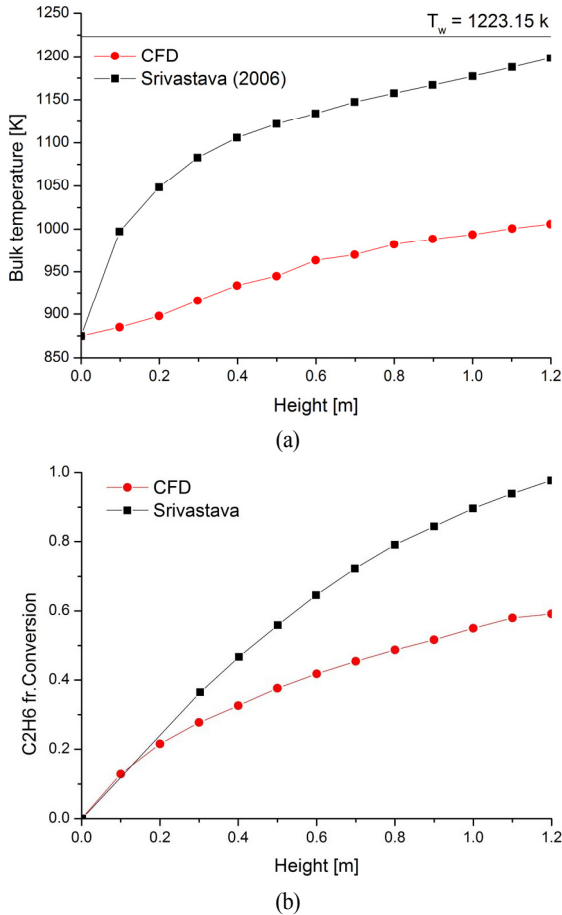


Fig. 5 The bulk temperature (a) and conversion curve (b)

축진은 반경방향으로의 반응 가능성에 영향을 주며 화학반응을 예측함에 있어서 중요한 역할을 할 수 있다. 이어서 Fig. 4(b) 반경 방향 온도 분포이다. CFD 해석이 Srivastava에 비해 중심에서의 온도가 현저하게 낮음을 알 수 있는데 Fig. 5(a)에서도 식 (7)을 통해 구한 T_{bulk} 가 Srivastava에 비해 낮게 나타난다. 그 이유는 Srivastava의 결과에서 유체의 관성력이 유동 해석에 충분히 반영되지 못하여 관성력에 동반되는 열에너지가 벽으로부터 영향을 더 받게 되면서 전체적으로 유동장에 온도 분포가 상승한 것으로 보인다. 식 (8)을 통한 전환율 (conversion)을 이용해 Fig. 5(b)가 나타내고 있는 반응 정도와 함께 비교해 보면, 입구로부터 $z = 0.1$ 구간까지 비슷한 전환율을 보인다. 하지만 벽면으로부터의 작은 온도 구배는 유동장 전체의 온도를 과대평가하게 되어 같은 전환율 상태에서 CFD 해석보다 높은 온도로 특정 구간($z = 0 \sim z = 0.1$)을 통과, 다음구간에서 과한 전환율을 보이고 있다.

$$Conversion = \frac{F_{feedstock} - F_{remaining}}{F_{feedstock}} \quad (8)$$

다음으로 무차원화를 통해 화학반응을 잠재적으로 포함한 열전달과 유체 유동간의 영향력을 평가해 본다. 열확산과 유체유동간의 무차원 수로 Peclet 수를 들 수 있다. 하지만 대상 시스템과 작동조건이 정해지면 대표 Peclet 수가 정해지기 때문에 국소적인 영향력을 평가하는 데는 무리가 있다. 따라서 Peclet 수를 응용하여 국소적인 영향력을 평가하는 새로운 무차원수를 설정해 해석을 진행하고자 한다.

$$Pe = RePr = \frac{UL}{\alpha} \quad (9)$$

Peclet 수는 통상 식 (9)와 같이 표현하는데 특성길이를 관형 반응기의 반지름으로 설정하고 국소적인 물질치 변화와 난류 프란틀 수(Pr)와 같은 난류에 의한 열전달 촉진 영향을 포함시켜 국소 Peclet 수를 식 (10)과 같이 새롭게 정의 하였다.

$$Pe_{local} = \frac{u(r)R}{\alpha_t} = \frac{u(r)R\rho c_p}{k_{eff}} = \frac{u(r)R\rho c_p}{k + \frac{\mu_t c_p}{Pr_t}} \quad (10)$$

Fig. 6는 벽면($r = 1.0$)에서부터 속도 가중이 함께 되며 반응기 중심($r = 0$)까지 국소 Peclet 수 분포를 축 방향 위치에 따라 비교하였다. Fig. 6는 세 영역으로 나눌 수 있는데 벽면 근처 속도 구배가 우세한 영역과 혼합에 의한 열전달 촉진 영역, 마지막으로 평형 영역이다.

먼저 Fig. 6에서 벽면 근처 영역으로 열전달 보다는 속도 구배가 우세한 영역이다. 반경 방향으로의 국소 Peclet 수의 변화를 고려해 보면, 벽 근처에서는 특징적으로 화학반응이 활발하며 그에 따라서 분자량이 작은 화학종들이 분포하여 thermal capacitance가 작고 열전달이 용이한 물질들이 분포하게 된다. 하지만 Fig. 6를 보면 국소 Peclet 수가 증가함을 알 수 있는데 벽면에서 멀어짐에 따라 난류 운동 에너지가 소폭 증가하지만 상대적으로 thermal capacitance의 증가와 급격한 속도 구배에 의해 본 구간에서 반경방향으로 열전달이 방해 받고 있음을 알 수 있다. 그리고 축 방향으로 국소 Peclet 수를 살펴보면 관형 반응기의 출구 쪽($z = 1.2$)으로 진행할수록 분자량이 작은 화학종들이 넓게 분포하며 그에 따라 전체적으로 thermal capacitance가 감소, 열확산이 용이해진다. 하지만 앞서 언급한 바와 같이 분자량 감소에 의한 출구 평균 속도

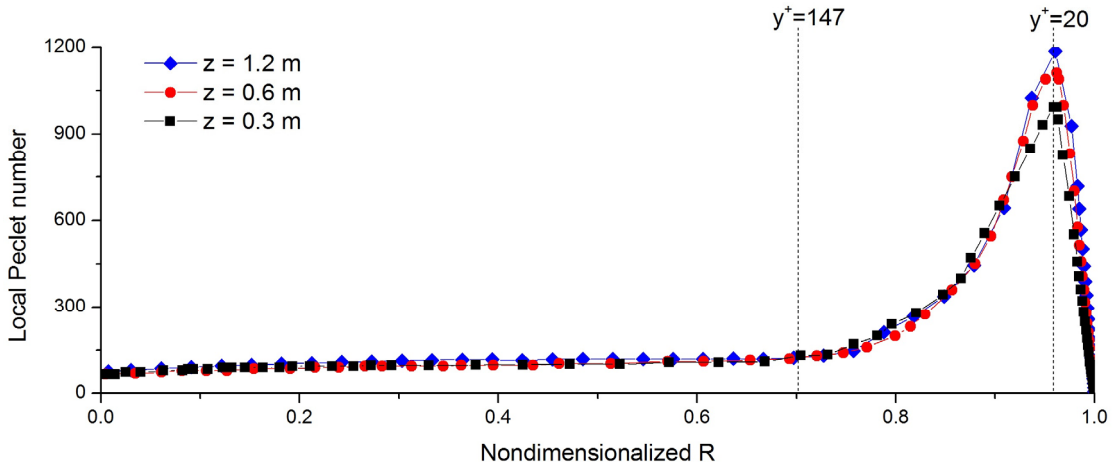


Fig. 6 The radial profile of local pecelet number

의 증가는 입구 속도에 비해 2배 이상의 큰 차이를 가지게 된다. 열분해에 의한 속도 증가는 관성력을 크게 하며 벽 근처 영역에서 열전달의 영향보다 관성의 영향을 더 크게 하는 경향을 Fig. 6와 같이 보이게 된다. 따라서 반경 방향으로 혼합의 영향 부재, 그리고 출구 방향으로 속도의 증가가 열전달과 화학 반응의 가능성에 대해 저해하는 요소임을 알 수 있다.

다음으로 혼합에 의한 열전달 촉진 구간이다. 이 구간은 난류에 의한 혼합이 열을 전달하는 주요 메커니즘인 구간이다. 증가된 속도에 관하여 분자들 간의 상대운동에 의한 난류 성분들이 생성되며 혼합에 의해 열을 전달한다. 혼합에 의한 열전달이 속도 구배보다 큰 영향력을 가지는 영역으로 국소 Peclet 수가 감소하게 된다. y^+ 를 계산해 보면 20 ~ 147 사이 구간으로 buffer layer중에서도 viscous sub-layer에 가까운 최하층 구간에 속하게 되며 난류 성분의 생성과 국소 Peclet 수의 감소, 열전달 촉진이 영향이 있음을 알 수 있다.

마지막으로 평형 영역이다. 유체의 유동 현상과 그에 따른 혼합 그리고 분자량 감소에 의한 thermal capacitance의 감소가 전체적으로 평형을 이루는 구간이다. 관형 반응기 내 반경 방향 / 축 방향으로 큰 특징을 보이지는 않는다.

5. 결 론

본 연구에서는 등온 벽 조건에서 에탄 열분해가 적용된 관형 반응기의 열전달 및 화학반응 특성을 알아보기 위해 반경 방향 / 축 방향에 대해서 논문 비교와 함께 국소 Pe 수를 정의하여 진행되었다. 관형 반응기 해석에서 CFD 해석과 난류의 필요성, 물성치 변화에 따른 thermal capacitance의 감소 그

리고 혼합(mixing)에 의한 열전달 메커니즘까지 알아보았다. 결론은 다음과 같다.

- (1) 화학반응이 동반된 관형 반응기 수치해석에서 유동의 관성력을 적절히 평가하고 계산에 수반해야 조금 더 현실적인 결과를 얻을 수 있으며 본 연구에서는 열분해에 의해 입구 속도에 비해 출구 속도가 두 배 이상 증가하는 경향을 보인다.
- (2) 유체의 thermal capacitance의 변화 같은 고온 영역에서 물성치 변화와 혼합에 의한 열전달 효과는 반응기 내 열전달 매커니즘에 직접적인 영향을 미쳐 수득율 예측에 중요한 변수가 될 수 있으며 본 연구에서는 비교된 논문들에 비해 절반의 수득률을 보인다.
- (3) 결론 (1), (2)에서 언급한 요소들은 본 논문에서 제시한 국소 Peclet 수를 이용하여 분석할 수 있으며 반경 방향 국소 Peclet 수의 극점이 낮고, 벽 쪽으로 이동할수록 같은 조건에서 최대 에틸렌 생산을 가능하게 한다.
- (4) 출구로 갈수록 분자량이 작은 화학종들이 넓은 범위에 분포해 thermal capacitance가 감소하지만, 속도가 증가함에 따라 반경 방향으로 열전달을 저해할 수 있으므로 입구 쪽에 열량이 집중될 수 있는 평행류(parallel-flow)형태가 효율적이다.

후 기

본 연구는 2013년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 산업기술혁신사업의 일환으로 수행한 결과이며 지원에 감사드립니다.(NO. 20132010500060).

References

- [1] 1976, Froment, G.F., Vand de steene, B.O. and Van Damme, P.S., "Thermal Cracking of Ethane and Ethane-Propane Mixtures," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, Vol.15, No.4.
- [2] 1979, Sundaram, K.M. and Froment, G.F., "A Comparison of Simulation Models for Empty Tubular Reactors," *Chemical Engineering Science*, Vol.34, pp.117-124.
- [3] 2006, Grag, R.K., Krishnan, V.V. and Srivastava, V.F., "Prediction of Concentration and Temperature Profiles for non-isothermal Ethane Cracking in a pipe reactor," *Korean J. Chem. Eng.*, 23(4), pp.531-539.
- [4] 2013, Nan, Z., Tong, Q. and Bingzhen, C., "CFD simulation of Propane Cracking Tube Using Detailed Radical Kinetic Mechanism," *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 21(12), pp.1319-1331.
- [5] 2015, STAR-CCM+ Version 10.04, User Guide, CD-Adapco.
- [6] 2005, Schmidt, L.D., "The Engineering of Chemical Reactions," *Second edition*, Oxford university press.