

부가결정화를 이용하여 납사분해유의 C₉ 방향족 혼합물로부터 Pseudocumene 분리

김광주 · 이철호 · 유승곤*

한국화학연구소 청정기술연구실
*충남대학교 공과대학 화학공학과
(1992년 5월 23일 접수, 1992년 10월 1일 채택)

Separation of Pseudocumene from C₉ Aromatic Raffinate by Adductive Crystallization

Kwang-Joo Kim, Choul-Ho Lee and Seung-Kon Ryu*

Korea Research Institute of Chemical Technology, Clean Technology Lab.

**Dept. of Chemical Engineering, Chungnam National University*

(Received 23 May 1992; accepted 1 October 1992)

요 약

부가결정화 기술을 이용하여 납사분해센타에서 부생되는 C₉ 방향족 혼합물로부터 pseudocumene을 분리하였다. 원료투입비, 결정화온도, 용매비, 냉각속도 등을 변수로 하여 thiourea 부가특성을 조사하였으며, pseudocumene을 분리할 수 있는 최적조건을 조사하였다. Pseudocumene은 C₉ 방향족 혼합물로부터 4단계 부가결정화 조작에 의해서 99.7 wt%의 순도로 분리될 수 있었다. Trimethylbenzene 이성체에 대하여 thiourea에 부가되는 경향은 pseudocumene>hemimellitene>>mesitylene의 순이었다. C₉ 방향족 화합물의 이성분계에 대한 부가결정화의 분리도를 추출결정화 및 증류의 분리도와 비교하였다. 이들 이성분계에 대하여 부가결정화에 의한 분리정도(extent of separation)는 한 이론 증류단수의 최대분리정도 보다 5.4-24배 컸으며, 추출결정화에 비해 1.9배 컸다. 또한 부가결정화의 한 단(stage)에서 분리할 수 있는 thiourea의 포획도는 추출결정화에 비해 6배 정도 컸다.

Abstract—The separation of pseudocumene from the C₉ aromatic raffinate found in naphtha cracker was studied using adductive crystallization with thiourea. The characteristics of thiourea adduction are investigated on the variables of feed ratio, temperature, solvent ratio and cooling rate, and optimum conditions on the separation of pseudocumene are investigated on these variables. Pseudocumene can be separated by four stages adductive crystallization from C₉ aromatics as a purity of 99.7 wt%. With the trimethylbenzene isomers, the tendency for thiourea adduction is pseudocumene>hemimellitene>>mesitylene. The separation capacities of adductive crystallization for two binary mixtures of C₉ aromatics were compared with those of distillation and extractive crystallization. The extent of separation by one adduction is approximately 5.4 to 24.0 times greater than maximum separation that could be obtained by one theoretical distillation stage. The entrapping capacity is approximately 6.0 times greater than the entrapping capacity that could be obtained by extractive crystallization.

1. 서 론

결정화에 의한 분리기술은 기액평형 분리공정에 비해 조작온도가 낮고 기화열의 약 1/3-1/7 정도의 용해열을 이용하므로 화합물의 열분해를 최소화하고 에너지 소비가 작다. 이 기술은 분리공정에서 문제시 되고 있는 이성체, 열변성 물질, 유사비점물질 등의 분리에 효과적으로 적용될 수 있다.

납사분해 공정에서 부산되는 C₉ 방향족 혼합물은 혼합물의 특성상 고전적 분리방법으로 분리가 매우 어렵다. 현재 이 부산물은 유용성분을 다량 함유한 채 주로 연료, 용제 등으로 사용되고 있다. C₉ 방향족 혼합물 중의 주요물질로는 pseudocumene, hemimellitene, mesitylene 등이 있다. 이들 중 hemimellitene과 mesitylene은 합성에 의해 제조되지만, pseudocumene은 현재 C₉ reformat의 초다단중류(200단 이상 중류탑)에 의하여 얻어지고 있다[3]. 그러나 초다단 중류에도 불구하고 pseudocumene은 다른 유사비점 물질때문에 99 wt% 이상의 순도로의 경제적인 분리가 불가능하다.

McCandless[9]는 추출결정화에 의해 C₉ aromatic 혼합물을 분리하였지만 결정화기의 체류시간이 24시간 이상 소요될 뿐만 아니라 상당히 낮은 회수율(pseudocumene 1몰 회수에 32몰 thiourea 소요)을 나타내었다. 또한 추출결정화는 추출용매(CCl₄, 1,2,4-TCB 등)의 회수를 위한 또다른 분리조작이 필요하므로 C₉ aromatics 혼합물 분리에 부적합하다.

본 연구에서는 이 분리공정의 대안을 제시할 뿐만 아니라 납사 잔사로부터 pseudocumene을 고순도 분리할 수 있는 방법을 제시하고자 한다. 부가결정화는 추출용매를 사용하여 액상으로 분리하는 추출결정화에 비해 extraneous 매체를 부가하여 고상으로 분리하는 기술로써 부가된 extraneous 매체를 용해하여 상분리에 의해 순수한 부가물질을 얻을 수 있다. 부가결정화는 요소(urea)를 이용하여 n-paraffin의 공업적 분리 및 윤활기유의 왁스분 제거에 유럽 등에서 많이 채택[2, 4, 10]되고 있지만 naphthen, isoparaffin, 방향족 유도체 등에 선택적인 thiourea의 이용 분야는 많이 연구되지 않고 있다. Thiourea 부가에 대한 연구는 xylene 이성체와 ethylbenzene으로부터 ethylbenzene 분리[8], hydrogenated monoterpene 분리[6], trimethylterpene 분리[7] 등에서 행해졌다. 이들 연구는 분리도의 자료 제시를 위한 고-액 상평형 자료의 수집에만 치중되어 있을 뿐이고 부가결정화에 영향을 미치는 주요변수에 대한 최적조건 설정에는 보고가 되지 않고 있다. 따라서 본 연구에서는 thiourea를 이용한 부가결정화에 의하여 납사 잔사유의 C₉ 방향족 혼합물로부터 pseudocumene

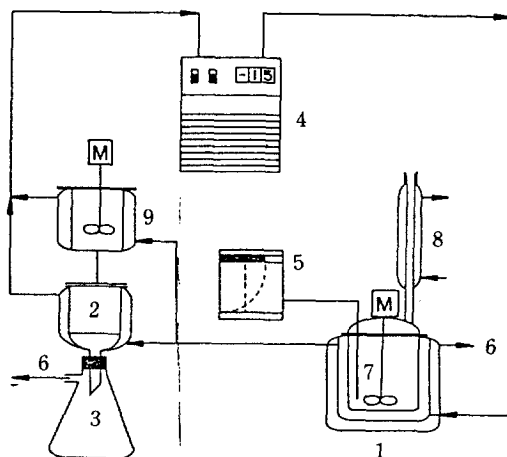


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

- | | |
|---|--------------------------|
| 1. Crystallizer | 5. Temperature recorder |
| 2. Glass filter | 6. Vacuum pump |
| 3. Filtrate reservoir | 7. Thermocouple |
| 4. Thermostatic bath with programming controller and circulator | 8. Condenser |
| | 9. Washing media storage |

을 선택적으로 분리할 수 있는 공정을 제시하고, 결정화온도, 용매비, 주입비, 냉각속도 등의 변수에 대한 최적 분리조건을 확립하며, 이들 결과로부터 부가결정화 기술과 고전적인 분리기술의 성능을 비교하였다.

2. 실험

2-1. 실험장치

본 연구에서 사용된 실험장치의 개략도는 Fig. 1과 같다. 결정화기는 pyrex로 제작되었으며, 1/의 용량을 갖는 삼중관으로 되어 있다. 결정화기의 바깥쪽 jacket은 진공을 유지하여서 결정화기의 단열과 동시에 icing 방지를 통하여 결정화기의 내부를 투시할 수 있도록 하였으며, 두번째 jacket에는 가열 및 냉각용 매체를 순환시켜 결정화기의 온도를 조절하였다. 결정화기의 냉각속도는 냉동기의 온도조절기(Eurotherm 808)에 의해 조절되며, 교반속도는 520±20 rpm으로 하였다. 부가체의 세척액을 결정화 온도와 동일하게 유지하기 위하여 jacket형의 세척액 탱크 및 여과기를 제작하였다. 결정화기의 원료 주입구에 needle 밸브를 설치하여 포화상태의 thiourea 용액에 원료를 천천히 주입하였으며 결정화 초기에 발생될 수 있는 응집현상을 억제하였다.

2-2. 실험순서

Table 1. Approximate composition and physical properties of C₉ aromatics in various streams

Compound	Reformat(wt%)	Aromatic raffinate(wt%)	C ₉ ⁺ raffinate(wt%)	Normal BP(°C)	MP(°C)
Cumene	0.4	0.4	3.0	152.4	-96.1
n-Propylbenzene	5.7	0.5	12.2	159.2	-99.0
m-Ethyltoluene	21.0	11.9	37.0	161.3	-95.2
p-Ethyltoluene	9.6	2.3	16.3	162.0	-62.3
Mesitylene	9.3	1.6	3.5	164.7	-45.2
o-Ethyltoluene	9.0	20.0	16.2	165.2	-81.0
Pseudocumene	34.8	51.7	9.7	169.3	-43.8
Hemimellitene	8.5	5.9	2.1	176.1	-25.4
Indane	1.7	1.1	-	178.0	-51.4

본 연구에서 사용된 thiourea용매는 메탄올이다. 부가체는 원료용액(C₉ 방향족 혼합물)을 63°C의 포화된 thiourea 용액에 혼합하고 온도를 낮추면 형성된다. 부가체의 형성은 일정한 기간의 유도기간을 가지며, 낮은 온도까지의 냉각은 부가체의 수율을 향상시킨다. 결정화 후 생성된 부가체는 여과에 의해 잔여액(residue)으로부터 분리된다.

여과된 부가체의 표면에 부착된 잔여액은 n-hexane 500 cc를 사용하여 세척하였으며, 세척액의 온도는 부가체의 용해를 방지하기 위하여 결정화 온도와 동일하게 유지하였다. 세척된 부가체는 60°C에서 24시간 건조한 후 90°C의 물에 의해 분해된다. 이 때 부가체에 포획된 C₉ 방향족 혼합물은 상등액에 존재하며 층 분리에 의해 쉽게 회수된다.

부가체의 표면과 shape은 SEM 및 image analyzer가 부착된 광학현미경으로 분석하였으며, 분리된 C₉ 방향족 혼합물은 gas chromatography에 의해서 정량분석하였다. GC는 Shimadzu 14A-PF를 사용하였으며 검출기는 FID였다. GC신호는 면적계산기(Shimadzu, C-6A)를 이용하여 해석하였다. GC의 column은 5% DIDP + 5% Bentone 34에 chromosorb WHP 80/100을 충전한 1/8인치 SUS관 8m를 사용하였다.

2-3. 원료 조성

본 연구에 사용된 C₉ 방향족 혼합물은 납사분해 잔사유로부터 얻어졌다. C₉ 방향족 혼합물은 납사분해센터에서 BTX의 Tatoray 공정의 방향족 잔사유 및 C₉⁻ 잔사유로부터 얻어질 수 있다. Tatoray 공정은 BTX공정에서 수요가 적은 toluene을 benzene과 xylene으로 전환시키는 공정이다. C₉⁺ 잔사유는 방향족 추출공정 이전의 분해중유 제거 공정에서 얻어지며 비점차에 의해 C₁₀ 이상을 제거하면 C₉ 방향족 잔사유와 유사한 조성을 갖는다. 현재 pseudocumene 생산공정인 C₉ reformat 공정에서도 유사한 조성을 나타낸다[5]. Table 1은 이들

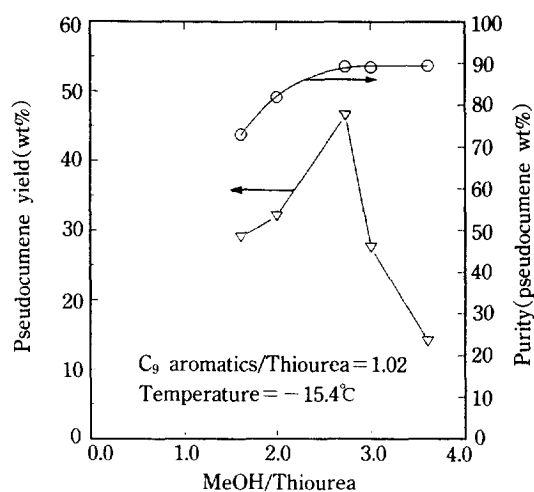


Fig. 2. Effect of the methanol to thiourea ratio on recovery of pseudocumene.

stream의 성분 및 물성치를 나타낸 것이다.

3. 결과 및 고찰

3-1. Thiourea 용매비 영향

Fig. 2는 C₉/thiourea=1.02 및 T=-15°C에서 thiourea와 메탄올비(무계비)의 변화에 따른 부가체에 포획된 pseudocumene의 순도 및 회수율의 영향을 나타낸 것이다. 메탄올과 thiourea 비가 증가함에 따라 낮은 용매비(2.73 이하)에서 pseudocumene의 회수율은 증가하였지만 높은 용매비(2.73 이상)에서 pseudocumene의 회수율은 감소하였다. Pseudocumene의 순도는 용매비가 증가함에 따라 용매비 2.73일 때까지 증가하였지만 그 이상에서는 일정하였다.

용매비 2.73 이하에서 용매비가 작을수록 회수율이 작은 현상은 혼합물의 높은 고체 함유율에 의해 야기

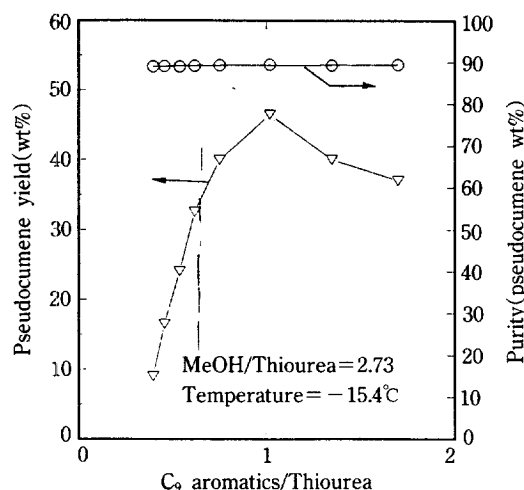


Fig. 3. Effect of the C_9 aromatics to thiourea ratio on recovery of pseudocumene.

되는 교반의 비균일성과 결정화 초기에 형성된 부가되지 않는 thiourea 결정의 성장 때문으로 판단된다. 또한 이런 조건들은 결정과 결정 사이의 응집현상을 야기시켜 포획된 pseudocumene의 순도를 낮게 한다.

용매비 2.73 이상에서 용매비가 클수록 회수율이 작은 현상은 thiourea에 pseudocumene이 포획될 수 있는 확률의 감소 및 thiourea 용해도의 기전력(용해도차)이 작아지기 때문으로 판단된다. 결과적으로 pseudocumene의 회수율과 순도를 결정하는 용매비의 최적조건은 2.7 근처임을 알 수 있다.

3-2. C_9 방향족 혼합물에 대한 thiourea 투입비의 영향

Thiourea 부가체는 guest 분자가 thiourea 분자의 2 차원적 통로에 inclusion되어 형성되는 일종의 비양론적 화합물이다. 따라서 이 부가체는 적당한 guest 화합물이 존재할 때만 형성된다. Guest에 대한 thiourea의 포획 능력은 thiourea 1몰당 포획된 guest몰로써 정의되며 guest와 thiourea투입비가 thiourea의 포획능력을 결정하는 중요한 변수로 작용한다. Fig. 3은 C_9 방향족 혼합물 중 thiourea에 포획되는 pseudocumene의 회수율 및 순도에 미치는 C_9 방향족 혼합물과 thiourea의 투입비의 영향을 나타낸 것이다.

Pseudocumene 회수율은 C_9 방향족 혼합물과 thiourea 비가 1.02일 때 최고점을 보이고 있었으며, 부가체의 순도는 실험된 전 구간에서 89.6 ± 0.2 wt%로 거의 일정하였다. 따라서 C_9 방향족 혼합물과 thiourea 비가 1.02일 때까지 C_9 방향족 혼합물이 thiourea에 포접되는

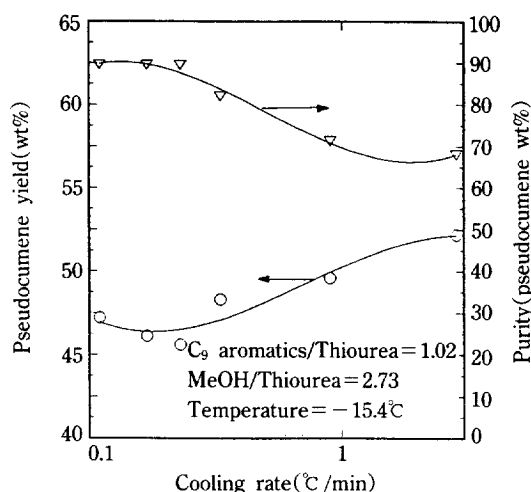


Fig. 4. Effect of the cooling rate on recovery of pseudocumene.

양이 증가하며 그 이상일 때는 C_9 방향족 혼합물이 inert로 작용하였다. 결과적으로 pseudocumene 분리를 위한 최적의 C_9 방향족 혼합물과 thiourea비는 1.02임을 알 수 있으며, 실험결과와 외삽으로부터 부가체를 형성할 수 있는 최소의 C_9 방향족 혼합물과 thiourea의 투입비는 0.23임을 알 수 있다.

3-3. 냉각속도의 영향

본 연구에서는 포화상태의 thiourea 용액과 C_9 방향족 혼합물을 일정속도로 냉각 조작하여 부가체를 형성시킨다. 따라서 냉각속도는 부가체의 순도 및 회수율을 결정하는 중요한 변수로 작용한다.

Fig. 4는 냉각속도의 변화에 따른 부가체 중의 pseudocumene 순도와 pseudocumene의 회수율을 나타낸 것이다. 냉각속도가 증가할수록 부가체 순도는 감소하고 회수율은 $0.23^\circ\text{C}/\text{min}$ 이상에서 급격히 증가함을 알 수 있다. 냉각속도가 $0.23^\circ\text{C}/\text{min}$ 일 때까지 순도가 일정하고 회수율이 감소하는 현상은 냉각속도가 증가할수록 thiourea와 부가체에 대한 metastable 영역이 넓어져서, 즉 thiourea와 부가체가 형성될 수 있는 기전력이 크게 되므로 빠른 속도의 thiourea 결정 생성과 부가체 형성이 동시에 이루어지기 때문이다.

냉각속도가 $0.23^\circ\text{C}/\text{min}$ 이상에서 회수율이 증가하는 반면 순도가 감소하는 현상은 급냉각 조작에 따른 thiourea와 부가체 사이에 coagulation에 의한 모액침투 때문으로 보인다.

3-4. 다단부가결정화 조작

Table 2. Separation of C₉ aromatics by multistage adductive crystallization

Component	Feed	1 stage	2 stage	3 stage	4 stage
Cumene	0.4	0.22	0	0	0
n-Propylbenzene	0.5	0.83	0	0	0
m-Ethyltoluene	11.9	1.04	0	0	0
p-Ethyltoluene	2.3	0.81	0.05	0	0
Mesitylene	1.6	0	0	0	0
o-Ethyltoluene	20.0	0.91	0	0	0
Pseudocumene	51.7	89.50	96.7	98.7	99.7
Hemimellitene	5.9	6.34	3.24	1.3	0.3
Indane	1.1	0.22	0	0	0

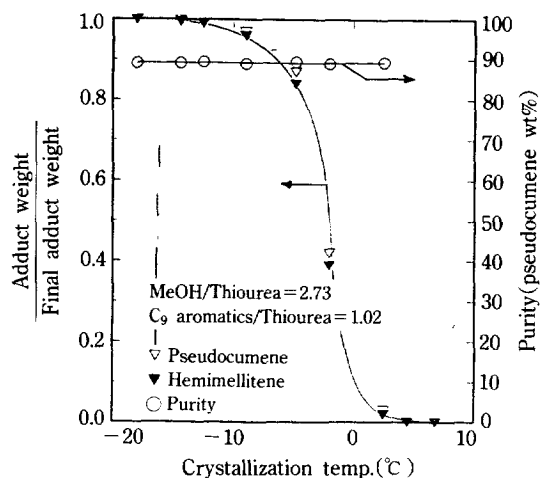
Table 2는 앞절에서 얻어진 최적분리 조건에서 다단 부가결정화에 의해 얻어진 부가체의 조성을 나타낸 것이다. 4단의 부가결정화 조작에 의하여 99.7 wt%의 순도의 pseudocumene이 C₉ 방향족 혼합물로부터 분리될 수 있음을 알 수 있다. 부가체에서 C₉ 방향족 혼합물 중의 hemimellitene만이 pseudocumene의 최종 불순물로 작용하였으며, 나머지 화합물은 포접됨이 없이 diluent로 작용되었다.

일반적으로 thiourea 부가체 형성의 선택도는 분자 모델에 의한 분자 크기 및 구조에 가장 많이 의존한다고 보고되고 있다[1].

본 연구에서 방향족 이성체인 pseudocumene, hemimellitene 및 mesitylene에 대한 thiourea의 부가경향은 pseudocumene > hemimellitene >> mesitylene 순이었으며 혼합물 상태에서 mesitylene의 부가는 전혀 이루어지지 않았다. 따라서 thiourea 부가체의 선택도는 분자 크기 외에도 thiourea와 guest간의 van der Waals 힘, 수소결합 등의 factor가 중요한 영향을 미치는 것으로 보여진다.

3-5. 결정화 온도의 영향

C₉ 방향족 혼합물에서 thiourea에 부가되는 물질은 pseudocumene과 hemimellitene이었다. Fig. 5는 thiourea에 포획되는 pseudocumene과 hemimellitene 양을 -25°C 에서 포획된 양으로 normalization하여 각 온도에 따라 나타낸 것이다. 3°C 이상에서는 부가체의 형성이 없었으며, -12.2°C 이하에서는 부가되는 양의 변화가 거의 없었다. 원료 속의 pseudocumene에 대한 부가체에서의 회수율은 -1.2°C 에서 18.4 wt%로부터 -12.2°C 에서 45.4%로 증가하였으며, 부가되는 경향은 온도감소에 따라 역 S자 형태로 증가됨을 알 수 있다. 부가체에서 pseudocumene 순도는 실험된 온도 구간에서 일정하였다. 따라서 C₉ 방향족 혼합물과 thiourea의 부


Fig. 5. Normalization of adduction weight in various crystallization temperature.

가체가 형성될 수 있는 최소온도는 3°C이며 최적 조업 온도는 -12.2°C 이하이다. 이 결과를 검증하기 위하여 온도에 따라 형성된 부가체의 입자형성과 입자표면을 Fig. 6에 나타내었다. 결정은 온도의 감소에 따라 침상 형태로 입자크기가 성장하고 있으며, 결정의 표면은 부가체가 형성되지 않고 3°C 이상에서는 평평한 형태로 보이고 있지만 부가체가 형성하는 3°C 이하에서는 inclusion에 의해 입자가 누적되는 현상을 볼 수 있다.

3-6. 이성분계 분리

다단 부가결정화에 의한 분리 결정화로부터 thiourea에 부가되는 pseudocumene의 최종 불순물은 hemimellitene이었다. 따라서 부가결정화에 의하여 C₉ 방향족 혼합물의 효과적인 분리를 위해서는 이 이성분계에 대한 상세한 분리도의 자료가 제시되어야 할 것이다. 부가결정화에 의한 이성분계의 분리능력(separation capacity)은 식 (1)의 분리도(separation factor, α)와 식 (2)의 분리정도(extent of separation, ξ)으로 특성화될 수 있다[11].

$$\alpha = y_1(1-x_1)/x_1(1-y_1) \quad (1)$$

$$\xi = \text{abs} \left[\frac{1}{1+k_1} - \frac{1}{1+k_2} \right] \quad (2)$$

여기서 k_i 는 분배계수로써 다음과 같이 정의된다.

$$k_i = \left(\frac{R}{A} \right) \left(\frac{x_i}{y_i} \right) \quad (3)$$

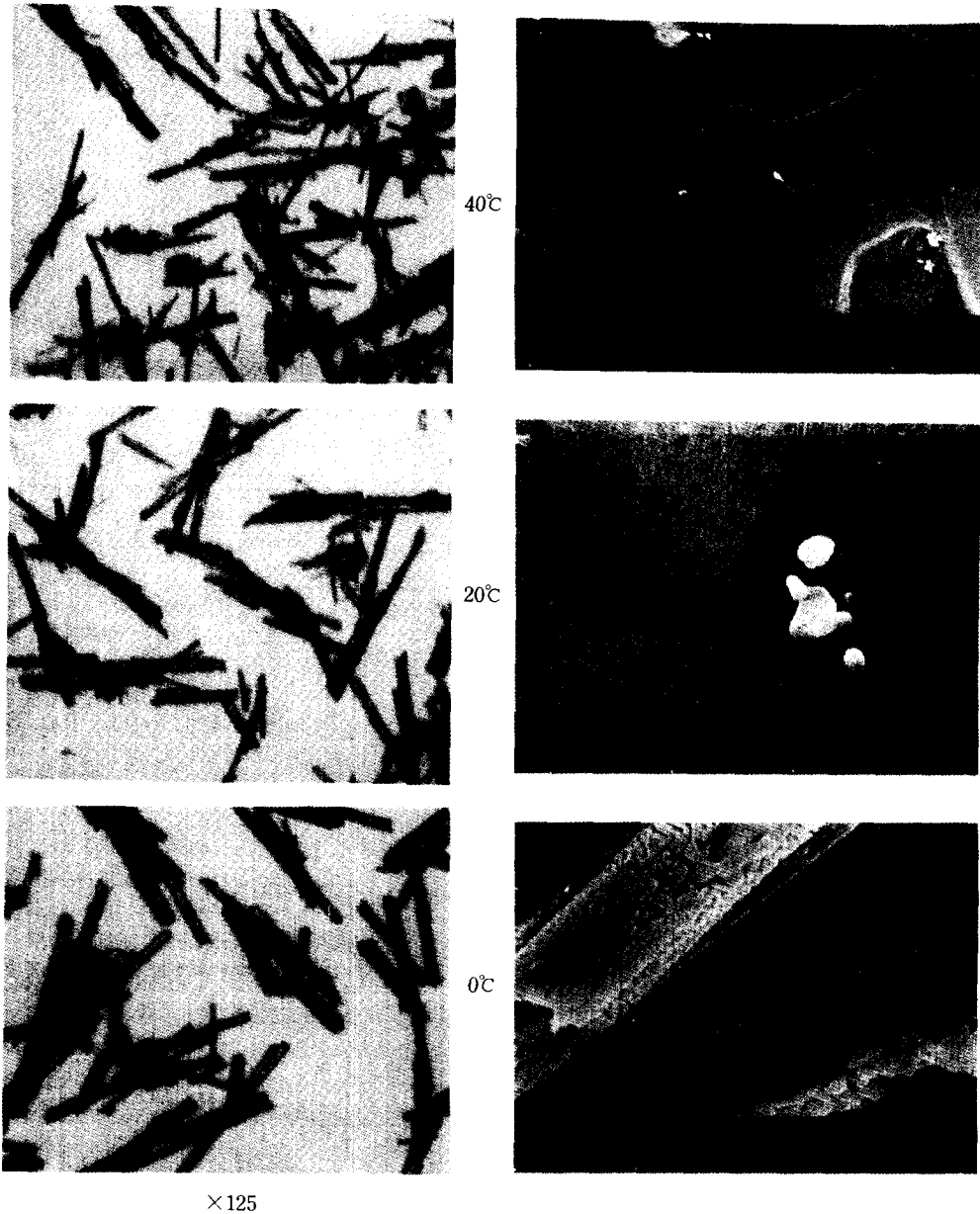


Fig. 6. Shape and surface of crystal.

또한 한 평형단에서 최대분리정도(maximum extent of separation)는 식 (4)와 같이 나타난다.

$$\xi_{m,x} = \frac{\alpha^{1/2} - 1}{\alpha^{1/2} + 1} \quad (4)$$

식 (3)의 (A/R)은 잔여액에 있는 탄화수소 물과 부가체에 포획된 탄화수소의 물비이다.

y_1 과 x_1 는 각각 부가체와 잔여액에서 제 1성분의 몰분율이다. 식 (1)의 α 는 증류의 상대휘발도와 유사하여 두 물질에 대한 분배계수의 상대적인 비로써 정성적인 분리도를 나타내며, 반면 식 (2)의 ξ 는 부가결정화에서 얻어지는 정량적인 분리정도를 나타내는 것으로써 0 (전혀 분리 안됨)에서 1(완전분리)의 범위 내에서 분리정도를 나타내는 index이다. Fig. 7은 본 실험에서

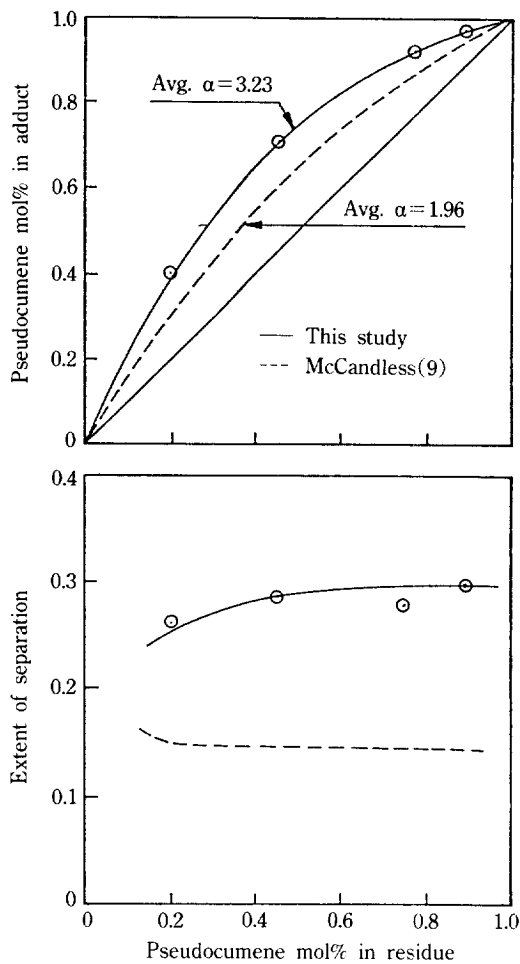


Fig. 7. Equilibrium and extent of separation for pseudocumene-hemimellitene mixture.

얻어진 pseudocumene-hemimellitene계에 대한 고액평형과 분리정도를 추출결정화의 실험결과[9]와 비교도시한 것이다. Table 3은 pseudocumene: hemimellitene 주입비가 60 : 40에서 Fig. 7의 결과를 정량적으로 요약한 것이다. 이 결과로부터 본 연구에서 얻어진 α 와 ξ 는 추출결정화의 결과보다 2배 정도 컸다. 한 부가단(one adduction stage)에서 포획된 pseudocumene과 hemimellitene은 thiourea 단위몰당 각각 5.1, 16.4 몰이었으며, 이는 추출결정화의 포획도보다 6배 정도 큼을 알 수 있다. 또한 본 연구에서 사용되는 부가결정화는 추출결정화에 비해 평형도달시간이 매우 짧음을 알 수 있다.

따라서 본 연구는 추출결정화에 비해 아주 향상된 분리효과를 가져왔다. 이는 냉각 방법의 개선 및 포화상태의 선정 조건에 따른 변수들의 최적분리조건의 획득에 기인한 것으로 판단된다. Table 4는 본 연구결과와 증류공정의 분리도와 비교한 것이다. 증류공정의 한 이상단에서 얻을 수 있는 최대 분리도는 증기압 자료 [12]와 식 (4)를 이용하여 얻었다. 이 Table에서 보듯이, 부가결정화의 분리도가 한 이론 증류단의 최적분리도에 비해 5-24배 정도 큼을 알 수 있다.

4. 결 론

Thiourea를 이용한 부가결정화에 의하여 납사 잔사유의 C₉ 방향족 혼합물로부터 pseudocumene을 분리하는 연구에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

- (1) C₉ 방향족 혼합물로부터 pseudocumene은 4 stage 부가결정화에 의해 99.7% 순도로 분리되었다.
- (2) 부가결정화에서 얻어진 분리정도는 증류에 비해 5-24배 정도 컸다.

Table 3. Comparison of separation capacity between adductive crystallization and extractive crystallization

Authors	Method	Time to equilibrium	Yield (wt%)	Adduct capacity(Molal ratio)		α	ξ
				Thiourea	Hemimellitene		
McCandless	Extractive crystallization	>24 hrs	42.1	31.9	68.1	1.96	0.15
This study	Adductive crystallization	<1 min.	48.5	5.1	16.4	3.23	0.29

Table 4. Comparison of adductive crystallization with distillation

System	α adduct	ξ adduct	α dist	ξ_{max} dist	$\frac{\xi \text{ adduct}}{\xi \text{ dist}}$
Pseudocumene-hemimellitene	3.2	0.29	1.24	0.054	5.34
Pseudocumene-mesitylene	980	0.79	1.14	0.033	23.90

(3) 부가결정화에서 얻어진 thiourea포획도는 추출 결정화보다 6배 정도 컸다.

(4) C₉ 방향족 혼합물이 thiourea에 부가되는 온도는 32-12.4°C 이었다.

(5) 용매비, 투입비, 결정화 온도 및 냉각속도에 대한 최적분리조건은 각각 2.73, 1.02, -12.4°C 및 0.23°C/min이었다.

사용기호

A	: aromatic amount trapped in the adduct
k _i	: distribution ratio for component i
R	: aromatic amount left in the residue
x	: mole fraction in residue
y	: mole fraction in adduct
α	: separation factor
ξ	: extent of separation
ξ _{max}	: maximum extent of separation for one equilibrium stage

참고문헌

1. Fetterly, L. C.: "Non-Stoichiometric Compounds",

- Mandelcorn, Ed., Academic Press, New York(1964).
- Hoppe, A.: "Advances in Petroleum Chemistry and Refining", Vol. VIII, Interscience, New York(1964).
- Kirk, R. E. and Othmer, D. F., Ed.: "Encyclopedia of Chemical Technology", Suppl. 2, The Interscience Encyclopedia, Inc. New York, N. Y.(1960).
- Kobe, K. A. and Domask, W. G.: Pet. Refiner, Mar., 106(1952).
- Love, R. M. and Pfenning, R. F.: Adv. Chem. Ser., No. 5(1951).
- McCandless, F. P.: Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev., 10(4), 406(1971).
- McCandless, F. P. et al.: *ibid.*, 11(4), 463(1972).
- McCandless, F. P., Cline, R. E. and Cloninger, M. O.: *ibid.*, 13(3), 214(1974).
- McCandless, F. P.: *ibid.*, 21(3), 483(1982).
- Redlich, O., Gable, C. M., Dunlop, A. K. and Millar, R. W.: JACS, 72, 4153(1950).
- Rony, P. R.: Sep. Sci., 3, 239(1968).
- Weast, R. C., Ed.: "Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press, Cleveland, Ohio(1989).