

## Fick Sistemini Kullanarak Dört Bileşenli Su-Gaz Değişim Reaksiyonunun Difüzyon Katsayılarının Teoriksel İncelenmesi

MURAT ÖZTÜRK<sup>1</sup>, İBRAHİM ÜÇGÜL<sup>1</sup>, NURİ ÖZEK<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Süleyman Demirel Üniversitesi, Yenilenebilir Enerji Kaynakları Araştırma ve Uygulama Merkezi / ISPARTA

<sup>2</sup>Süleyman Demirel Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, / ISPARTA

Alınış Tarihi: 21.12.2006, Kabul: 23.05.2007

**Özet:** Bu çalışmada; izotermik koşulu sağlanmış, ideal boru reaktörde, ekzoterm, heterojen katalitik bir gaz reaksiyonu olan ( $\text{CO}+\text{H}_2\text{O}\rightarrow\text{CO}_2+\text{H}_2$ ) su-gaz değişim reaksiyonu model olarak alınarak dört bileşenli gaz difüzyonu incelenmiştir.  $T=523\text{ }^\circ\text{K}$  ve  $623\text{ }^\circ\text{K}$ 'de dört bileşene ait on iki adet poliner difüzyon katsayısı Fick sistemi için elde edilmiştir. Teoriksel olarak hesaplanan poliner difüzyon katsayıları CO mol sayısının ( $x_1$ ) değişim miktarına bağlı olarak diyagramlar halinde sunulmuştur. Bu diyagramlardan altı tanesinin karbonmonoksit mol sayısı azalınca arttığı, diğer altı tanesinin ise azaldığı görülmüştür. Ayrıca, artan reaksiyon sıcaklığı ile beraber difüzyon katsayılarının değerlerinde artış olduğu tespit edilmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** su-gaz değişim reaksiyonu, Fick sistemi, poliner difüzyon katsayısı, boru reaktör.

## Theoretical Investigation of Water-Gas Shift Reaction with Four Components Using Fick System

**Abstract:** In this study, in an isothermal conditioned, ideal tube reactor by taking ( $\text{CO}+\text{H}_2\text{O}\rightarrow\text{CO}_2+\text{H}_2$ ) water-gas shift reaction as the model, four-components gas diffusion is studied. At the temperature of  $T=523\text{ }^\circ\text{K}$  and  $623\text{ }^\circ\text{K}$ , twelve polynary diffusion coefficient belonging to the four-components are obtained for Fick system. The polynary diffusion coefficients which are calculated theoretical are presented in diagrams, which are depended on changing of mole numbers of carbon monoxide. As seen in these diagrams, six of the twelve diffusion coefficients increase and the rest of them decrease if the carbon monoxide mole numbers are decreased. In addition, it was been determining that diffusion coefficients are increased with increasing reaction temperature.

**Keywords:** Water-gas shift reaction, Fick system, polynary diffusion coefficients, tube reactor.

### Giriş

Birincil enerji kaynakları olarak kullandığımız yakıtlar (kömür, doğal gaz, petrol) global iklim değişikliği, çevresel bozuma ve sağlık problemlerine neden olduğu sürece enerji çok önemli global önem taşıyacaktır (Bocris, 2002). Hidrojen temiz yenilenebilir enerji taşıyıcısı olarak büyük bir potansiyel sergilemektedir. Hidrojen bilinen yakıtlar arasından en yüksek gravimetrik enerji yoğunluğuna sahiptir. Ayrıca çevresel kirlilik ve iklimsel değişime neden olan karbon esaslı emisyonuz enerji dönüşümü için yakıt pilleri ile birleştirilebilir. Literatürde pek çok hidrojen üretim metotları mevcuttur (Veziroğlu ve Barbir, 1998; Das ve Veziroğlu, 2001; Hugh, 2005). Hidrojen üretim metotlarından en yaygın olarak kullanılanları; buhar-metan reformu, metanın kısmi oksidasyonu, metanın oto-termal reformu, kömür gazlaştırma, direkt biyokütle gazlaştırma, biyokütle pirolizi, elektroliz, biyosentetik/fotobiyolojiksel ve fotokatalitiksel su parçalama sayılabilir. Bu hidrojen üretim yöntemlerinden buhar-metan reformu, metanın kısmi oksidasyonu, kömür gazlaştırma, direkt biyokütle gazlaştırma ve piroliz dünya hidrojen üretiminin % 99'unu oluşturmakta olup bu hidrojen üretim yöntemlerinde hidrojenin ( $\text{H}_2$ ) yanı sıra zehirli bir gaz olan karbonmonoksit (CO) üretilmektedir. Ortaya çıkan buhar ikinci bir adım olan aşağıdaki su gaz değişim reaksiyonuyla uygun katalizör kullanarak tekrar tepkimeye sokulur.



CO giderme,  $\text{H}_2$  üretimi, kömürün hidrojenlenmesi ve benzeri pek çok endüstriyel proseste önemli bir adım olan su-gaz değişim reaksiyonu ekzotermik, heterojen katalitik bir reaksiyondur. Modern üretim proseslerinin %90'nını katalitik reaksiyonlar oluşturmaktadır. Bu reaksiyonda su buharı ile CO'nun bir katalizör yardımıyla reaksiyona girmesi sonucu  $\text{CO}_2$  ve  $\text{H}_2$  gazları üretilir. Şu anda endüstriyel amaçlı olarak pek çok alanda kullanılan  $\text{H}_2$ 'nin, gelecek yıllarda yakıt olarak kullanımı son derece yaygınlaşacak ve buna paralel olarak  $\text{H}_2$ 'ye duyulan talep şiddetle artacaktır (Üçgül, 1995).

Aynı zamanda su-gaz değişim reaksiyonunda reaksiyona giren ürünler içinde karbonmonoksit bulunduğu için atmosferin zehrini gidermede de kullanılmaktadır (Newsome, 1980). Difüzyon şayet kapalı, hidrodinamik bakımından hareketsiz bir ortamda oluyorsa böyle sistemlere süresiz sistem veya Fick sistemi denilmektedir. Böyle bir sistemde, difüzyon molar akımlarla, konsantrasyonlar ise mol yüzdesiyle belirlenmektedir. Heterojen katalitik reaksiyonlar, genellikle katı katalizör yüzeyinde meydana gelen reaksiyonlardır. Katalizörler, reaktanların potansiyel enerji engelini azaltır, enerjideki bu azalma aktiflenme enerjisinin azalması demektir. Böylece katalizörler aktiflenme enerjisini düşürerek, tepkime verici molekül

sayısını arttırmalar ve reaksiyonu hızlandırırlar. Termodinamik ve kinetik şartlara bağlı olarak su-gaz değişim reaksiyonunu yüksek (593-723 °K) ve düşük (473-723 °K) sıcaklık uygulamaları mevcuttur (Nanping vd., 2005). Yüksek sıcaklık değişim reaksiyonunda Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CrO<sub>3</sub> katalizörleri kullanılırken, düşük sıcaklık dönüşüm reaksiyonunda genellikle CuO/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katalizörleri kullanılır.

Pao Chih-Ch'uan (1990)'a göre ikili çözeltilerde moleküler difüzyon katsayılarını sunmuş, moleküler difüzyonun aktif akımlarını belirlemiştir. Üçgül ve Telli (1993) üç bileşenli gaz difüzyonunu Fick sistemi içinde incelemiştir. Bu çalışmada ise dört bileşenli su-gaz değişim reaksiyonu difüzyon kinetiği yönünden incelenmiş, daha sonraki çalışmalara referans teşkil edecek olan polimer difüzyon katsayıları düşük sıcaklıklı su-gaz değişim reaksiyonu için kolay bir yöntemle teoriksel olarak elde edilmesi sunulmuştur. Yapılan teoriksel çalışmada karşılaştırma amaçlı alınan iki sıcaklık noktası 523 °K ve 623 °K olarak alınmıştır. Sıcaklıkların bu değerlerde alınmasının iki nedeni vardır. Birincisi reaksiyonun reaksiyonun düşük sıcaklık uygulamasında seçilmesi, ikincisi ileride yapılacak olan güneş enerjisi destekli deneysel uygulamalarda bu sıcaklıklara ulaşmanın daha kolay olmasıdır.

## Su-Gaz Değişim Reaksiyonunun Hızı

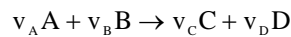
Reaksiyon hızı genellikle reaksiyon hız sabiti ve reaksiyona giren gazların konsantrasyonları cinsinden ifade edilir. Reaksiyon hızı, zamanla azaldığından reaktanlar için negatif, ürünler için ise zamanla arttığından pozitifdir. Heterojen reaksiyonlar için reaksiyon hızını,

$$r = k \prod P_i^{n_i} \quad (2)$$

şeklinde belirlemek yeterlidir (Telli, 1988). Bu ifade hız denklemidir. Burada n<sub>i</sub>, i bileşenin mertebesini göstermektedir. Reaksiyon mertebesi ise, reaksiyona giren maddelerin, hız denklemlerinde yer alan konsantrasyonlarının üslerinin toplamı olarak aşağıdaki gibi tanımlanır.

$$n = \sum_{i=1}^N n_i \quad (3)$$

Reaksiyon hızı (r) reaksiyona katılan bileşenlere bağımlı olmaksızın belirlenir ve



şeklindeki bir reaksiyon için,

$$r = \frac{r_A}{v_A} = \frac{r_B}{v_B} = \frac{r_C}{v_C} = \frac{r_D}{v_D}$$

bağıntısı yazılabilir (Telli, 1988). Kataliz olayı reaksiyona girecek reaktanlardan en az birinin katalizör yüzeyinde adsorblanması ile yürümektedir. İki tür adsorbsiyondan

söz edilebilir. Bunlar, düşük sıcaklıkta olan fiziksel adsorbsiyon ile daha yüksek sıcaklıklarda görülen kemisorpsiyondur. Fakat, katalitik reaksiyonlardaki adsorbsiyon genellikle kemisorpsiyondur.

Heterojen katalitik reaksiyon iki aşamada gerçekleşmektedir. Öncelikle gaz halindeki reaktanlar, ortamdaki katalizör üzerine difüzenmekte ve ardından katalitik aktif bölgelere adsorplanmaktadır. Katalitik aktiflik e<sup>-</sup> geçişi ile ilgilidir. Adsorplanmış moleküler reaksiyona girecek kadar enerjiye sahip olduğunda, reaksiyon oluşmakta ve ürünler elde edilmektedir. İkinci aşamada reaksiyon ürünleri, katalizörden desorplanarak yüzeyi terk etmekte ve yeniden ortama difüzenmektedir. Teknik pratikte, heterojen katalitik reaksiyonlar, katalizör dolgu reaktörlerde gerçekleştirilmektedirler.

## Fick Sisteminde Difüzyon Kinetiği

Model olarak alınan iç cidarı katalitik boru reaktörde reaktanlar izoterm olarak reaksiyona uğramaktadır. Ekzotermik reaksiyonun cidarda verdiği ısı boru dışına transfer edilerek reaktör içine giriş sıcaklığı sabit kılınmaktadır. Reaksiyon kinetiksel büyüklüklerinin tayininde, boru reaktörde izoterm koşulun sağlanması tercih edilir. Bu şekilde aktivasyon enerjisi elimine edilerek matematiksel tanım basitleştirilebilir.

Difüzyon, fiziksel bir iletme potansiyelinin etkisi altında, tek bir bileşenin karışım içindeki moleküler hareketidir. Difüzyon her fazda görülebilen yayılma olayı olmakla birlikte daha ziyade gaz karışımları için önem taşımaktadır. İletme potansiyeli; sıcaklık, basınç veya konsantrasyon farkından kaynaklanır. Sıcaklık farkından dolayı oluşan difüzyona "termodifüzyon", basınç farkından dolayı oluşan difüzyona "basınç difüzyonu" ve konsantrasyon farkından dolayı oluşan difüzyona da "moleküler difüzyon" denir (Üçgül, 2003). Moleküler difüzyonda bileşen, yüksek konsantrasyon bölgesinden düşük konsantrasyon bölgesine doğru aradaki farkı kapatmak üzere hareket eder. Difüzyon olayı konsantrasyonlar eşit olunca sona erer.

Burada konsantrasyon farkından dolayı oluşan difüzyon incelenmiştir. Gaz karışımının olduğu ortamda iki adet bileşen varsa, ortamdaki difüzyona biner difüzyon, üç bileşen varsa terner difüzyon, bileşen sayısı üçden fazla ise polimer difüzyon adı verilir. Literatürde difüzyon olayı, Fick ve barisantrik olmak üzere iki ayrı sistem üzerinden incelenmektedir. Dinamik bakımından hareketsiz bir ortamdaki difüzyona Fick sisteminde difüzyon; hareketli ve akış halindeki bir ortamda olan difüzyona ise barisantrik sistemde difüzyon denir (Üçgül, 1995). Akış hızının radyal yöndeki bileşeni olan V<sub>radyal</sub> hızının sıfır olması durumunda, hareketli bir ortamdaki difüzyonu incelemek için Fick kütle transfer denklemleri geçerli olmaktadır.

Radyal hız genel olarak, kimyasal reaksiyon sonucu değişen mol miktarlarından, radyal koordinat boyunca dinamik viskozitedeki değişimlerden ve gelişmemiş akış durumunda, radyal koordinat boyunca meydana gelen hız profil değişimleri ile ortaya çıkmaktadır. Böylece radyal

hız, mol değişiminden kaynaklanan hız bileşeni  $V_\rho$ ; dinamik viskozite değişimlerinden kaynaklanan hız bileşeni  $V_\eta$  ve akışın gelişmemiş olmasından kaynaklanan hız bileşeni  $V_g$  nin toplamı olarak,  
 $V = V_\rho + V_\eta + V_g$

şeklinde ifade edilmektedir. Reaktanlar reaktöre alınmadan önce, uzun bir boru olan birinci bölümde ön ısıtmaya tabii tutuldukları için reaktör girişinde tamamen gelişmiş akım şartlarına ulaşılır. Bundan dolayı gelişmemiş akımlardan kaynaklanan  $V_g$  hızı yaklaşık olarak sıfır olmaktadır. Model reaksiyonumuz equimolar bir reaksiyondur. Bunun sonucu olarak, reaktör içinde mol değişimi olmadığından  $V_\rho=0$  olmaktadır. Reaktör girişindeki ve çıkışındaki dinamik viskoziteler eşit olduğundan yaklaşık olarak  $V_\eta=0$  olur. Sonuç olarak da bunların toplamı olan radyal hız,  $V=0$  olmaktadır. Bu kabul edilen şartlarda reaktör içindeki difüzyon olayını belirlemek için Fick sistemi denklemleri kullanılabilir. İlk defa Fick tarafından tanımlanmış olan difüzyon mol akımı, tersinmez işlemler termodinamiğine göre fenomenolojik olarak (Telli, 1988),

$$J_i = c \sum_{j=1}^N D_{ij,F} \frac{dx_j}{dr} \quad (4)$$

şeklinde belirlenmiştir. Burada  $c$  mol yoğunluğu,  $D_{ij,F}$  Fick sistemine ait poliner difüzyon katsayıları,  $dx_j/dx_r$   $j$  bileşenine ait konsantrasyon gradyanıdır. Difüzyon katsayıları için  $D_{ij}=D_{ji}$  eşitliği her zaman geçerlidir. Ayrıca difüzyon teorisinde aynı bileşenin kendine difüzyon katsayısı  $D_{ii}=0$  olmaktadır.

## Poliner Difüzyon Katsayısının Belirlenmesi

$$\begin{aligned} L_{12} &= x_2(MW_2x_2 + MW_1x_1)/MW_1\bar{D}_{12} + x_3(MW_2x_2)/MW_1\bar{D}_{13} + x_4(MW_2x_2)/MW_1\bar{D}_{14} \\ L_{13} &= x_2(MW_3x_3)/MW_1\bar{D}_{12} + x_3(MW_3x_3 + MW_1x_1)/MW_1\bar{D}_{13} + x_4(MW_3x_3)/MW_1\bar{D}_{14} \\ L_{14} &= x_2(MW_4x_4)/MW_1\bar{D}_{12} + x_3(MW_4x_4)/MW_1\bar{D}_{13} + x_4(MW_4x_4 + MW_1x_1)/MW_1\bar{D}_{14} \\ L_{21} &= x_1(MW_1x_1 + MW_2x_2)/MW_2\bar{D}_{21} + x_3(MW_1x_1)/MW_2\bar{D}_{23} + x_4(MW_1x_1)/MW_2\bar{D}_{24} \\ L_{23} &= x_1(MW_3x_3)/MW_2\bar{D}_{21} + x_3(MW_3x_3 + MW_2x_2)/MW_2\bar{D}_{23} + x_4(MW_3x_3)/MW_2\bar{D}_{24} \\ L_{24} &= x_1(MW_4x_4)/MW_2\bar{D}_{21} + x_3(MW_4x_4)/MW_2\bar{D}_{23} + x_4(MW_4x_4 + MW_2x_2)/MW_2\bar{D}_{24} \\ L_{31} &= x_1(MW_1x_1 + MW_3x_3)/MW_3\bar{D}_{31} + x_2(MW_1x_1)/MW_3\bar{D}_{32} + x_4(MW_1x_1)/MW_3\bar{D}_{34} \\ L_{32} &= x_1(MW_2x_2)/MW_3\bar{D}_{31} + x_2(MW_2x_2 + MW_3x_3)/MW_3\bar{D}_{32} + x_4(MW_2x_2)/MW_3\bar{D}_{34} \\ L_{34} &= x_1(MW_4x_4)/MW_3\bar{D}_{31} + x_2(MW_4x_4)/MW_3\bar{D}_{32} + x_4(MW_4x_4 + MW_3x_3)/MW_3\bar{D}_{34} \\ L_{41} &= x_1(MW_1x_1 + MW_4x_4)/MW_4\bar{D}_{41} + x_2(MW_1x_1)/MW_4\bar{D}_{42} + x_3(MW_1x_1)/MW_4\bar{D}_{43} \\ L_{42} &= x_1(MW_2x_2)/MW_4\bar{D}_{41} + x_2(MW_2x_2 + MW_4x_4)/MW_4\bar{D}_{42} + x_3(MW_2x_2)/MW_4\bar{D}_{43} \\ L_{43} &= x_1(MW_3x_3)/MW_4\bar{D}_{41} + x_2(MW_3x_3)/MW_4\bar{D}_{42} + x_3(MW_3x_3 + MW_4x_4)/MW_4\bar{D}_{43} \end{aligned}$$

Literatürde (Telli, 1988), biner difüzyon katsayısı için,

$$\bar{D}_{ij} = \bar{D}_{ij,T_0} \left( \frac{T}{T_0} \right)^n \quad (7)$$

Literatürde (Telli, 1988; Turns, 2000), üç bileşenli reaksiyonlar için poliner difüzyon katsayılarının ( $D_{ij}$ ) hesapları yapılmıştır. Bu çalışmada ise dört bileşenli su-gaz değişim reaksiyonu poliner difüzyon katsayılarının hesaplaması verilmiştir. Poliner difüzyon katsayıları,

$$D_{ij} = x_i \frac{MW_{karisim}}{MW_j} (F_{ij} - F_{ii}) \quad (5)$$

şeklinde verilmektedir (Turns, 2000). Burada,  $D_{ij}$  poliner difüzyon katsayısı,  $x_i$   $i$  bileşeninin mol oranı ( $x_i=n_i/n_i$ ),  $MW_{karisim}$  karışımın kütlesi,  $MW_j$   $j$  bileşeninin kütlesi,  $F_{ij}$  ve  $F_{ii}$   $[F_{ij}]$  matrisinin elemanlarıdır.  $[F_{ij}]$  matrisi  $[L_{ij}]$  matrisinin tersidir.  $[F_{ij}] = [L_{ij}]^{-1}$ .  $[L_{ij}]$  matrisinin elemanları,

$$[L_{ij}] = \sum_{k=1}^K \frac{x_k}{MW_i \bar{D}_{ik}} [MW_j x_j (1 - \delta_{ik}) - MW_i x_i (\delta_{ij} - \delta_{jk})] \quad (6)$$

ifadesinden bulunur. Burada  $\delta_{mn}$  Kronecker delta fonksiyonudur.  $m=n$  olduğunda bir değerini alır, aksi durumlarda sıfıra eşittir. Ayrıca  $L_{ii}=L_{jj}=0$  alınır.

$$[L_{ij}] = \begin{bmatrix} L_{11} & L_{12} & L_{13} & L_{14} \\ L_{21} & L_{22} & L_{23} & L_{24} \\ L_{31} & L_{32} & L_{33} & L_{34} \\ L_{41} & L_{42} & L_{43} & L_{44} \end{bmatrix}$$

$L_{ij}$  matrisinin elemanları Denklem (6) kullanılarak hesaplanmış ve aşağıda verilmiştir.

ifadesi verilmektedir.  $CO+H_2O \rightarrow CO_2+H_2$  su-gaz değişim reaksiyonu için  $\bar{D}_{ij,T_0}$  ve  $n$  değerleri literatürden (Öztürk, 2005), yararlanarak  $\bar{D}_{ij}$ 'nin sıcaklığa bağlı olarak değişim fonksiyonları aşağıdaki gibi verilmiştir.

$$\bar{D}_{12} = 0,221 \left( \frac{T}{273,15} \right)^{1,75}$$

$$\bar{D}_{23} = 0,159 \left( \frac{T}{273,15} \right)^{1,82}$$

$$\bar{D}_{13} = 0,135 \left( \frac{T}{273,15} \right)^{1,72}$$

$$\bar{D}_{24} = 0,812 \left( \frac{T}{273,15} \right)^{1,70}$$

$$\bar{D}_{14} = 0,660 \left( \frac{T}{273,15} \right)^{1,66}$$

$$\bar{D}_{34} = 0,563 \left( \frac{T}{273,15} \right)^{1,68}$$

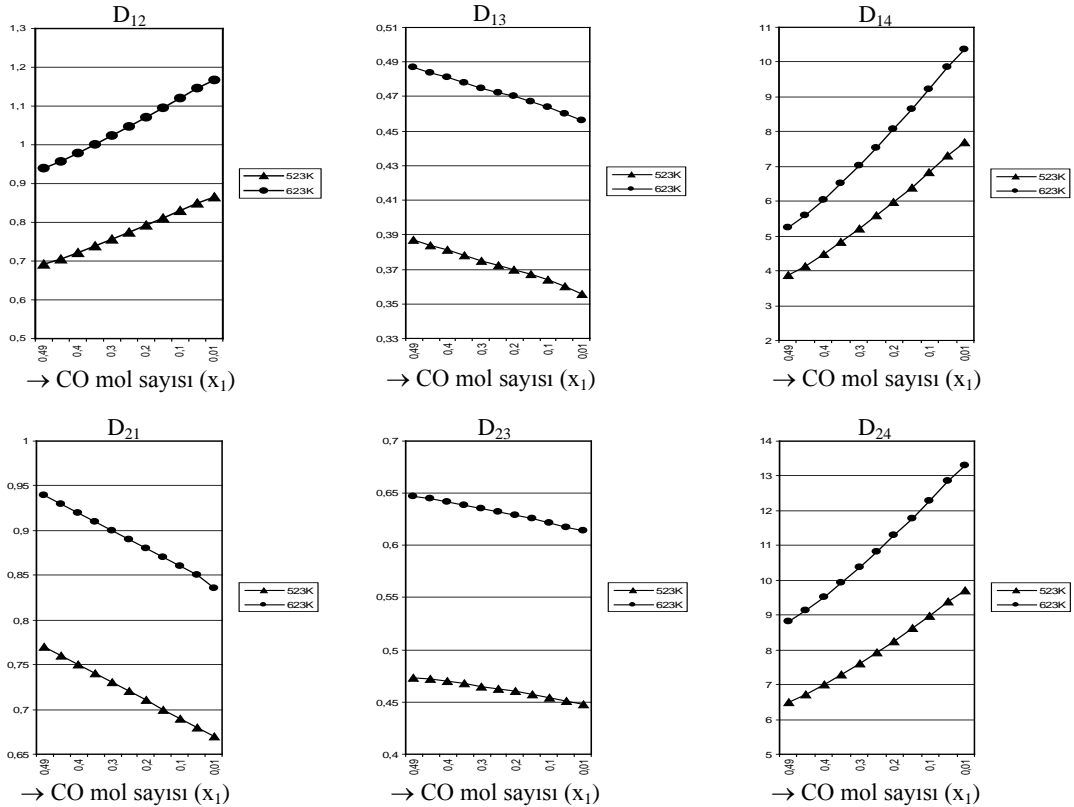
Elde edilen 12 poliner difüzyon katsayısının sayısal değerleri 523 °K ve 623 °K'de ve değişen CO mol sayılarına bağlı olarak hesaplanmış ve Şekil 1'de verilmiştir.

## Sonuçlar

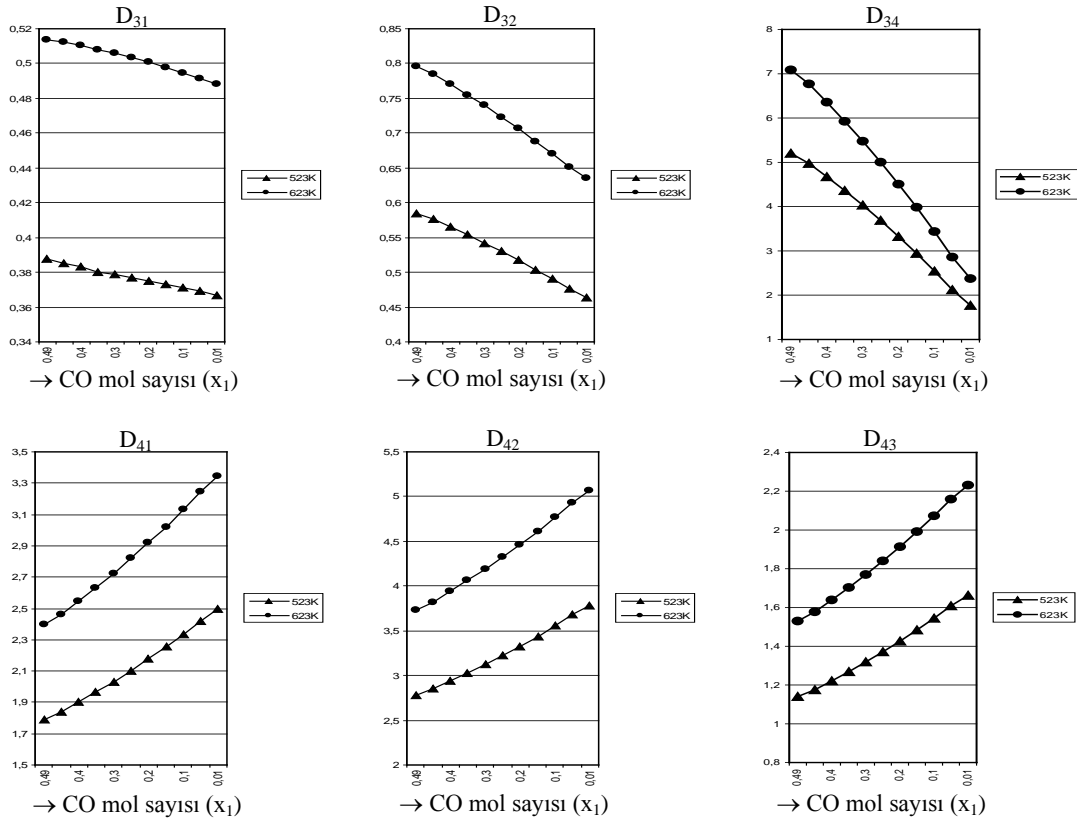
Boru reaktör içindeki model reaksiyonda 2 mol reaktan harcanmakta ve 2 mol reaksiyon ürünü elde edilmektedir.

Model reaksiyon equimolar reaksiyon olduğundan akış hızı reaksiyondan etkilenmemektedir. Sunulan çalışmada amaç, model olarak seçilen  $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$  su-gaz değişim reaksiyonundaki gaz reaksiyonunu belirlemek olduğundan dolayı model reaksiyona ait 12 adet difüzyon katsayılarının hesabı yapılmıştır. Şekil 1'de gösterilen 12 poliner difüzyon katsayısı mol kütlelerine, mol konsantrasyonlarına ve biner difüzyon katsayılarına bağlıdır. Boru içindeki reaksiyon sırasında mol kütleleri büyük olan reaktanların harcandığı, mol kütlesi küçük olan hidrojen ve mol kütlesi çok büyük olan karbondioksit ortaya çıktığı, dolayısıyla 6 poliner difüzyon katsayısı için difüzyonda iyileşme ve diğer 6 tanesinde ise kötüleşme ortaya çıktığı belirlenmiştir. Ayrıca Şekil 1'de belirtildiği gibi reaksiyon sıcaklığı 523 °K'den 623 °K'ne arttığı zaman poliner difüzyon katsayılarının değerleri üzerinde olumlu etki yaparak arttırmaktadır.

Bu çalışmada elde edilen Fick sistemindeki dört bileşenli su-gaz değişim reaksiyonu poliner difüzyon katsayılarının artan sıcaklıkla birlikte artması, mühendislik uygulamalarında karşılaşılan reaktör ısınma etkisinin önemini değerlendirmek için bir kriter olarak kullanılabilir.



Şekil 1. Poliner difüzyon katsayılarının CO mol sayısı (x<sub>1</sub>) ile değişimi.



Şekil 1. Poliner difüzyon katsayılarının CO mol sayısı ( $x_1$ ) ile değişimi. (Devam)

## Kaynaklar

- Bockris, J.M. 2002. The Origin of Ideas on a Hydrogen Economy and Its Solution to The Decay of The Environment. *Int J Hydrogen Energy*, 27, 731-740.
- Chih-Ch'uan, P. 1990. Binary Molecular Diffusion Coefficient. Plenum Publishing Corporation, 89, 2320-2333.
- Das, D., Veziroğlu, T.N. 2001. Hydrogen Production by Biological Processes: A Survey of Literature. *Int J Hydrogen Energy*, 26, 13-28.
- Kathleen, M.C. 2005. Hydrogen Production Methods, MPR Associates Inc., 69 p.
- Nanping, H., Haitao, W., Yukou D., Ming, S. and Ping, Y. 2005. Ultrafine Ru and  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Particles Supported on MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Spinel for Water-Gas Shift Reaction. *Catalysis Communications*, 6, 491-496.
- Newsome, D.S. 1980. The Water-Gas Shift Reaction. *Catal. Rev. Sci. Eng.*, 21, 275-318.
- Öztürk, M. 2005. Güneş Enerjili Kimyasal Reaktörlerin İncelenmesi. Yüksek Lisans Tezi, Süleyman Demirel Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Isparta, 105 s.
- Telli, Z. K. 1988. Difüzyon ve Reaksiyon Kinetiği, Akdeniz Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yayın No 1, 85 s.
- Turns, S. R. 2000. An Intraduction to Combustion, McGraw-Hill, USA, 672 p.
- Üçgül, İ., Telli, Z. K. 1993. Süreksiz Sistemlerde Poliner Difüzyon. *Akdeniz Üniversitesi Isparta Müh. Fakültesi Makine Mühendisliği Bölüm Dergisi*, 7, 211-229.
- Üçgül, İ. 1995. Fick Sisteminde Dört Bileşenli Gaz Difüzyonunun Teorik İncelenmesi. Doktora Tezi, Yıldız Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul, 63 s.
- Üçgül, İ. 2003. Fick Sisteminde Dört Bileşenli Poliner Gaz Difüzyonunun Teorik İncelenmesi, ULIBTK'03, 14. Ulusal Isı Bilimi ve Tekniği Kongresi, 3-5 Eylül 2003, Isparta, 402-405.
- Veziroğlu, T.N., Barbir, F. 1998. Hydrogen Energy Technologies. *Emerging Technology Series*. 122 p.