

압력요동을 이용한 밀도가 다른 이성분 혼합입자계의 최소유동화속도 측정

장현태 · 홍성창* · 도동섭†

고려대학교 공과대학 화학공학과

*경기대학교 공과대학 환경공학과

(1994년 10월 4일 접수, 1995년 2월 23일 채택)

Measurement of the Minimum Fluidization Velocity of a Binary Mixture of Different Density Particle System Using Pressure Fluctuations

Hyun Tae Jang, Sung Chang Hong* and Dong Sup Doh†

**Dept. of Environ. Eng., Kyonggi Univ.*

Dept. of Chem. Eng., Korea Univ., Seoul 136-701, Korea

(Received 4 October 1994; accepted 23 February 1995)

요 약

내경 0.109 m의 유동층에서 밀도차가 있는 모래와 PMMA의 혼합계에 대한 압력요동의 표준편차와 유속간의 선형회귀분석을 이용한 최소유동화속도 측정법의 적용성을 조사하였다. 이성분계 혼합물의 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도를 flotsam의 분율과 입자크기에 따라 측정하고, 측정치를 타 연구자들의 이성분계식과 비교 검토하였다. 압력요동 표준편차 값의 선형회귀분석으로부터 최소유동화속도 결정에서 유속의 범위는 혼합도가 낮은 유속범위와 free bubbling 영역 이상을 제외한 범위값이어야 하며, 이 유속범위에서 측정위치는 혼합이 양호한 층 중앙이 가장 적절하다.

Abstract—The determination method of minimum fluidization velocity from the linear regression of standard deviation of pressure fluctuation according to air velocity was investigated with binary mixture of sand and PMMA in a 0.109 m I.D. fluidized bed. The experiments were performed with change of operating variables such as the fraction of flotsam and particle size, and the measured values of the minimum fluidization velocity were compared with those obtained by the other researchers. The air velocity for this method has limited from well mixed region to freely bubbling region in a fluidized bed. The optimal measuring height of pressure fluctuations seems to be at middle levels on the axis of a bed, where the solid is well mixed.

1. 서 론

유동화 장치는 고체입자를 다루는 다른 장치에 비하여 많은 장점을 가지고 있고, 반응기 내에서 고체가 액체와 같이 거동하기 때문에 연속 조업이 가능하며 물질전달 및 열전달의 우수성으로 인하여 화학반응기 뿐만이 아니라 물리적 조업에도 많이 이용되고 있다.

이러한 유동층의 조업에 있어서 유동화 여부와 유동층의 질을 가늠할 수 있는 최소유동화속도는 매우 중요한 인자이다. 최소유동화속도의 규명의 필요성은 유동층에서 발생하는 제반현상들은 최소유동화속도의 비 즉, U_{cf}/U_{mf} 로 나타내지고 층 내 수력학적 거동 또한 U_{mf} 에 비례하여 나타나게 되므로 최소유동화속도의 규명은 매우 중요하다. 현재까지 유동층에서 최소유동화속도에

관한 연구는 활발히 진행 중이며, 특히 균일입자계의 최소유동화속도는 많은 연구가 이루어져서 정량화된 수식 및 정확한 측정 방법[1-5]이 제시되고 있다. 그러나 실제로 대부분의 산업용 유동층의 경우 균일입자계가 아닌 밀도와 크기가 다른 이성분 이상의 다입자 혼합계의 유동층으로 존재한다. 따라서 이러한 다입자계 혼합물의 최소유동화속도의 규명에 대한 연구가 필요하며, 이러한 다입자계의 최소유동화속도에 관한 연구에 앞서서 밀도차가 존재하는 이성분계 유동층의 최소유동화속도의 규명 및 측정방법에 대한 연구가 필수적이다.

따라서 많은 연구자들에 의하여[6] 이성분계의 최소유동화속도에 관한 연구가 이루어지고 있다. 현재까지 최소유동화속도의 측정방법[7-11]으로 가장 널리 사용하는 것은 압력강하를 이용하는 법[7]이 사용되고 있으나 이 경우 균일 입자계에서도 넓은 영역에 걸쳐서 전이점이 존재하므로 정확한 측정이 어렵고 이성분계에서는 더 넓은 전이점이 존재하여 측정이 더욱 어렵다. 또한 기포가 발생하는 점을 측정하는 방법과 유속에 따른 열전달계수의 변화로부터 최소유동화속도를 측정하는 방법이 있다. 최근 Puncchar 등[4]은 압력요동의 표준편차와 유속과의 직선관계를 이용한 최소유동화속도의 측정방법을 제시하였고, 다른 연구자들[3, 12]은 이와 같은 방법의 최소유동화속도 측정값의 정확성이 뛰어나고 간단하며 층외부에서 층 내 상태를 알 수 있다고 발표하였다. 또한 차[12] 등은 밀도차가 없고 크기차가 있는 입자계의 jetsam rich system에도 적용이 가능하다고 발표하였다.

따라서 본 실험에서는 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도 측정방법이 밀도차가 있는 이성분계에 대한 확장 가능성을 타진하고자, 밀도차와 크기차가 있는 계에 대하여 최소유동화속도 측정값과 여러 연구자들에 의하여 제시한 식의 값과 비교 검토하고자 하였다.

2. 실험장치 및 방법

2-1. 실험장치

본 실험에 사용한 실험장치는 Fig. 1과 같으며, 유동층부, 측정부로 구성되어 있고, 15 hp의 공기압축기를 이용하여 유동층에 공기를 공급하였다. 유동층에 공기가 유입되기 전에 유입공기의 damping을 막기 위하여 정압기를 설치하였고, 유속은 유량계와 needle밸브를 이용하여 조절하였다. 유동층 기벽과 입자간의 정전기 현상을 줄이기 위하여 내경 0.109 m, 높이 1.1 m의 아크릴관에 원통형 stainless steel망을 충전시키고 물을 넣은 증습기를 설치하여 유입공기의 상대습도가 50%를 유

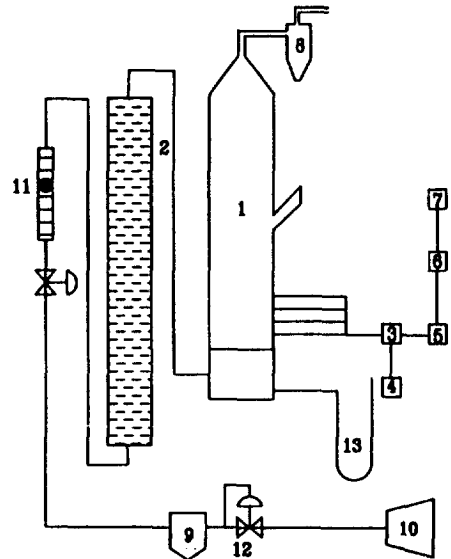


Fig. 1. Experimental apparatus and data processing system.

- | | |
|------------------------|----------------|
| 1. Fluidized bed | 8. Cyclone |
| 2. Humidifier | 9. Air filter |
| 3. Pressure transducer | 10. Compressor |
| 4. Power supplier | 11. Flowmeter |
| 5. Amplifier | 12. Regulator |
| 6. Personal computer | 13. Manometer |
| 7. Printer | |

지하도록 하였다. 유동층은 층 내 현상을 관찰할 수 있는 내경 0.109 m, 높이 1.8 m의 아크릴관으로 제작하였고, 기체분산판은 지름이 1 mm인 구멍이 345개 뚫린 개공비가 3%인 다공판을 사용하였다. 외벽에는 압력전달기 (pressure transducer, PT) probe의 측정위치를 변경할 수 있도록 외경 0.01 m, 길이 0.01 m 아크릴관을 사용하여 분산판으로부터 0.025 m 간격으로 4개의 측정관을 설치하였다.

측정부는 압력요동을 측정할 수 있는 압력전달기 (Valcom Co. LTD., model VPRN, 1 psi)와 측정된 압력요동 신호를 통계처리할 수 있는 computer부분으로 구성되어 있다. 압력전달기의 측정관을 유동층 내에 삽입하기 위하여 외경 4 mm, 내경 3 mm, 길이 0.4 m의 stainless steel관을 사용하였고, 유동층 내의 유동화 물질이 측정관으로 들어가는 것을 방지하기 위하여 측정관의 끝 부분을 400 mesh 망으로 봉하였다.

2-2. 실험방법

실험은 유동층 내의 L/D가 1인 상태에서 수행하였으며, 이 때 두 입자의 혼합비는 부피 비율로 혼합하였다.

L/D 가 1이 되도록 부피비로 두 시료를 각각 준비하여 무게를 측정하고, 유동층에 밀도가 상대적으로 작거나 크기가 상대적으로 작은 flotsam을 먼저 채운 후에 밀도와 크기가 상대적으로 큰 jetsam을 채운다. 층물질을 유동층에 채우고 정해진 유속에서 유동화시킨 후 압력 전달기를 이용하여 압력요동신호를 측정하였다. 측정이 끝난 후 유속을 변화시키고 정상상태에 도달한 후 다시 압력전달기를 이용하여 측정하였다. 이와 같은 방법으로 높은 유속에서 낮은 유속으로 점차 유속을 변경시켜가며 실험을 수행하였다. 압력요동특성실험은 jetsam으로 모래 715 μm 와 flotsam으로 PMMA(poly methyl metacrylate) 715 μm , 359 μm 를 사용하였고, jetsam으로 PMMA 1545 μm , flotsam으로 모래 715 μm 를 사용하여 두 입자의 부피비를 0.1에서 0.9로 변화시키며 유속에 따른 실험을 수행하였고, 실험조건은 Table 1에 나타나 있다.

또한 유동층에서 압력요동 신호의 측정 sampling time의 간격은 sample theorem을 이용하여 10 ms로 하였으며, sampling 갯수는 1024개로 하였다. 본 실험에서 분석에 사용한 압력요동의 통계적 처리는 아래와 같다. 압력요동의 표준편차 variance는 positive square root인 표준편차로 data signal의 intensity를 의미하며 식 (1)과 같이 표현된다[13].

$$\text{S.D.} = \left[\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T |X(t) - \mu_x|^2 dt \right]^{1/2} \quad (1)$$

$$\mu_x = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T X(t) dt \quad (2)$$

2-3. 시료

본 실험에 사용한 시료는 jetsam으로는 시멘트 몰탈 압축강도 시험용 모래인 주문진 표준사($\rho_p = 2620 \text{ kg/m}^3$)

Table 1. Experimental conditions

Operating variables	Operating conditions
Aspect ratio(L/D)	1
Gas velocity(m/sec)	0.107-0.857
Sand particle size(μm)	715
PMMA particle size(μm)	1545, 715, 359
PMMA volume fraction	0.1-0.9

Table 2. The properties of sample particles

	$\rho_p(\text{kg/m}^3)$	$d_p(\mu\text{m})$	$U_{mf}(\text{m/sec})$	ϵ_{mf}	ϕ
sand	2620	715	0.360	0.48	0.67
PMMA	1190	1545	0.445	0.51	0.49
PMMA	1190	715	0.262	0.59	0.53
PMMA	1190	359	0.100	0.66	0.47

가 사용되었고, flotsam으로는 PMMA($\rho_p = 1190 \text{ kg/m}^3$)가 사용되었다. 두 시료 모두 Geldart의 분류로 Group B에 속한다[14]. 시료의 특성치는 Table 2에 나타내었다.

3. 결 과

3-1. 압력요동의 표준편차로부터 최소유동화속도의 결정범위

단일입자계에서의 압력요동의 동적성분인 표준편차와 유속과의 직선관계를 이용한 최소유동화속도의 결정을 Puncocchar[4] 등이 연구하여 다음과 같은 식을 제시하였다.

$$\text{S.D.}(\text{standard deviation}) = A + BU \quad (3)$$

위식에서 S.D.가 0이 되는 지점에서의 유속이 최소 유동화속도라 할 수 있으므로 $U_{mf} = -A/B$ 로 정의하여 최소유동화속도를 계산하였다.

Fig. 2는 flotsam으로 PMMA 715 μm 입자를 부피비로 70%, jetsam으로는 모래 715 μm 입자를 30% 혼합한 혼합물의 유속에 따른 압력요동의 표준편차를 분산판으로부터 높이에 따라 나타낸 그림이다. 앞의 연구자들[2-4]은 유속과 압력요동의 표준편차간의 선형관계를 유지하여 식 (3)의 적용이 가능하였다. 그러나 본 계에서는 2개의 선형 형태를 나타내게 되어 식 (3)으로부터 최소유동화속도를 측정하는 데 문제점으로 나타나며 이 직선의 기울기의 변화점이 유속에 따라 영향을

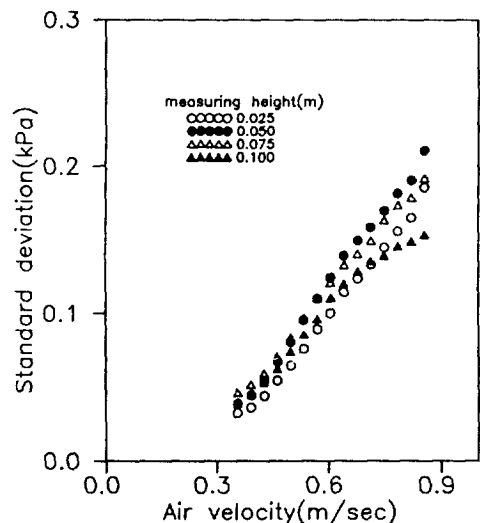


Fig. 2. Standard deviation for height above the distributor with air velocity(sand: 715 μm , 30 vol% PMMA: 715 μm , 70 vol%).

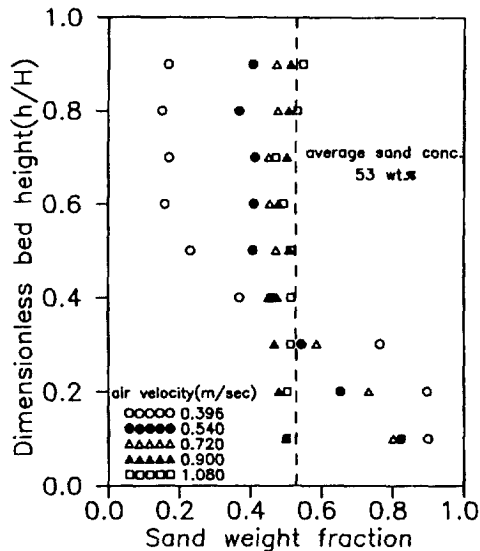


Fig. 3. The effect of air velocity on sand concentration with axial bed height(sand: 715 μm , 30 vol% PMMA: 715 μm , 70 vol%).

받는 것으로 나타났다. 이는 본 계의 경우 이성분계 혼합물에 대한 압력요동의 표준편차의 값이므로 나타나는 현상이다. 그림에서 낮은 유속에서 높은 유속으로 증가함에 따라 기울기의 변화점을 나타내고 선형성을 유지하나 더 높은 유속에서는 선형성이 사라진다. 측정위치에 따라 살펴보면 총하부의 분산판으로부터 0.025 m 지점은 낮은 유속으로부터 증가함에 따라 기울기의 변화점만이 존재하고 선형성을 유지한다. 이외의 세 지점에서 측정된 값은 모두 낮은 유속범위에서 변곡점이 존재하고 높은 유속에서는 비선형성이 나타난다. 이와 같은 변곡점의 존재는 이성분계 혼합물의 경우 유속에 따라 혼합도가 변함에 따라 측정위치에서의 총물질이 변하기 때문이므로 Fig. 3에 이 혼합물의 유속에 따른 혼합도를 조사하여 나타내었다. Fig. 3은 유속에 따른 총높이별 모래의 분율을 나타낸 그림으로 그림에서 나타나 있듯이 모래의 최소유동화속도($U_{mf}=0.36 \text{ m/sec}$) 근처인 0.395 m/sec에서는 총 내의 혼합도가 낮음을 보여주고 있고 유속의 증가에 따라 혼합도가 증가하며 Fig. 2의 첫 번째 기울기의 변화점 유속 이상에서는 높은 혼합도를 나타내고 있음을 알 수 있다. 따라서 이와 같은 혼합도의 영향으로 낮은 유속범위에서의 변곡점이 존재함을 알 수 있다. 또한 높은 유속범위에서 존재하는 기울기의 변화점과 비선형성은 이전의 연구자들[2, 12, 15]이 제시한 바와 같이 freely bubbling 영역을 넘은 유속이므로 나타난 것으로 사료된다. 이와 같은 것은

총하부인 분산판으로부터 0.025 m에서 측정된 값에서는 높은 유속에서도 비선형성이 나타나지 않는 것으로도 알 수 있다. 따라서 압력요동을 이용한 이성분계 유동층의 최소유동화속도의 측정은 혼합이 좋지 않은 낮은 유속 범위와 freely bubbling 영역 이상의 높은 유속범위를 제외한 선형구간에서 puncochar 등[4]이 제시한 선형 회귀분석으로 가능함을 알 수 있다. 그러므로 본 연구에서는 이러한 유속범위에서만 대상을 S.D.=0이 되는 공탐속도를 계산하여 기존의 연구자들의 결과와 비교하여 이 방법의 적용성과 정확도에 대한 고찰을 수행하였다.

3-2. 측정위치에 대한 영향

앞에서 최소유동화속도를 결정할 때 압력요동 표준편차 값과 유속간의 선형회귀분석시 유속의 측정범위에 대한 고찰이 있었다. 단일 입자계의 유동층에서는 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도의 측정에 있어서 측정위치에 따라 최소유동화속도의 값이 변화하게 되며[16], 따라서 최소유동화속도의 측정에 있어서 유동층을 대표할 수 있는 측정위치에 대한 연구가 이루어지고 있다. 따라서 입자간의 분리과 혼합으로 총물질의 구성이 총 내 높이에 따라 변화하는 이성분계의 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도의 측정에 있어서 층을 대표할 수 있는 측정위치에 관한 연구가 이루어져야 한다. Fig. 2의 경우 측정위치 즉, 분산판으로부터 0.025 m 간격으로 네 지점에서 앞 절에 제시한 유속범위에서의 선형회귀분석시 최소유동화속도값이 각각 0.309, 0.292, 0.234, 0.259 m/sec로 각기 다르게 나타난다. Fig. 4는 부피비로 PMMA 30%와 모래 70%인 유동화물질이 종횡비 1인 경우 유속에 따른 압력요동의 표준편차값을 유속에 따라 측정위치별로 나타낸 그림이다. 그림에서 측정위치에 관계없이 Fig. 2 보다 선형성이 좋음을 알 수 있으나, 각 측정위치에 따라 압력요동의 표준편차와 유속과의 외삽시에 횡축과 만나는 점 즉, 최소유동화속도가 큰 차이를 나타낼을 알 수 있다. 이와같은 선형성이 flotsam rich system인 Fig. 3 보다 좋은 것은 Fig. 4는 jetsam rich system으로써 총물질 중 flotsam의 양이 적고 유속에 따른 급격한 혼합도의 증가가 없고, 부피비의 특성과 무게의 특성 중 jetsam rich의 경우는 무게의 특성이 더 크게 나타나기 때문이다[6]. 그러므로 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도의 측정에 있어서 유동층을 대표할 수 있는 측정위치를 설정해야 한다. 본 실험은 이성분계를 대상으로 하였으므로 이성분계의 혼합특성에 따른 영향을 가장 크게 받는 데 이러한 영향은 분산판으로부터 높이에 따라 혼합물의 조성의 변화를 나타내며 이러한

혼합도의 차이가 기포의 크기와 빈도에 영향을 주고 기포는 압력요동의 표준편차에 가장 큰 영향을 주기 때문이다[17]. Fig.5는 부피비로 PMMA 30%, 모래 70 %인 경우 분산판으로부터 높이에 따른 혼합도를 나타낸

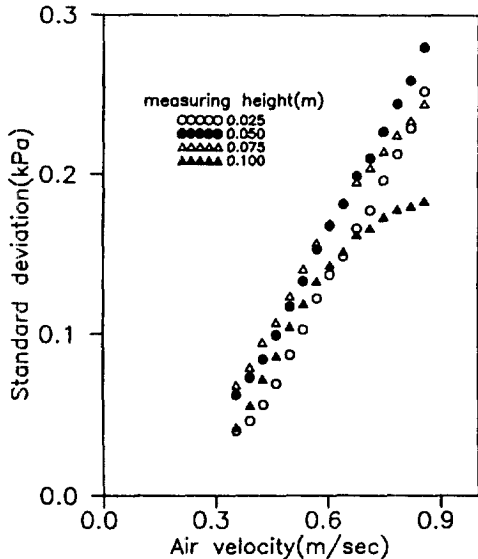


Fig. 4. Standard deviation for height above the distributor with air velocity(sand: 715 μ m, 70 vol% PMMA: 715 μ m, 30 vol%).

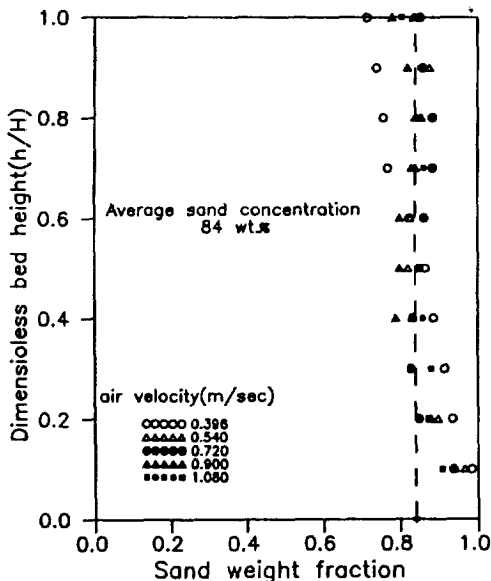


Fig. 5. The effect of air velocity on sand concentration with axial bed height(sand: 715 μ m, 70 vol% PMMA: 715 μ m, 30 vol%).

그림으로 층 중앙인 0.05 m의 경우 혼합도가 가장 좋을 것을 나타내고 있다. 또한 Fig. 3에서도 분산판으로부터 0.04 m인 지점이 가장 좋은 혼합도를 보이고 있다. 따라서 Fig. 6에 모래와 PMMA의 혼합비에 따른 측정위치별 압력요동의 표준편차를 외삽하여 구한 최소유동화속도를 나타내었다. 그림에서와 같이 최소유동화속도는 분산판으로부터 0.05 m인 지점에서 jetsam 혼합비의 증가와 함께 증가하고 있으나 나머지 세 지점은 감소하고 있다. 이와 같이 세 지점에서의 결과가 jetsam 혼합비에 따라 일정하게 나타나지 못하는 것은 압력요동의 표준편차를 유속에 따라 측정하였으므로 유속에 따른 혼합도가 변하므로 기포거동 변화로 인하여 나타난 현상이다. 그러므로 압력요동의 표준편차를 이용한 이성분계의 최소유동화속도의 측정에 있어서는 혼합이 가장 우수한 층 중앙이 가장 적절하다고 사료된다.

3-3. 압력요동의 표준편차로부터 구한 최소유동화속도

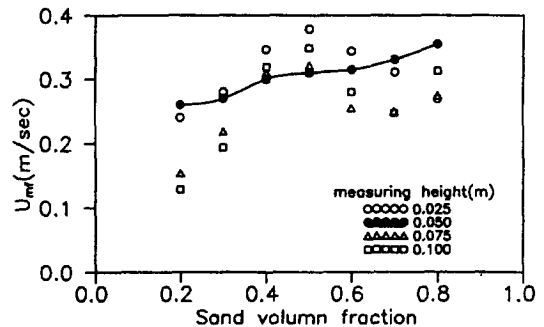


Fig. 6. Minimum fluidization velocity for measuring height above the distributor with sand mixing fraction (sand: 715 μ m, PMMA: 715 μ m).

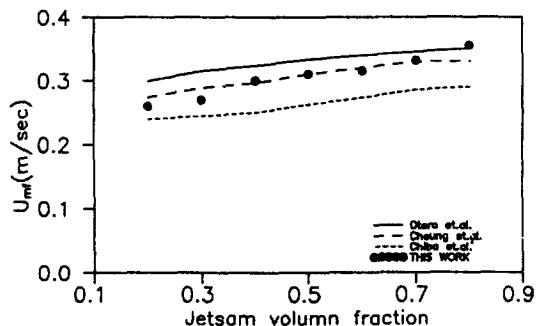


Fig. 7. The comparison of minimum fluidization velocity with other researchers(sand: 715 μ m, PMMA: 715 μ m).

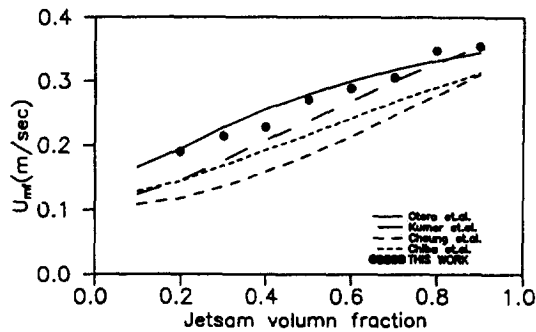


Fig. 8. The comparison of minimum fluidization velocity with other reseachers(sand: 715 μm , PMMA: 359 μm).

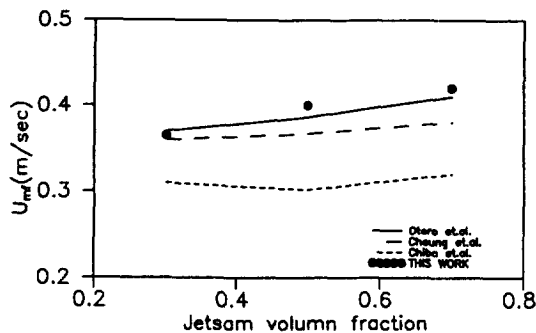


Fig. 9. The comparison of minimum fluidization velocity with other reseachers(sand: 715 μm , PMMA: 1545 μm).

이상의 방법으로 측정한 최소유동화속도를 동일 중횡비에서 부피비로써 타 연구자들[7, 8, 10, 11]이 제시한 이성분계의 최소유동화속도의 계산식의 결과와 비교하여 Fig. 7-9에 나타내었다. Fig. 7은 입경차이는 없고 밀도차이가 있는 모래 715 μm 와 PMMA 715 μm 의 두 혼합물의 부피 혼합비에 따른 최소유동화속도값으로 이성분계에서 제시한 타 연구자들의 값과 같이 jetsam의 증가와 함께 최소유동화속도가 증가하고 있음을 나타낸다. 이와 같은 증가현상은 동일 중횡비에서 상대적으로 최소유동화속도가 큰 jetsam의 비율증가에 따라 나타나는 현상이다. Fig. 8은 입경차와 밀도차가 모두 존재하는 모래 715 μm 와 PMMA 359 μm 의 혼합물의 혼합비에 따른 값으로 앞의 경우와 같이 jetsam의 증가와 함께 Fig. 7 보다는 급격한 최소유동화속도의 상승을 보이며 다른 연구자들[8]이 제시한 값과 잘 일치하고 있다. 이 때 나타나는 최소유동화속도의 급격한 증가는 두 입자의 최소유동화속도 차이가 큼으로 인하여 상대적으로 최소유동화속도가 큰 jetsam의 비율의 증

가에 따른 것이다. 또한 Fig. 9의 jetsam의 밀도가 작고 크기가 큰 경우에도 측정값이 정확하게 나타남을 보여 주고 두 입자의 최소유동화속도비가 작음으로 인하여 비율에 따른 급격한 변화는 나타나고 있지 않다. 따라서 이상의 실험으로 밀도차가 있는 이성분계에서도 압력요동의 표준편차를 이용하여 최소유동화속도의 정확한 측정이 가능함을 알 수 있었다.

4. 결 론

입경차와 밀도차가 존재하는 이성분 혼합입자계에서도 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도의 측정이 가능함을 알 수 있었다.

압력요동의 표준편차를 이용한 이성분계의 최소유동화속도 측정시 혼합이 이루어지지 않는 낮은 유속범위와 freely bubbling영역 이상의 유속에서의 압력요동의 표준편차값은 외삽에서 제외되어야 함을 알 수 있었다.

이성분계 혼합물의 압력요동의 표준편차를 이용한 최소유동화속도의 측정위치는 혼합이 양호한 층 중앙이 가장 적절함을 알 수 있었다.

감 사

본 연구는 한국과학재단의 특정기초연구과제(92-26-00-02)연구비 지원에 의해 이루어진 연구결과의 일부이며 연구비를 지원해주신 당 재단에 감사드립니다.

사용기호

- A : constant
- B : constant
- U : superficial gas velocity [m/sec]
- μ_r : mean pressure [kPa]
- T : observation time [sec]
- S.D. : standard deviation [kPa]
- t : time [sec]
- X(t) : simple time history at time t

참고문헌

1. Davidson, J. F., Clift, R. and Harrison, D.: "Fluidization", 2nd ed. Academic Press, London(1985).
2. Svoboda, K. and Hartman, M.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **20**, 319(1981).
3. Hong, S. C., Jo, B. R., Doh, D. S. and Choi, C. S.: *Powder Technol.*, **60**, 215(1990).

4. Puncchar, M., Drahos, J., Cermak, J. and Selucky, K.: *Chem. Eng. Commun.*, **35**, 81(1985).
5. Verloop, J. and Heertjes, P. M.: *Chem. Eng. Sci.*, **29**, 1035(1974).
6. Nienow, A. W., Rowe, P. N. and Chiba, T.: *AIChE Symp. Ser.*, **74**, 45(1978).
7. Chiba, S., Chiba, T., Nienow, A. W. and Kobayashi, H.: *Powder Technol.*, **22**, 255(1979).
8. Cheung, L., Nienow, A. W. and Rowe, P. N.: *Chem. Eng. Sci.*, **29**, 1301(1974).
9. Chyang, C. S., Kuo, C. C. and Chen, M. Y.: *Can. J. Chem. Eng.*, **67**, 344(1989).
10. Thonglimp, V.: Docteur-ingenieur Thesis. Institut National Polytechnique, Toulouse(1981).
11. Kumar, A. and Sen Gupta, P.: *Indian J. Technol.*, **12**, 225(1974).
12. Cha, W. S., Hong, S. C., Oh, K. J. and Doh, D. S.: *HWAHAK KONGHAK*, **30**(3) 641(1992).
13. Bendart, J. S. and Piersol: "Random Data", John Wiley, New York(1971).
14. Geldart, D.: *Powder Technol.*, **7**, 285(1973).
15. Darton, R. C., LaNanze, R. D., Davidson, J. F. and Harrison, D.: *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **55**, 274 (1977).
16. Hong, S. C., Oh, K. J., Choi, C. S. and Doh, D. S.: *HWAHAK KONGHAK*, **29**(2), 127(1991).
17. Abdulrahim Ahmad Alzahrani and Noor Wali, M. M.: *Powder Technol.*, **76**, 185(1993).