

삼상유동층에서 유동입자의 비정상상태 거동 및 요동

강 용[†] · 우광재 · 고명한 · 김상돈*

충남대학교 화학공학과

*한국과학기술원 화학공학과

(1995년 4월 25일 접수, 1995년 6월 21일 채택)

Unsteady State Behavior and Fluctuations of Fluidized Particles in Three Phase Fluidized Beds

Yong Kang[†], Kwang Jae Woo, Myung Han Ko and Sang Done Kim

Department of Chemical Engineering, Chungnam National University, Taejeon 305-764, Korea

*Department of Chemical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Taejeon, Korea

(Received 25 April 1995; accepted 21 June 1995)

요 약

삼상유동층(직경 0.152 m, 높이 2.5 m)에서 유동입자의 비정상상태 거동 및 요동특성을 통계적 방법을 사용하여 고찰하였다. 기체로는 공기를, 액체로는 물을, 그리고 고체 유동입자로는 밀도가 2500 kg/m^3 이고 직경이 $1.0\text{-}6.0 \times 10^{-3} \text{ m}$ 의 유리구슬을 사용하였으며, 비정상상태 거동의 해석으로부터 유동입자의 일정 시험영역에서의 평균분율, 유출속도, 평균체류시간 및 요동빈도수 등을 구하였다. 삼상유동층이 비정상상태에서 균일팽창을 하는 동안 유동입자의 일정 시험영역에서의 유출속도는 시간에 따라 지수적으로 감소하였으며, 평균체류시간은 기체의 유속이 증가함에 따라 감소하였다. 유동입자의 요동빈도수는 기체의 유속과 유동입자의 크기가 증가함에 따라 증가하였으나 액체의 유속과 충공극률이 증가함에 따라서는 최대값을 나타내었다. 삼상유동층에서 유동입자의 요동빈도수는 등방난류 이론에 의한 무차원 유동입자의 크기와 무차원 유체속도의 상관식으로 나타낼 수 있었다.

Abstract—Characteristics of unsteady state behavior and fluctuations of fluidized particles have been investigated by adopting the stochastic method in a three-phase fluidized bed of 0.152 m ID and 2.5 m in height. Air, water and glass beads whose density is 2500 kg/m^3 and diameter is in the range of $1.0\text{-}6.0 \times 10^{-3} \text{ m}$ have been used as gas, liquid and solid phase, respectively. The mean fraction, mean residence time and fluctuating frequency of fluidized particles in the test section, and the exiting rate of the particles from the test section have been obtained. The exiting rate of the particles has decreased exponentially with time lag during the relaxation of the bed, and the mean residence time of the particles in the test section has decreased with an increment of the gas velocity. The fluctuating frequency of particles has increased with an increment of the gas velocity and particle size, but it has attained its maximum value with an increment of the liquid velocity and bed porosity. The particle fluctuating frequency has been well correlated in terms of dimensionless particle size and dimensionless fluid velocity based on the isotropic turbulence theory.

1. 서 론

삼상유동층은 각 상들의 접촉효과가 매우 좋으며 열 전달 및 물질전달 효과가 뛰어나 화학 및 정유산업 공정에서 널리 사용되어지고 있다. 삼상유동층의 대표적인 공업적 공정은 원유의 수소첨가 및 cracking 반응인 H-oil 및 Hy-C 공정, 메탄의 생산공정, calcium bisulfite 생산공정, 석탄의 액화공정인 H-coal 공정과 폐수처리 공정인 Hy-Flo 공정 등을 들 수 있다[1].

삼상유동층에 대한 지금까지의 연구들은 삼상유동층에서 분산상으로 존재하는 기포의 크기, 상승속도, 분포 등 기포의 특성과 연속상인 액상의 촉방향과 반경방향 혼합특성 그리고 열전달 및 물질전달 등이 주종을 이루고 있는데[1-6], 이들 대부분의 연구는 정상상태로 조업되고 있는 삼상유동층에서의 연구들이었다.

그러나, 삼상유동층은 기체, 액체 그리고 유동고체입자들의 접촉과 흐름이 매우 불규칙적이며 동특성(dynamic)을 나타내기 때문에 삼상유동층의 전체적 거동에 대한 해석에는 deterministic 방법보다는 stochastic 방법으로의 접근이 보다 효과적이며, 이를 위해서는 정상상태 뿐만 아니라 비정상상태의 거동을 해석해야 하는 것으로 알려지고 있다[7-11]. 또한, 삼상유동층의 특성을 나타내는 분산상에는 상승기포 뿐만 아니라 유동고체입자가 있는데, 이 입자들은 유동층 내부에 batch 상태로 존재하면서 기포의 합체 및 분쇄에 큰 영향을 미칠 뿐만 아니라, 연속상인 액상의 혼합과 열전달 및 물질전달 현상에도 큰 영향을 미치고 있는 것으로 보고되고 있다[1-11]. 그러나, 지금까지 국내·외적으로 삼상유동층에서 유동입자의 거동에 대한 해석과 연구는 극히 미흡한 실정이다[12, 13].

따라서, 본 연구에서는 삼상유동층의 거동과 유동입자의 요동(fluctuation) 특성을 해석하기 위하여 비정상상태에서 삼상유동층 내부에서의 압력변화 거동을 통계적인 방법을 사용하여 해석하고자 하였다.

이와 같은 연구는 삼상유동층의 거동특성을 규명하고 유동입자의 혼합 및 유동입자가 유동층 내부에서 각 상들과의 접촉과 흐름현상 등에 미치는 영향을 고찰하는데 매우 중요한 정량적인 정보를 제공할 것으로 사료된다.

2. 해 석

정상상태로 조업되고 있는 삼상유동층에 기체나 액체의 유량을 step 함수로 변화시켜 주면 유동층은 새로운 정상상태에 도달하게 되는데, 새로운 정상상태에 도달할 때까지는 비정상상태의 거동을 나타낸다. 비정

상상태에서 삼상유동층 내부의 압력변동을 측정하는 일정 시험영역에서 batch 상태로 유동하고 있는 유동입자들은 층의 팽창 정도에 따라 시험영역에 들어 오기도 하고 빠져나가기기도 한다. 이와 같은 유동입자들의 요동빈도는 삼상유동층의 비정상상태 거동을 해석함으로써 구할 수 있다. 즉, 삼상유동층이 비정상상태 거동을 하면서 relaxation-point를 지나면 균일팽창을 하므로, 유동입자들의 일정 시험영역에서의 무작위적 거동(random behavior)을 stochastic 공정을 도입하여 시험영역에 존재하는 유동입자의 평균분율인 $\bar{\epsilon}_S(t)$ 와 시험영역을 벗어나는 유동입자의 평균분율인 $E(t)$ 의 두 무작위적 변수(random variable)로 다음과 같이 나타낼 수 있다[14-16].

$$\bar{\epsilon}_S(t) = \bar{\epsilon}_{S0} + (\bar{\epsilon}_{SR} - \bar{\epsilon}_{S0}) \exp(-Ft) \quad (1)$$

$$E(t) = 1 - \frac{\bar{\epsilon}_S(t)}{\bar{\epsilon}_{SR}} \quad (2)$$

여기서, $\bar{\epsilon}_{S0}$ 와 $\bar{\epsilon}_{SR}$ 는 각각 새로운 정상상태와 relaxation point에서의 평균입자수를 나타내고, F는 시험영역에서 유동입자의 요동빈도수(fluctuating frequency)를 나타낸다.

한편, 유동층 내부에서 유동입자들이 시험영역을 벗어나는 속도는 식 (2)로부터 식 (3)과 같이 얻을 수 있으며,

$$R_E(t) = F \left(1 - \frac{\bar{\epsilon}_{S0}}{\bar{\epsilon}_{SR}} \right) \left(\frac{\bar{\epsilon}_S(t) - \bar{\epsilon}_{S0}}{\bar{\epsilon}_{SR} - \bar{\epsilon}_{S0}} \right) \quad (3)$$

유동입자들이 시험영역에 머무는 평균체류시간은 식 (4)에 의해 얻을 수 있다.

$$\tau = \frac{\int_0^{\infty} t R_E(t) dt}{\int_0^{\infty} R_E(t) dt} \quad (4)$$

3. 실험

실험장치는 Fig. 1에서 보는 바와 같은 직경 0.152 m 이고 높이가 2.5 m인 아크릴관을 사용하였으며, 연속상인 액체는 물을 분산상인 기체와 유동입자로는 압축공기와 밀도가 2500 kg/m³인 유리구슬(dp: 1.0-6.0 × 10⁻³ m)을 사용하였다. 유동층에서의 전체 압력강하 및 유동층의 높이 측정을 위하여 유동층 벽면에 분산판으로부터 0.15 m의 높이에서부터 0.15 m 간격으로 압력탭을 설치하여 이들을 액체 마노미터에 연결하여서 정압력강하(static pressure drop)를 측정하였다. 동압력(dy-

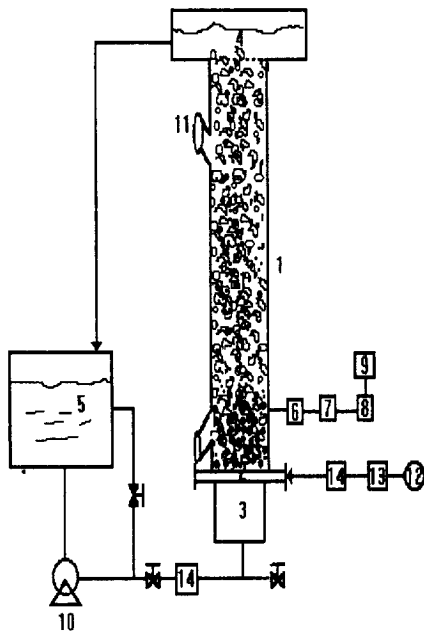


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

- | | |
|------------------------|------------------------|
| 1. Main column | 8. A/D converter |
| 2. Distributor | 9. Computer |
| 3. Calming section | 10. Pump |
| 4. Weir | 11. Solid loading port |
| 5. Liquid reservoir | 12. Compressor |
| 6. Pressure transducer | 13. Filter & Regulator |
| 7. Amplifier | 14. Rotameter |

namic pressure drop) 측정을 위한 압력센서는 분산 판으로부터 0.1 m 높이에 설치하였으며, 이를 압력변환기(semi-conductor type, Copel Electronics)를 사용하여 volt-time 신호로 바꾸어 증폭기와 오실로스코프 및 필터를 거쳐서 A/D 변환기를 사용하여 디지털 신호로 바꾼 다음 data acquisition system에 의해 PC에 입력시켰다. 각 실험조건에서 sample의 크기는 2500 point였으며 sampling rate는 31 ms이었는데, 이는 각 조건에서의 압력요동(pressure fluctuations) 및 동압력변화 해석 및 분석에 충분하였다.

삼상유동층에서 시험영역과 시험영역 상부에서의 각 상들의 체류량은 실험적으로 측정된 각 영역에서의 압력강하로부터 다음의 식들을 사용하여 시행착오법에 의해 구하였다.

$$\epsilon_{G1} + \epsilon_{L1} + \epsilon_{S1} = 1.0 \quad (5)$$

$$(\epsilon_{G1}\rho_G + \epsilon_{L1}\rho_L + \epsilon_{S1}\rho_S)gL_1 = \Delta P_1 \quad (6)$$

$$\epsilon_{G2} + \epsilon_{L2} + \epsilon_{S2} = 1.0 \quad (7)$$

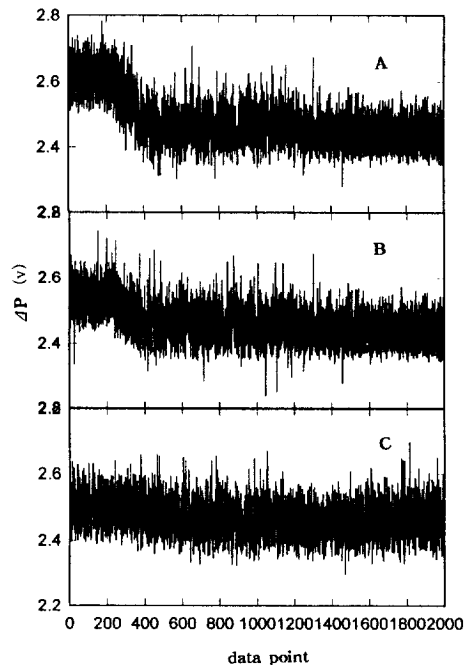


Fig. 2. Typical pressure fluctuation signals at the unsteady state in three phase fluidized beds($d_p=3$ mm, $U_L=0.10$ m/s).

	A	B	C
U_{G1} (m/s):	0.01	0.02	0.03
U_{G2} (m/s):	0.05	0.05	0.05

$$(\epsilon_{G2}\rho_G + \epsilon_{L2}\rho_L + \epsilon_{S2}\rho_S)gL_2 = \Delta P_2 \quad (8)$$

$$\epsilon_{S1}\rho_S AL_1 + \epsilon_{S2}\rho_S AL_2 = W \quad (9)$$

식 (5)-(9)에서, 첨자 1은 시험영역을 첨자 2는 시험영역의 상부를 나타낸다.

4. 결과 및 고찰

삼상유동층에서의 비정상상태는 정상상태로 조업되고 있는 유동층에서 기체의 유속을 step 함수로 변화시켜서 조성하였다. 삼상유동층계의 비정상상태에서의 압력변화 양상을 Fig. 2에 나타내었다. 정상상태로 조업되고 있던 유동층계에 기체의 유속이 step 함수로 증가하면 유동층 내부 시험영역에서의 기포의 체류량이 증가하므로 이 영역에서의 압력강하는 감소하는 것을 알 수 있다. 이와 같이 실험적으로 측정된 시간의 변화에 따른 압력요동 자료들로부터 이들 값의 평균값을 Fig. 3에서 보는 바와 같이 regression에 의해 구하였다. Fig. 4는 삼상유동층이 기체유속의 변화에 따라 비정상상태

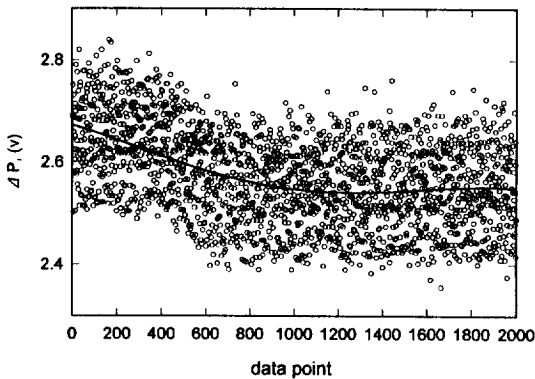


Fig. 3. Typical plot of mean value variation of ΔP at unsteady state in three phase fluidized beds ($d_p = 3$ mm).

거동을 하다가 새로운 정상상태에 도달되는 양상을 시간에 따라 나타낸 것인데, 이 그림에서 볼 수 있듯이 유동층이 최종의 기체유속에 적합한 새로운 정상상태에 도달되기 위해서는 처음의 기체유속에 관계없이 동압력변동곡선은 일정한 점을 지나는 것을 알 수 있다. 이와 같은 relaxation point는 액체-고체 유동층과 삼상슬러리 유동층[15, 16]에서 관찰할 수 있는 것과 유사하였다.

삼상유동층의 각 실험변수의 변화에 따라 유동층이 relaxation point에 있을 때 시험영역에서의 압력강하를 측정하여 유동입자의 동적 체류량의 변화를 구할 수 있으며, 시험영역에서 유동입자들의 평균유출분율인 $E(t)$ 를 구할 수 있으므로 식 (1)-(3)에 의하여 유동입자의 평균유출속도를 구할 수 있다. Fig.5에서 볼 수 있듯이 유동층 내부의 일정 시험영역에 유입된 유동입자의 평균유출속도는 유동층이 relaxation point를 지나 균일팽창(homogeneous expansion)이 일어나면서 서서히 새로운 정상상태로 접근해 가는 동안 시간에 따라 exponential하게 감소하는 것을 알 수 있다.

한편, 유동층 내부의 일정 시험영역에서 유동입자들의 평균체류시간(mean residence time)인 τ 는 식 (4)에 의해 구할 수 있으므로, 이를 기체유속의 변화에 따라 Fig.6에 나타내었다. Fig.6에서 볼 수 있듯이 유동층 내부의 일정 시험영역에서 유동입자의 평균체류시간은 기체유속이 증가함에 따라 감소함을 알 수 있는데, 이는 기체유속의 증가에 따라 유동층 내부에 분산상으로 존재하는 기포의 체류량의 증가와 동시에 기체와 액체의 접촉 강도의 증가에 따른 유동층 내부의 turbulence 현상의 증가 때문이라고 설명할 수 있다. 다시 말하면 이들은 결과적으로 분산상으로 존재하며 유동화되고 있는 유동입자에 작용하는 turbulence와 buoyance force

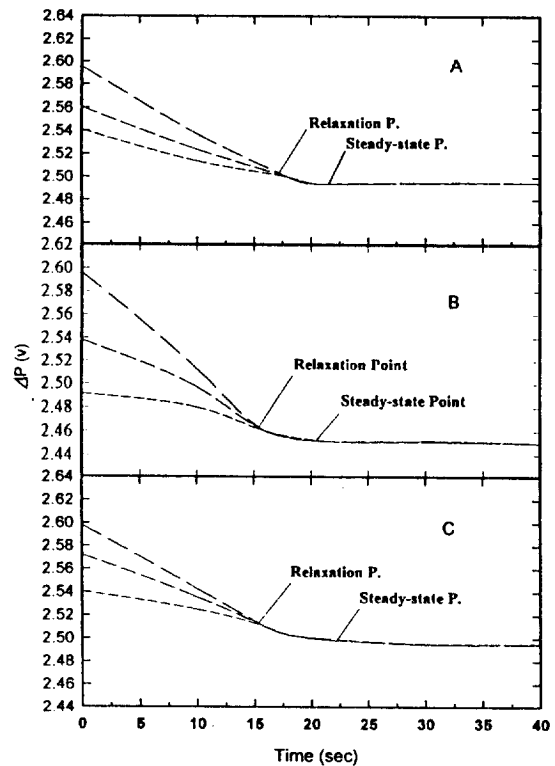


Fig. 4. Determination of relaxation point and onset of steady state in three phase fluidized beds ($d_p = 3$ mm).

	A		B	
U_L (m/s) :	0.10		0.10	
symbol : $U_{G,i}$ (m/s), $U_{G,e}$ (m/s)	$U_{G,i}$ (m/s)	$U_{G,e}$ (m/s)	$U_{G,i}$ (m/s)	$U_{G,e}$ (m/s)
---	0.01	0.05	0.01	0.07
----	0.02	0.05	0.03	0.07
-----	0.03	0.05	0.05	0.07

	C	
U_L (m/s) :	0.12	
symbol : $U_{G,i}$ (m/s), $U_{G,e}$ (m/s)	$U_{G,i}$ (m/s)	$U_{G,e}$ (m/s)
---	0.01	0.05
----	0.02	0.05
-----	0.03	0.05

의 증가를 가져와 삼상유동층의 총팽창의 증가를 가져오며 이에 따라 유동입자들이 일정 시험영역에서 머무르는 평균체류시간의 감소를 가져온다고 볼 수 있다. 이와 같은 현상은 기체유속의 증가가 유동입자의 일정 시험영역에서의 요동 빈도수(fluctuating frequency)에 미치는 영향을 고찰하면 더욱 뚜렷이 나타난다. 유동층 내부의 요동빈도수 F 는 유동층이 비정상상태 거동을 하는 relaxation point를 지나 균일팽창이 일어나는 동

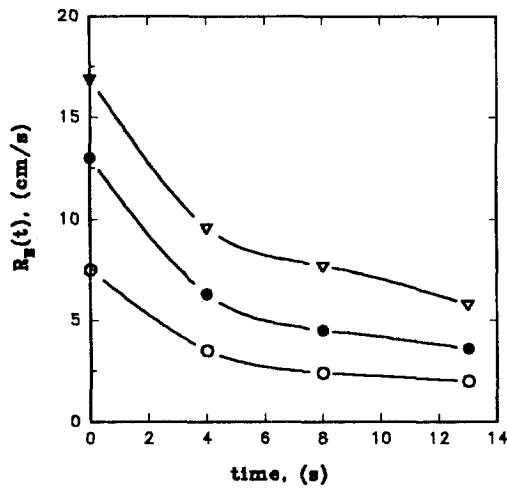


Fig. 5. Exiting rate of fluidized particles in the test section during relaxation ($U_G=0.01$ m/s, $U_{GF}=0.07$ m/s).

	○	●	▽
d_p (mm) :	1	3	6
U_L (m/s) :	0.10	0.10	0.12

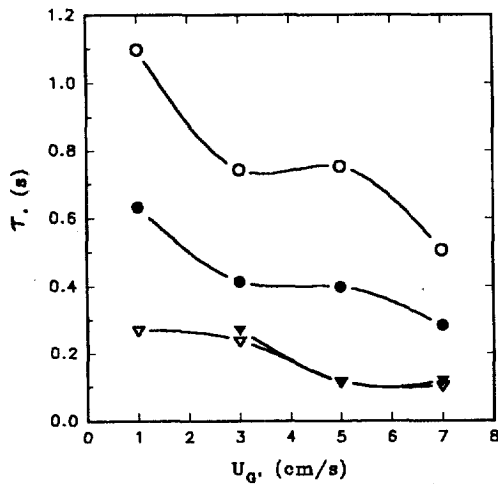


Fig. 6. Mean residence time of particles in the test section.

	○	●	▽	▼
d_p (mm) :	1	3	6	6
U_L (m/s) :	0.10	0.10	0.12	0.10

안의 시간의 변화에 따른 시험영역에서의 입자체류량의 변화를 측정하여서 식 (1)에 의해 구할 수 있다. Fig. 7에서 볼 수 있듯이 시험영역에서 유동입자들의 요동빈도수는 기체유속이 증가함에 따라 증가함을 알 수 있다. 삼상유동층에서 연속상인 액체의 유속이 시험영역에서

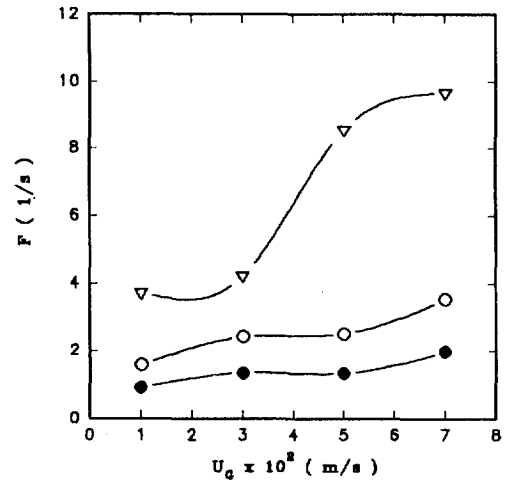


Fig. 7. Effects of U_G on fluctuating frequency of particles in the test section.

	●	○	▽
d_p (mm) :	1	3	6
U_L (m/s) :	0.10	0.10	0.12

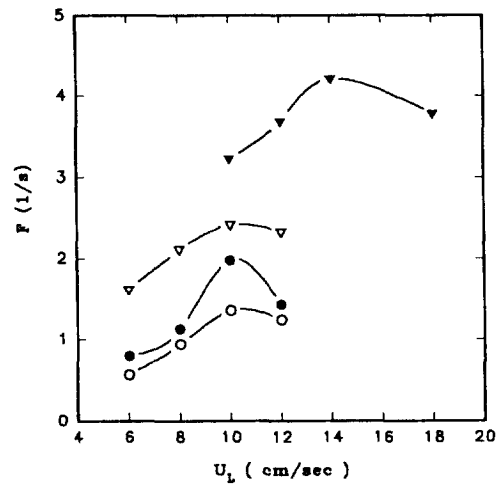


Fig. 8. Effects of U_L on fluctuating frequency of particles in the test section.

	○	●	▽	▼
d_p (mm) :	1	1	3	6
U_G (m/s) :	0.03	0.07	0.03	0.03

유동입자의 요동빈도수에 미치는 영향을 Fig. 8에 나타내었는데, 유동입자의 요동빈도수는 액체유속의 증가에 따라 최대값을 나타내는 것을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 삼상유동층에서 액체유속의 증가에 따라 고체 유동입자의 흐름형태(flow regime)가 변환하는 것[15-

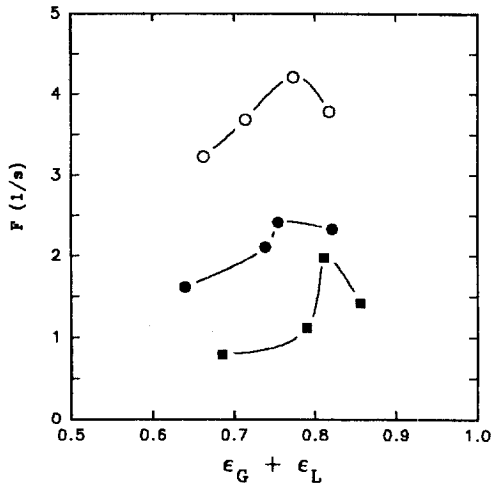


Fig. 9. Effects of bed porosity on fluctuating frequency of particles in the test section.

$d_p(\text{mm})$: \blacksquare \bullet \circ
 1 3 6

17]과 밀접한 관계가 있다고 볼 수 있다. 즉, 삼상유동층에서 고체유동입자는 액체의 유속이 낮은 범위에서는 제한된 영역에서 완전한 순환운동(circulation motion)만을 하나, 액체의 유속이 점점 증가하여 가면서 유동입자의 운동폭도 커지고 운동도 점점 무작위적이며 불규칙적인 거동을 하게 되며, 액체유속이 어느정도 이상이 되면 고체유동입자는 완전히 난류의 무작위적인 거동(turbulent random motion)을 하게 된다. 따라서, 유동입자의 거동이 난류의 무작위적인 거동을 시작하기 전단계인, 순환운동의 흐름영역과 난류 무작위적인 흐름거동의 영역의 중간단계에서는 제한된 영역에서의 순환운동의 특성과 입자의 운동폭이 커지는 거동의 특성을 같이 나타내므로 이 중간영역에서의 유동입자의 단위체적당 운동량과 요동빈도수가 가장 크다고 볼 수 있다. 이와 같은 현상은 삼상유동층에서의 열전달과 물질전달 등의 전달현상의 연구에서도 정성적으로 설명되어져 오고 있다[1-6]. 또한, 유동입자의 흐름형태 변화는 유동입자가 운동할 수 있는 공간영역인 층공극률 (bed porosity)의 변화에도 큰 영향을 받으므로 Fig. 9에 층공극률이 유동입자의 일정 시험영역에서의 요동 빈도수에 미치는 영향을 나타내었다. Fig. 9에서 볼 수 있듯이 유동입자의 요동 빈도수는 층공극률의 변화에 따라서도 최대값을 나타내고 있음을 알 수 있으며, 이는 Fig. 8의 설명에서 설명된 이유 때문에 예견된 것이라 할 수 있다. 삼상유동층에서 유동입자의 크기가 유동입자의 요동빈도수에 미치는 영향을 Fig. 10에 나타내

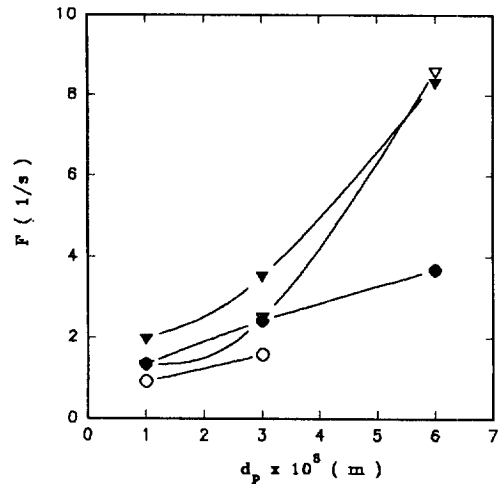


Fig. 10. Effects of d_p on fluctuating frequency of particles in the test section ($U_L = 0.10$ m/s).

$U_G(\text{m/s})$: \circ \bullet \triangle \blacktriangledown
 0.01 0.03 0.05 0.07

었는데, 이 그림에서 볼 수 있듯이 액체의 유속이 유동입자의 최소유동화속도에 비하여 충분히 큰 경우에 유동입자의 크기가 클수록 유동입자의 요동빈도수는 증가하는 경향을 나타내고 있다. 이와 같은 현상은 다음과 같이 설명할 수 있다. 즉, 유동입자의 크기가 증가함에 따라 유동입자의 최소유동화속도가 커지므로 그 입자들을 충분히 유동화시키는데 필요한 액체의 유속은 증가하게 되는데, 삼상유동층 내부에서 액체유속의 증가는 분산상으로 존재하는 유동입자에 작용하는 drag force의 증가 뿐만 아니라, 기포에 작용하는 force의 증가도 가져오므로 유동층 내부의 난류현상의 증가를 가져온다. 뿐만 아니라, 유동입자의 크기가 증가할수록 기체-고체의 접촉에 의한 상승기포의 분쇄 포텐셜의 증가를 가져오기 때문에[1-6], 유동층 내부에 존재하는 기포의 크기를 감소시켜 기포의 체류량의 증가를 가져오게 되므로 결국 유동층 내부의 난류현상의 증가를 더욱 부추겨 고체유동입자의 요동빈도수는 증가하게 된다.

본 연구의 실험범위에서 구한 삼상유동층에서 유동입자의 요동빈도수를 등방난류모델에 기초하여 무차원 유동입자의 크기인 (d_p/D_T)와 무차원 유체의 유속인 ($U_L/U_G + U_L$)으로 식 (10)과 같이 상관식으로 나타낼 수 있었다[17, 18].

$$F = 30.0 \left(\frac{d_p}{D_T} \right)^{0.6386} \left(\frac{U_L}{U_G + U_L} \right)^{0.2084} \quad (10)$$

식 (10)에서 상관계수는 0.911로 실험결과와 잘 일치

하였다.

5. 결 론

본 연구의 실험결과 다음과 같은 몇 가지 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 삼상유동층에서 비정상상태의 거동을 해석함으로써 유동층 내부의 일정 시험영역에서 고체 유동입자의 평균체류량, 평균체류시간, 유출속도 및 요동빈도수 등을 구할 수 있었다.

(2) 삼상유동층이 비정상상태에서 균일팽창을 하는 동안 유동입자의 일정 시험영역에서의 유출속도는 시간에 따라 지수적으로 감소하였으며, 평균체류시간은 기체유속의 증가에 따라 감소하였다.

(3) 삼상유동층에서 유동입자의 요동빈도수는 기체의 유속과 유동입자의 크기가 증가함에 따라 증가하였으나, 액체의 유속과 충공극률의 증가함에 따라서는 최대값을 나타내었다.

(4) 삼상유동층에서 유동입자의 요동빈도수는 등방 난류이론에 의한 무차원 유동입자의 크기와 무차원 유체속도의 상관식으로 다음과 같이 나타낼 수 있었다.

$$F = 30.0 \left(\frac{d_p}{D_T} \right)^{0.6386} \left(\frac{U_L}{U_G + U_L} \right)^{0.2084}$$

사용기호

- A : column cross-sectional area [m²]
 d_p : particle diameter [m]
 D_T : column diameter [m]
 E(t): entrained particle fraction
 F : fluctuating frequency of fluidizing particles [1/s]
 g : gravitational acceleration [m/s²]
 L : arbitrary location of fluidizing particle [m]
 ΔP : pressure drop [N/m²]
 R_E(t): exiting velocity of the particles from the test section [m/s]
 t : time [s]
 U : velocity [m/s]
 W : solid weight [kg]

그리스 문자

- ρ : density [kg/m³]
 $\bar{\epsilon}_s$: mean particle holdup
 τ : mean residence time of fluidizing particles [s]

하첨자

- 1 : in the test section
 2 : above the test section
 O : steady state
 R : relaxation state
 G : gas
 L : liquid
 S : solid

참고문헌

1. Fan, L. S.: Gas-Liquid-Solid Fluidization Engineering, Butterworths Publish, Stoneham, MA(1989).
2. Epstein, N.: Handbook of Fluids in Motion, Chermisimiff, N. P. and Gupta, R. ed., Ann Arbor Science(1983).
3. Kang, Y., Suh, I. S. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Commun.*, **34**, 1(1985).
4. Schumpe, A., Deckwer, W. D. and Nigam, K. D. P.: *Can J. Chem. Eng.*, **67**, 873(1989).
5. Kim, S. D. and Kang, Y.: Encyclopedia of Fluid Mechanics, Chermisimiff, N. P. ed. Gulf Pub. Co. (in print) (1995).
6. Morooka, S., Uchida, K. and Kato, Y.: *J. Chem. Eng. Japan*, **15**, 29(1982).
7. Kang, Y. and Kim, S. D.: *Chem. Ind. Technol.*, **13**, 27(1995).
8. Kwon, H. W., Kang, Y., Kim, S. D., Yashima, M. and Fan, L. T.: *I&EC Research*, **33**, 1852(1994).
9. Fan, L. T., Nieogi, D., Yashima, M. and Nassar, R.: *AIChE J.*, **36**, 1529(1990).
10. Kikuchi, R., Tsutsumi, A. and Yoshida, K.: Proc. 4th Asian Conf. on Fluidized Beds and Three Phase Reactors, 289(1994).
11. Yashima, M., Nassar, R., Fan, L. T. and Kang, Y.: *AIChE J.*, **38**, 629(1992).
12. Fan, L. S., Yamashita, T. and Jean, R. H.: *Chem. Eng. Sci.*, **42**, 17(1987).
13. Kang, Y. and Kim, S. D.: *Particulate Sci. Technol.*, **6**, 133(1988).
14. Yutani, N., Ototake, N., Too, J. R. and Fan, L. T.: *Chem. Eng. Sci.*, **37**, 1079(1982).
15. Kang, Y., Nah, J. B., Min, B. T. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Commun.*, **97**, 197(1990).
16. Fan, L. T., Kang, Y., Nieogi, D. and Yashima, M.: *AIChE J.*, **39**, 513(1993).
17. Kim, S. D. and Kim, C. H.: *J. Chem. Eng. Japan*, **16**, 172(1983).
18. Sanger, P. and Deckwer, W. D.: *Chem. Eng. J.*, **22**, 179(1981).