

© 1992 ISIJ

 ///////////////  
 論 文  
 ///////////////

# 溶融スラグ浴上における石炭の 急速熱分解生成物

河 村 隆 文\*・石 川 英 毅\*<sup>2</sup>

## Pyrolyzed Products of Coal Rapidly Heated on a Molten Slag

Takafumi KAWAMURA and Hidetake ISHIKAWA

### Synopsis :

Behavior of rapid pyrolysis of coal is of considerable importance in understanding an early stage of post combustion in an iron ore smelting reduction converter.

Products by pyrolysis of various kinds of coal under conditions of high heating rate and high temperature on a molten slag have been studied quantitatively.

By analyzing the pyrolysis products such as gas, tar and residual char, data were obtained as a function of coal rank (eleven coals and one metallurgical coke), temperature (1 350~1 500°C), gas residence time (2.5~10 s), and coal diameter (0.8~7.0 mm) in the experiments using high frequency induction furnace.

Total coal volatiles released in these experiments increased by 10 to 20% compared to the proximate volatile matters. Carbon oxide gas (CO+CO<sub>2</sub>) and hydrocarbon gas (CH<sub>4</sub>-C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>) yields increased with increasing [O] content and [H]/[C] atomic ratio in parent coal, respectively.

The effect of coal diameter and slag temperature on total volatiles did not become significant.

The ratio of [S] and [N] retained in residual char to total [S] and [N] contained in parent coal decreased with increasing volatile matter of coal. Normalization of the data, by taking the ratio of [S] and [N] released to total volatiles released, indicated that [S] and [N] in all coals examined were preferentially retained in volatiles and showed the maximum retention at around [C]<sub>daf</sub> = 85% coal.

**Key words :** coal ; rapid pyrolysis ; products ; molten slag ; smelting reduction.

## 1. 緒 言

鉄浴式溶融還元炉において、石炭を熱源および還元材として直接投入した場合、酸素ジェットによる燃焼の前段階としての熱分解挙動を十分に把握することが、炉内二次燃焼および着熱現象を理解する上で重要である。

例えば、松尾ら<sup>1)</sup>は固定炭素バランスの考え方から、石炭の熱分解によって生成するチャー量が二次燃焼率に及ぼす影響を明らかにし、揮発分の少ない石炭ほど二次燃焼率が高くなるとしている。溶融還元反応条件におけるチャーの生成量は、白金るつぽを用いて、900°C、7 min の N<sub>2</sub> 気流中で測定する JIS 工業分析値とは異なり、高温度場、急速加熱条件でのデータが必要となる。

石炭の急速加熱下における熱分解挙動は、ガス化や燃焼に関連して注目を浴び、急速熱分解のすぐれた解説も

行われている<sup>2)~4)</sup>。しかしながら、従来の石炭急速熱分解の研究は、ほとんどのものが 1 000°C 前後の低温下における研究で、鉄浴炉の温度レベルである 1 500°C 近傍という高温下での研究は、非常に少ない<sup>5)~9)</sup>。また、高温での研究は主に微粉炭燃焼を対象として行われているため、数十ミクロンの微粉を取り扱っており、溶融還元のような粗粒を対象とした研究はほとんど見られない。

そこで、本報では溶融スラグ浴を用いた高温度場、急速加熱条件下での実験により、種々の石炭の熱分解生成物を定量的に把握することで、鉄浴式溶融還元プロセス開発のための一助とすることに狙いがある。また、溶銑の品質に影響を与える石炭中 N 元素および S 元素（以下、[N] および [S] のように表記する）の熱分解生成物への分配についても検討した。

平成元年 4 月本会講演大会にて発表 平成 3 年 6 月 12 日受付 (Received June 12, 1991)

\* 新日本製鉄(株)プロセス技術研究所 (Process Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corp., 20-1 Shintomi Futtsu 299-12)

\*<sup>2</sup> 新日本製鉄(株)製鋼研究センター (現:(財)神奈川科学技術アカデミー) 工博 (Steelmaking Technology Lab., Nippon Steel Corp., Now Kanagawa Academy of Science and Technology)

## 2. 実験方法および装置

実験装置の概要を Fig. 1 に示す。15 kg の高周波誘導炉内に置かれたカーボンるつぽに鉄を約 800 g, スラグを約 100 g (組成  $\text{CaO} : \text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{MgO} = 45 : 35 : 10 : 10$  wt%) を装入し, 所定の温度に制御し熔融させる。一定流量の Ar を炉内に流しながら, 熔融スラグ浴上に 10 g の精秤した石炭を, 水冷ノズルを通して落下させる。石炭のホッパー内は, あらかじめ Ar 雰囲気にしておく。石炭の落下と同時にガス流路を切り替え, 乾式ガスメーターでガス流量を測定しつつ, ガスサンプリングバックに熱分解生成ガスを捕集する。

捕集したガスは, ガスクロマトグラフで  $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{C}_3\text{H}_6$ ,  $\text{C}_3\text{H}_8$  の各ガス成分を絶対検量線法で 2 回分析し, その平均値を採用した。ガス分析誤差は  $\pm 5\%$  であった。タールおよびすすの一部は, グラスウール充填のフィルターで捕集した後, 重量測定を行った。るつぽ内の残留チャーは, Ar 雰囲気下で室温まで冷却後, スラグ上に浮いている全量のチャーを回

収し, 重量測定および工業分析・元素分析を行った。実験装置からのガスリークを防ぐために, 誘導炉直上に水冷フランジを採用し, 密閉構造となるように工夫した。

実験は, 石炭炭種, 石炭粒径, スラグ温度, 石炭熱分解ガス炉内滞留時間を変えて行った。実験に用いた石炭は, Table 1 に示すように, 11 種類の石炭 (Coal A~K) と 1 種類 (L) の冶金用コークスで, 工業分析値の揮発分量の順に並べてある。Coal-A, B は亜瀝青炭, Coal-C~J は原料炭および一般炭を含む瀝青炭, Coal-K は無煙炭に属する石炭である。石炭粒径は 0.8~1.0, 1.5~3.0, 5.0~7.0 mm の 3 種類, スラグ温度は 1350~1500°C, ガス炉内滞留時間は 2.5~10.0 s (Ar 流量を 20~5 NL/min と変化させることで実現) の範囲で実験した。

炉内で発生した熱分解生成ガスを, ガスサンプリングバックに全量捕集するのに必要な Ar 量を決定するための予備実験を行った。炉内に発生した熱分解生成ガスをすべて追い出すのに必要な Ar 量は, 20 NL 以上であることがわかり, 本実験では, ガスサンプリング量として

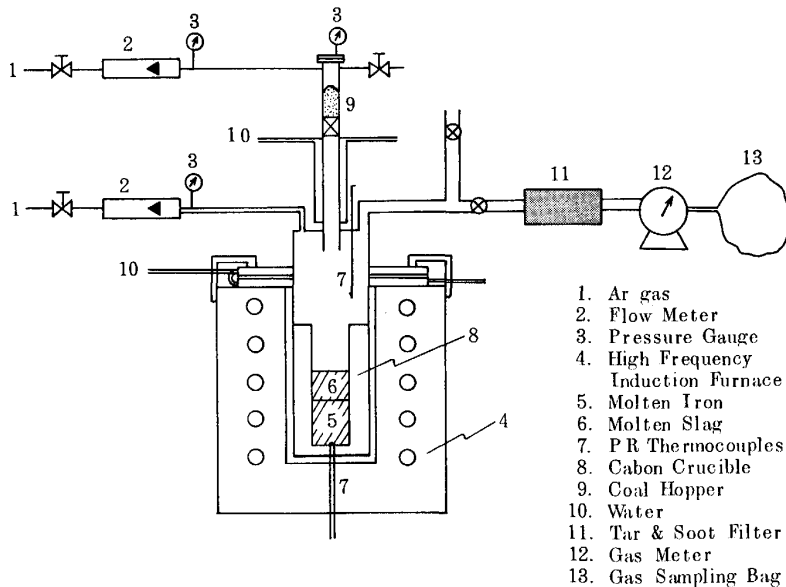


Fig. 1. Experimental apparatus.

Table 1. Proximate and ultimate analysis of coals.

Coal	Proximate (wt%)				Ultimate (wt%)					
	VM	FC	Ash	Ms	C	H	O	N	S	TS
A (Japan)	48.88	43.12	8.00	5.12	67.57	5.99	17.37	1.00	0.07	0.23
B (Australia)	45.56	44.57	9.87	8.32	69.91	5.25	14.10	0.76	0.11	0.29
C (Japan)	38.19	53.58	8.23	1.42	74.93	4.50	10.11	1.40	0.83	0.96
D (South Africa)	33.23	56.56	10.21	2.47	73.83	4.68	8.99	1.78	0.51	0.64
E (South Africa)	32.14	59.98	7.88	2.01	76.65	4.96	8.02	1.90	0.59	0.69
F (Australia)	25.11	66.20	8.69	1.44	79.51	4.57	4.99	1.76	0.48	0.54
G (Australia)	22.15	70.81	7.04	0.90	82.04	4.60	3.98	1.86	0.48	0.51
H (Canada)	22.00	68.55	9.45	0.84	79.84	4.50	4.70	1.21	0.30	0.35
I (USSR)	18.46	72.40	9.14	0.67	81.43	4.34	4.31	0.74	0.04	0.20
J (Australia)	18.48	73.84	7.68	1.10	80.39	4.33	5.23	1.78	0.59	0.60
K (China)	5.92	79.54	14.54	1.14	80.54	0.72	3.91	0.26	0.03	0.16
L	0.67	87.95	11.38	0.28	86.52	0.02	0.32	1.11	0.55	0.62

Table 2. Proximate and ultimate analysis of chars pyrolyzed on molten slag (Slag temperature 1400°C, coal diameter 1.5~3.0 mm).

Char	Proximate (wt%)			Ultimate (wt%)					
	VM	FC	Ash	C	H	O	N	S	TS
A (Japan)	1.13	83.25	15.62	82.93	0.06	0.53	0.71	0.15	0.35
B (Australia)	0.71	80.40	18.89	79.79	0.06	0.68	0.42	0.16	0.21
C (Japan)	0.59	86.84	12.57	84.73	0.05	0.96	0.99	0.70	0.77
D (South Africa)	NA	NA	16.93	80.99	0.10	1.07	0.66	0.25	0.31
E (South Africa)	NA	NA	11.80	86.43	0.09	0.60	0.77	0.31	0.41
F (Australia)	0.66	86.86	12.48	86.09	0.04	0.02	1.15	0.22	0.41
G (Australia)	NA	NA	12.71	85.48	0.08	0.56	0.87	0.30	0.33
H (Canada)	0.50	87.81	11.69	86.68	0.05	0.42	0.91	0.25	0.28
I (USSR)	0.41	87.97	11.62	86.78	0.04	0.63	0.80	0.13	0.19
J (Australia)	0.41	88.75	10.84	87.25	0.05	0.04	1.35	0.47	0.49
K (China)	1.00	84.94	14.06	84.82	0.12	0.59	0.35	0.06	0.14
L	0.44	87.42	12.14	85.48	0.05	0.81	1.03	0.49	0.55

NA : Not Analyzed

20 NL 以上を目途にガス捕集を行った。ESSENHIGH<sup>10)</sup> や AGARWAL<sup>11)</sup> の検討によれば、本実験に使用した石炭粒径の範囲で、熱分解に要する時間は 1000°C 以下の低温でも 60 s 以内であり、60~240 s の捕集時間を確保している本実験では、十分に熱分解が終了していると考えられる。

Table 2 には、生成したチャーの工業分析および元素分析の結果を示す。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 全揮発分発生量

熱分解生成物の生成割合の内訳を全炭種について、Fig. 2 に示す。各成分の生成割合は、湿分および灰分を除外した重量% (daf-wt%, Dry ash free) で計算している。チャーの生成割合は、スラグ浴上の回収チャーの重量から、ガスはガスクロによる分析結果から求めたものである。タール+すす+H<sub>2</sub>O の生成割合は、100% からチャーおよびガス収率を引いた差として得たものである。タールフィルターに捕集されたタール+すすの重量測定から得られた回収率は、計算で得られるタール+すす量の 50~60% で、残りは配管への付着およびトラップされずにガスサンプリングバックに散逸したものである。タールとすすの区別は困難であったが、かなりの量はすす状をしていた。これは、石炭から放出された揮発分がスラグ浴上部の高温空間でクラッキング (C<sub>n</sub>H<sub>m</sub> → C + 軽質炭化水素) やポリマー化 (C<sub>n</sub>H<sub>m</sub> → (C<sub>n</sub>H<sub>m</sub>)<sub>k</sub> → C) の二次反応によって生成したものである。Fig. 2 から、工業分析値の揮発分の多い石炭ほど、残留チャー量が少なくなる傾向にあることがわかる。

この実験による全揮発分発生量 (V\*, ガスおよびタール+すす+H<sub>2</sub>O 収率の和) と工業分析値の揮発分 (VM) の比較を示したものが、Fig. 3 である。V\*/VM = 1.0 の線が、工業分析値と同じ揮発分量が得られたことを意

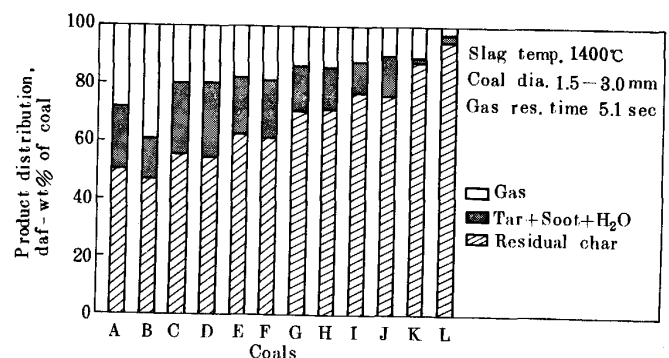


Fig. 2. Product distribution of various coals pyrolyzed on molten slag.

味する。スラグ温度 1400°C (石炭粒径 1.5~3.0 mm) の高温浴での急速加熱条件下では、全揮発分発生量 (V\*) は、炭種によって若干の相違があるが、ほとんどの石炭で工業分析値を上回り、10~20% 増の結果が得られた。Coal-F および無煙炭の Coal-K では、揮発分の発生割合が非常に多くなり、発生量の比は、それぞれ 1.4 および 1.75 という値になる。本実験の加熱速度は、石炭粒内の温度勾配を無視して推算すると、約 5000 K/s 程度となる。ANTHONY ら<sup>2)</sup> は、多くの研究者の急速加熱実験の結果をまとめ、加熱速度 600~50000 K/s、温度 1000°C 近傍の低温で V\*/VM が 0.75~1.36 の範囲にあり、ほとんどのデータが 1.0 を超えると報告している。加熱速度の影響は、ある一定速度以上では、V\* に与える影響は小さいとしている。また、XU ら<sup>12)</sup> は、著者らと同じ亜瀝青炭の Coal-A および B の 200 メッシュ以下のものを用いて、キューリーポイントパイロライザーによる 764°C における急速加熱実験 (3000 K/s) を行い、V\*/VM がそれぞれ 0.95 および 1.04 の結果を得ている。著者らの結果は、Coal-A および B の 1.5~3.0 mm の粗粒で、それぞれ 0.94 および 1.05 であり、1400°C の高温でもほぼ同じ結果が

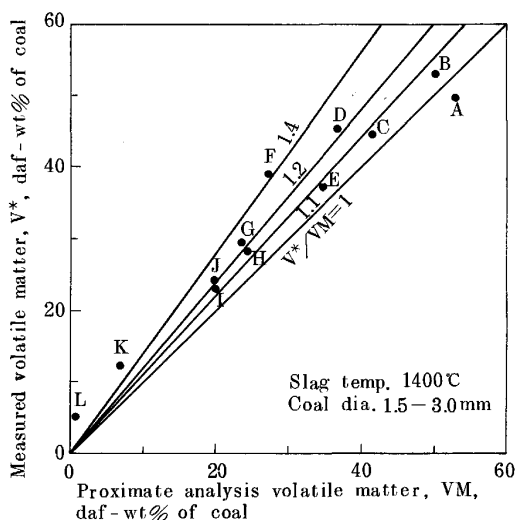


Fig. 3. Comparison of volatile matter produced on molten slag with proximate VM.

得られた。

石炭粒内で生成した一次揮発分は、カーボンデポジションを伴う二次反応と粒内拡散の競争により、粒外に放出され、揮発分収率が決まる。本実験のような急速加熱では、低速加熱に比べて、二次反応の機会が少なくなる（拡散が優位となる）ことから、揮発分量が大きくなるものと思われる<sup>2)</sup>。

Fig. 4 および Fig. 5 にスラグ温度および石炭粒径の全揮発分発生量に及ぼす影響を示す。スラグ温度 1350~1500°C および石炭粒径 0.8~7.0 mm の範囲では、実験誤差によるデータの若干のばらつきはあるが、全揮発分量に及ぼすスラグ温度および石炭粒径の影響はあまり見られない。

全揮発分発生量 ( $V^*$ ) と石炭中  $[C]_{daf}$  との関係をプロットすると Fig. 6 に示すように強い相関があり、最小二乗法による近似をすると、以下の(1)式が得られる。

$$V^* = -2.148[C]_{daf} + 217.8 \dots\dots\dots(1)$$

ここに、 $V^*$  : 全揮発分発生割合, daf-wt%,  $[C]_{daf}$  : 石炭中 C 元素含有割合, daf-wt% である。適用範囲は、温度 1350~1500°C, 石炭粒径 0.8~7 mm である。溶融還元的环境下では、ほぼ(1)式で揮発分発生量の推定が種々の石炭について可能となろう。

3.2 ガス成分分布

熱分解生成ガスの成分分布をすべての炭種について、Fig. 7 に示す。石炭の熱分解によって生成する主なガス成分は、 $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ , および軽質炭化水素  $CH_4$ ~ $C_3H_8$  の各成分である。Fig. 7 の  $H_2O$  は、計算により求めたもので、石炭中  $[O]$  元素のうち、チャー中の  $[O]$

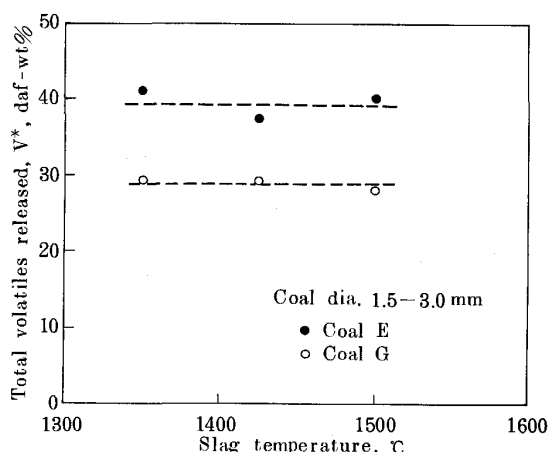


Fig. 4. Effect of slag temperature on volatile matter yield.

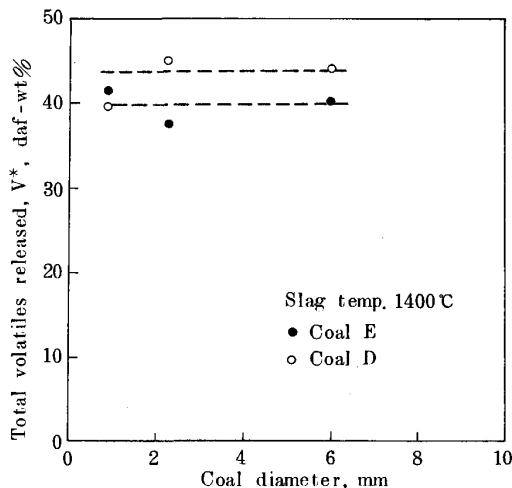


Fig. 5. Effect of coal diameter on volatile matter yield.

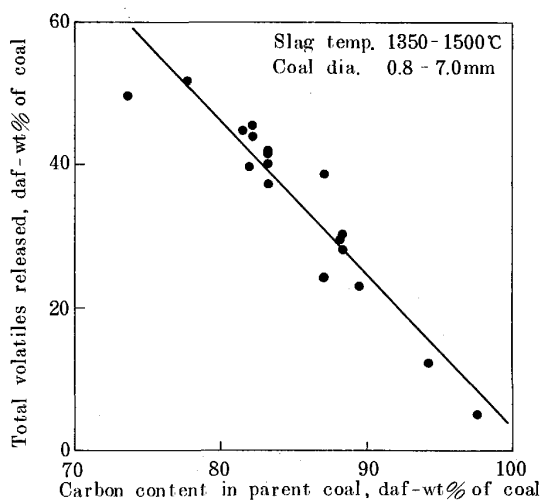


Fig. 6. Total volatiles released in the pyrolysis of coals on molten slag.

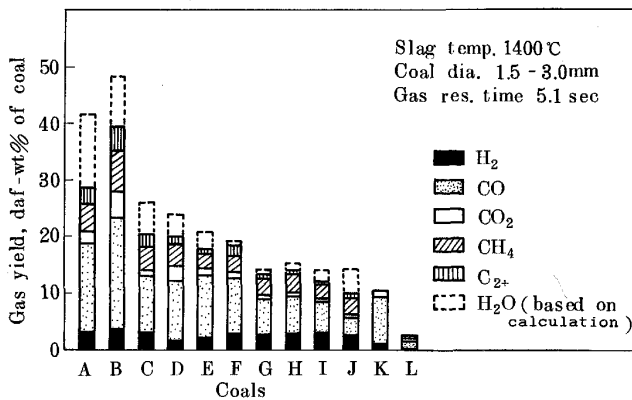


Fig. 7. Distribution of gas components produced from various coals.

元素および CO, CO<sub>2</sub> ガス中の [O] 元素を引いた残りの [O] 元素は、すべて H<sub>2</sub>O に含まれると仮定している。タールおよびすす中の [O] 元素は非常に少ないと考えられ、無視している。Coal-K および L では分析誤差が大きく除外した。

熱分解ガス成分のうち、H<sub>2</sub> の生成割合は、石炭重量の 2.5~3.5% で炭種によって大きな差異はない。軽質炭化水素 (CH<sub>4</sub>~C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>) の生成割合は、揮発分の多い石炭ほど多くなる。65~80% は CH<sub>4</sub> が占めており、残りは C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> の不飽和炭化水素である。C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> の飽和炭化水素は高温での二次分解のために検出されなかった。軽質炭化水素の生成割合は、石炭中の [H]/[C] の比により、Fig. 8 に示すようにある程度、推測することができる。

CO, CO<sub>2</sub> の含酸素化合物は、Fig. 9 に示すように、石炭中 [O] 元素の含有量と密接な関連があり、石炭中 [O] 元素に比例して、CO + CO<sub>2</sub> の生成量は大きくなる。石炭中 [O] の多い Coal-A, B では CO + CO<sub>2</sub> 収率が石炭重量の 20% にも達する。CO + CO<sub>2</sub> のうち、CO の占める割合は炭種にかかわらず、90% 程度になる。石炭中 [O] 元素の含酸素化合物への分配は、低温では CO<sub>2</sub>·H<sub>2</sub>O へ、高温になるほど CO へ移行することが知られている<sup>5)13)</sup>。

熱分解生成ガスにおけるシフト反応 (CO + H<sub>2</sub>O = CO<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>) の平衡を検討してみる。実測された H<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub> および計算で求めた H<sub>2</sub>O から実験的に求まるシフト反応の平衡定数  $K_{exp} = \frac{[CO_2][H_2]}{[CO][H_2O]}$  と理論的に得られる平衡定数  $K_{th}$  をいくつかの石炭について、Fig. 10 に示す。実験的に求まる平衡定数は、理論平衡定数の温度 1000~1500°C の範囲にほぼある。実験装置のスラグ浴上部空間の温度は 1000~1400°C であることを考えると、熱分解生成ガスの H<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>,

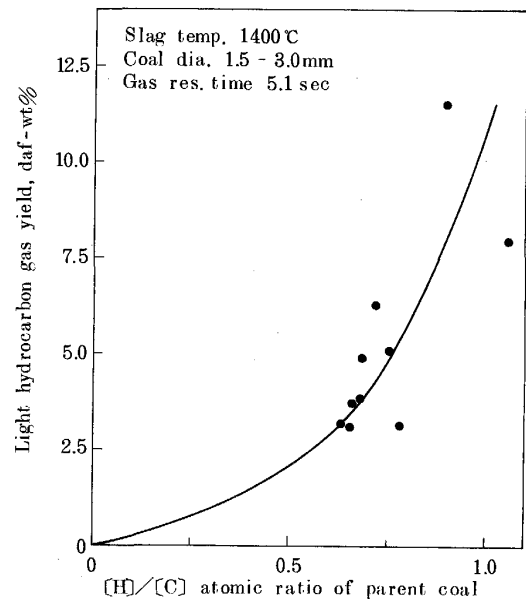


Fig. 8. Relation between light hydrocarbon gas yield and [H]/[C] ratio in coal.

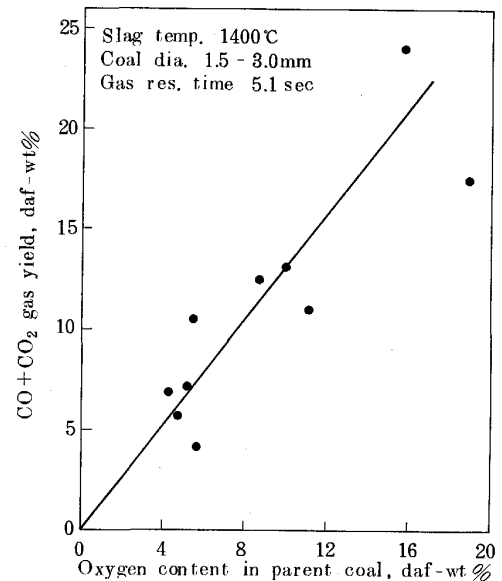


Fig. 9. Relation between CO + CO<sub>2</sub> gas yield and [O] in coal.

H<sub>2</sub>O は、溶融還元相当の高温では、ほぼシフト反応の平衡組成に近くなると考えられる。

Fig. 11 に熱分解生成ガスの炉内滞留時間のガス収率に及ぼす影響を示す。炉内ガス滞留時間が、2.5 s から 10 s に長くなると、ガス収率は増加する。増加するガス成分は、CO および H<sub>2</sub> であり、軽質炭化水素ガスは、やや減少する方向にある。これは、炉内高温場での揮発分の二次反応を示すものである。

熱分解で生成した H<sub>2</sub>O によるタール、炭化水素ガスのリフォーミング反応、タール、炭化水素ガスのクラッ

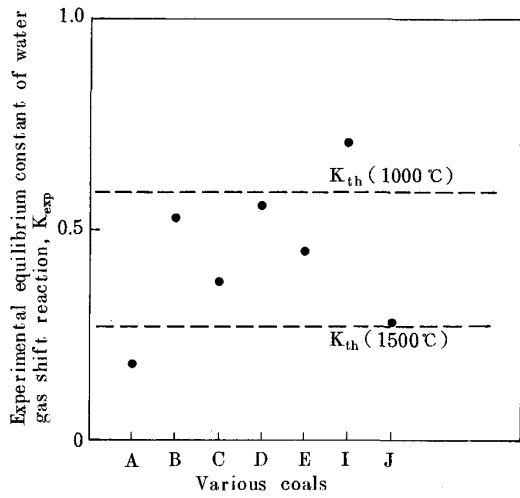


Fig. 10. Comparison between experimental and theoretical equilibrium constants of water gas shift reaction.

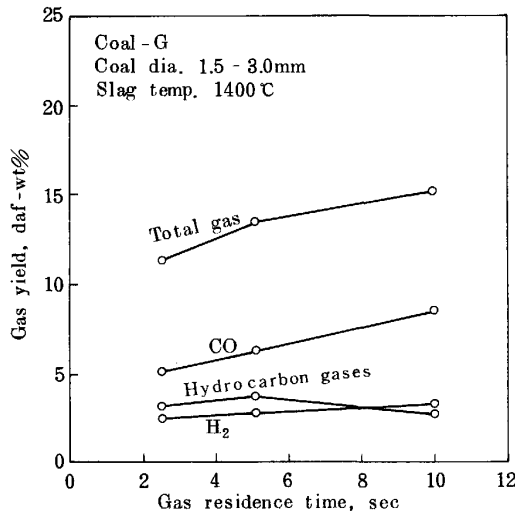


Fig. 11. Effect of gas residence time on gas product yield.

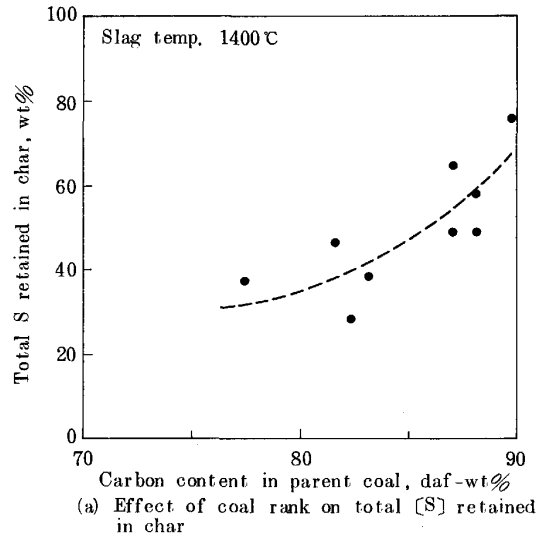
キングおよびポリマー化反応が滞留時間とともに進行している。

### 3.3 石炭中 [S] および [N] の熱分解生成物への分配挙動

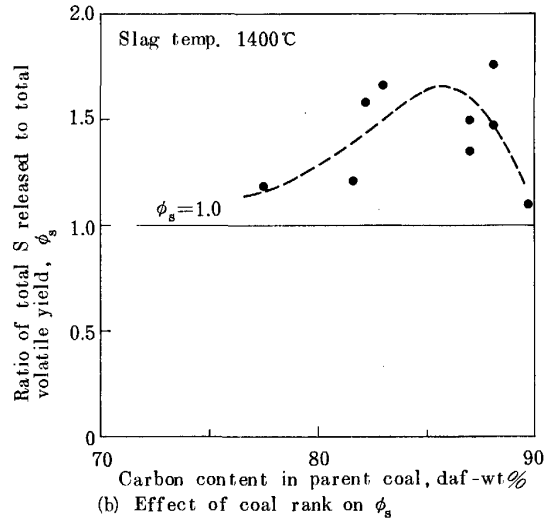
石炭中の [S] や [N] 元素が、急速熱分解によって、どのように揮発分およびチャー中に分配されるかを知ることが、溶銑品質を考える上で重要である。

Fig. 12 (a) および 13 (a) に石炭中の Total-[S] (Organic-S + Inorganic-S) と [N] 元素の残留チャーに保持された割合を  $[C]_{daf}$  に対して、それぞれ示している。

石炭中 [S] のチャーに保持されている割合は、30~70 wt% で石炭中 C 含有量の少ない低炭化度の石炭ほどチャー中に残留する [S] の割合が少なくなる。石炭



(a) Effect of coal rank on total [S] retained in char



(b) Effect of coal rank on  $\phi_s$

Fig. 12. Behavior of total [S] in various coals under conditions of pyrolysis on molten slag.

中 [N] も 20~80 wt% で同様の傾向がある。これは、低炭化度の石炭ほど揮発分の発生量が多くなることから、揮発分として放出される [S] や [N] の割合が多くなるのは、当然の傾向と言えよう。

揮発分としての放出される [S] および [N] の放出されやすさの目安として、 $NEOH^{(6)}$ と同様に以下の規格化した指標を定義する。

$$\Phi_{S,N} = \frac{\text{揮発分中に放出される [S] or [N] の wt\%}}{\text{全揮発分発生重量割合, wt\% daf-coal}} \dots\dots\dots (2)$$

Fig. 12 (b) および 13 (b) に  $[C]_{daf}$  に対して、 $\Phi_S$ ,  $\Phi_N$  の値をそれぞれ示しているが、いずれの石炭も、1.0 を超えている。これは、[S], [N] がチャー中に保持されるより、揮発分として放出されやすい傾向を持つことを表している。また、石炭のランクによりその値は差異があり、 $[C]_{daf}$  が 85% 程度の石炭において、ピークを示

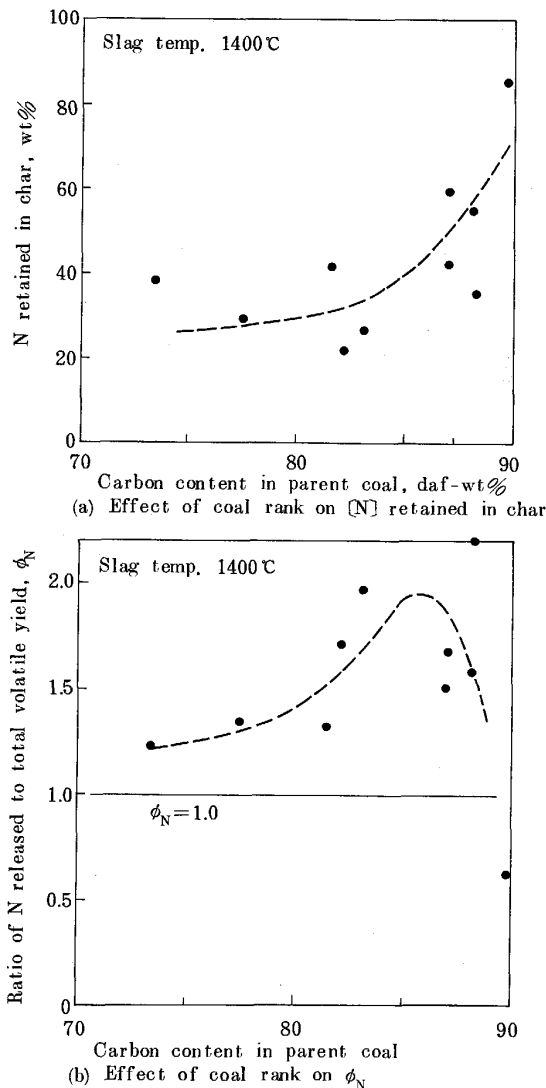


Fig. 13. Behavior of [N] in various coals under conditions of pyrolysis on molten slag.

すようになる。NEOHらの実験では、 $\phi_S$ 、 $\phi_N$ の値は2400 Kにおいても、1.0を超えず、本実験結果とかなり相違するが、この相違は、NEOHらの実験が高温下での石炭の滞留時間が非常に短い（～msのオーダー）実験であるということに起因していると思われる。POHLら<sup>14)</sup>は、低速加熱、滞留時間の長い実験条件下において、チャーの生成量があまり変化しないのに対して、高温ほどチャー中[N]の含有量が減少し、2000°Cではほぼゼロになるという結果を示している。著者らのチャー中[N]の残留傾向に近い結果を得ている。

チャー中の[S]、[N]の放出は、チャーの高温場での滞留時間の影響を受け、溶融還元反応条件下では、揮発分への放出が多くなり、チャー中の残留は少なくなる。

#### 4. 結 言

溶融スラグ浴上で、種々の石炭の急速熱分解反応実験

を行い、反応生成物を定量的に把握することで、以下の点が明らかになった。

(1) 溶融スラグ浴上における石炭熱分解時の揮発分発生量は、工業分析値の揮発分比べて、10～20%増となる。溶融還元条件下では、揮発分発生量は以下の式で推測できる。

$$V^* = -2.148[C]_{daf} + 217.8$$

(2) 石炭揮発分発生量の石炭粒径・スラグ温度の影響は、粒径0.8～7.0 mm、温度1350～1500°Cの実験範囲では大きくない。

(3) 石炭揮発分中のガス成分は、主にCO、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>～C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>であるが、このうち、軽質炭化水素ガスのCH<sub>4</sub>～C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>発生量は、石炭中[H]/[C]の比により予測できる。また、含酸素化合物のCO、CO<sub>2</sub>の発生量は、石炭中[O]元素含有量が大きいくほど大きくなる。これらのガスは、水性ガスシフト反応の平衡組成に近くなる。

(4) 炉内ガス滞留時間が長くなると、ガス発生量が多くなり、H<sub>2</sub>およびCO成分が増加する傾向になる。

(5) 石炭中[S]、[N]のうち、生成チャーに残留する[S]、[N]の割合は、ランクの高い石炭ほど多くなる。揮発分への放出されやすさの指標である $\phi_{S,N}$ は、いずれの石炭も1.0を超え、[C]<sub>daf</sub> = 85%近傍の石炭でピークとなる。

#### 文 献

- 1) 松尾充高, 斎藤 力, 片山裕之, 平田 浩, 小川雄司: 鉄と鋼, **76** (1990), p. 1879
- 2) D. B. ANTHONY and J. B. HOWARD: AIChE J., **22** (1976), p. 625
- 3) G. R. GAVALAS: Coal Pyrolysis (1982)[Elsevier]
- 4) C. Y. WEN and S. DUTTA: Coal Conversion Technology, ed. by C. Y. WEN and S. LEE (1979), p. 57 [Addison-Wesley]
- 5) D. I. CLIFF, K. R. DOOLAN, J. C. MACKIE and R. J. TYLER: Fuel, **63** (1984), p. 394
- 6) K. G. NEOH and R. E. GANNON: Fuel, **63** (1984), p. 1347
- 7) S. S. TAMHANKAR, J. T. SEARS and C. Y. WEN: Fuel, **63** (1984), p. 1230
- 8) W. R. SEEKER, G. S. SAMUELSON, M. P. HEAP and J. D. TROLINGER: Eighteenth Symposium (International) on Combustion (1981), p. 1213 [The Combustion Institute]
- 9) N. C. BECK and A. N. HAYHURST: Combustion & Flame, **79** (1990), p. 47
- 10) R. H. ESSENHIGH: J. Eng. Power, **85** (1963), p. 183
- 11) P. K. AGARWAL: Fuel, **65** (1986), p. 803
- 12) W. C. XU and A. TOMITA: Fuel, **66** (1987), p. 627
- 13) W. C. XU and A. TOMITA: Fuel, **66** (1987), p. 632
- 14) J. H. POHL and A. F. SAROFIM: Sixteenth Symposium (International) on Combustion (1977), p. 491 [The Combustion Institute]