

ガス吹込み攪拌における乱流流動と気-液間物質移動

谷口 尚司*・松倉 良徳*²・菊池 淳*

Turbulent Flow and Gas-Liquid Mass Transfer in Gas-injected System

Shoji TANIGUCHI, Yoshinori MATSUKURA and Atsushi KIKUCHI

Synopsis : The fluid flow and gas-liquid mass transfer in a water model of gas-injected ladle were analyzed by a numerical simulation of turbulent flow and mathematical models on mass transfer. In the fluid flow simulation, a single-phase model was adopted, in which the turbulent diffusion of bubbles was assumed. The computed average dissipation rates agreed well with the energy-input rates due to the work done by bubbles. The volumetric coefficients in the bubble dispersion zone and free surface zone were estimated by the eddy-cell model and penetration model, and compared with the observed results. The eddy-cell model gave better prediction of volumetric coefficients in the bubble-dispersion zone than the penetration model. On the other hand, both models did not predict well the volumetric coefficients at the free surface; the eddy-cell model gave larger values and the penetration model gave smaller values than the observed values. This was thought to be attributable to the fluctuating motion of the free surface, which consumed turbulence energy and decreased the energy dissipation rate required for the surface renewal.

Key words : gas injection; fluid flow; mass transfer; k - ϵ model; bubble-dispersion model; eddy-cell model.

1. 緒言

溶鋼へのガス吹込みは多くの鉄鋼精錬プロセスで重要な役割を果たしている。ガス吹込みによって実現する機能には溶鋼の攪拌・混合の迅速化、各種精錬反応の促進、介在物の浮上分離などが挙げられる。これらの機能を詳細に検討し、機能の高効率化を追求するために、ガス吹込みによる溶鋼流動に関する計算機シミュレーションと、その結果を定量評価するための水モデル実験が近年多く行われている。過去のシミュレーションは、気泡を含む液をガスホールドアップによって密度が変化する1つの相とみなしたものの¹⁻⁸⁾と、ガスと液とをそれぞれ独立の相として両者の間の相互作用を考慮したものの⁹⁻¹²⁾とに大別できる。前者には、あらかじめ気泡分散領域を一定の形状に固定して流れの式を解いたもの^{1-4,6,8)}と、流れの式と共に気泡の輸送方程式を解いたものがある^{5,7)}。また乱流モデルについては、槽内で一定の乱流粘性係数を与えたもの^{1,2,4,5)}があるが、最近の研究では k - ϵ モデルがよく用いられている。

一方、気-液間物質移動モデルに関しては、境膜説¹³⁾、Higbieの浸透説¹⁴⁾、Danckwertsの表面更新説¹⁵⁾の3つが最も基本的で、ガス吹込み攪拌系のように気-液界面の更新を伴うと考えられる場合には後者の2つのモデルが適用される。浸透説には定義の明確な気-液接触時間が含まれるため、冶金反応の解析に適用例が多い¹⁶⁾。しかし冶金反応系の融体の流れは乱流の場合がほとんどで、表面更新説に基づいた乱流物質移動モデルが適用されるべきと考えられ

る。しかし、乱流特性を十分考慮した物質移動モデルを適用した例は少ない^{17,18)}。

著者らはこれまで、水モデル実験槽を用いた流れの観察⁵⁾、ガスホールドアップ分布の測定¹⁹⁾および熱フィルム流速計による流速測定¹⁷⁾を行うとともに、乱流モデルに k - ϵ モデルを用い、著者らの気泡分散モデル¹⁹⁾と組合わせた解析モデルを開発し、それを用いた流動シミュレーションを行ってきた⁷⁾。また、気-液間物質移動についても水-炭酸ガス系の吸収および放散実験を行い²⁰⁾、全容量係数から気泡分散領域と液自由表面における容量係数とを分離して求め、それぞれの物質移動を解析してきた^{17,19)}。

以上の研究結果を踏まえ、本報では k - ϵ モデルに基づく流動計算と乱流物質移動モデルとを組合わせた解析により、ガス吹込み条件下の気-液間物質移動特性を詳細に検討することを目的とした。

2. 解析方法

2.1 流動解析

流動解析の基礎式および解析法の詳細は前報⁷⁾に詳述されているので、ここではその概要のみを示す。流れは定常かつ軸対称で、液面は平坦と仮定した。気泡を含む液を単相とみなし、その密度は気泡率に応じて変化するものとした。乱流モデルには標準の k - ϵ モデル²¹⁾を適用した。基礎式は密度変化を考慮した連続の式、 r および z 方向のNavier-Stokesの式、乱流分散を考慮した気泡の輸送方程式

平成11年6月30日受付 平成11年9月20日受理 (Received on June 30, 1999; Accepted on Sep. 20, 1999)

* 東北大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Tohoku University, 02 Aza-Aoba Aramaki Aoba-ku Sendai 980-8579)

* 2 東北大学大学院生 (現:住友金属工業 (株)) (Graduate Student, Tohoku University, now Sumitomo Steel Industries, Ltd.)

(z方向の気泡の速度は流体の速度に気泡の終末速度を加算した速度を用いた)¹⁹⁾, k および ε の輸送方程式で構成される。なお, k および ε の輸送方程式中の乱流生成速度 G には, (1)式で表される生成速度に, (2)式の気泡と液との相対運動による乱流生成速度 G_B を加えたものを用いた²²⁾。

$$G = \mu_t \left[2 \left\{ \left(\frac{\partial u}{\partial r} \right)^2 + \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{u}{r} \right)^2 \right\} + \left(\frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 \right] - \frac{2}{3} \mu_t (\nabla \cdot \mathbf{v})^2 \quad (1)$$

$$G_B = \rho_L \sigma g v_B \quad (2)$$

ここに u, v は r および z 方向の時間平均流速, σ は局所ガスホールドアップ, v_B は気泡の液に対する相対速度(終末速度)である。

基礎式を流れ関数および渦度を用いて変形し, upwind法で差分化後, 緩和法によって解いた。

2・2 物質移動モデル

ガス吹込み攪拌系における気液間物質移動は, 気泡分散領域と液自由表面領域の2領域で進行する。それぞれの領域の液側物質移動を以下のように解析した。本研究では, 気液間物質移動モデルとして浸透説¹⁴⁾と, 表面更新説¹⁵⁾に準拠したEddy-cellモデル²³⁾の2つを適用した。浸透説による液側物質移動係数は次式で表される。

$$k_L = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D}{\tau}} \quad (3)$$

ここに, τ は気-液接触時間, D は拡散係数である。気泡が球形で液自由表面が平坦であると仮定すれば, k_L は気泡および液自由表面のそれぞれについて(4)および(5)式で与えられる。

$$k_{L,B} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D v_B}{d_B}} \quad (4)$$

$$k_{L,S} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D u_S}{r_1}} \quad (5)$$

ここに u_S は液自由表面の半径方向の平均速度, d_B は気泡径, r_1 は槽の半径を表す。

表面更新説による物質移動係数は次式で与えられる。

$$k_L = \sqrt{D \cdot s} \quad (6)$$

ここに s は表面更新速度であり, 全表面積に対して単位時間あたりに更新される表面積の割合を表す。片岡と宮内²⁴⁾は乱流の最小渦による表面更新頻度が最も大きいとし, 物質移動係数の理論値を求めた。彼らは表面更新速度 s を次式で与えた。

$$s = \frac{\text{velocity of eddy}}{\text{size of eddy}} = \frac{u'}{\lambda} \quad (7)$$

Kolmogoroffによれば, 最小渦の代表速度 u' および渦スケール λ は次式で与えられる。

$$u' \approx (\varepsilon \cdot \nu)^{1/4} \quad (8)$$

$$\lambda \approx (\nu^3 / \varepsilon)^{1/4} \quad (9)$$

これより物質移動係数は次式で与えられる。

$$k_L = c(\varepsilon / \nu)^{1/4} D^{1/2} \quad (10)$$

片岡らは係数 c の理論値として0.5を与えている。この式は汚染のない乱流域の水流自由表面からのガス吸収によくあてはまる。一方, LamontとScott²³⁾は慣性小領域から最小渦に至るすべてのスケールの渦が更新に寄与すると考え, (10)式と同形の式を導いた。このモデルはEddy-cellモデルと呼ばれる。彼らのモデルでは(10)式の係数 c の値は示されていないが, 渦径分布を考慮している点で片岡らのモデルよりも進展しているといえよう。著者らは高周波誘導攪拌下の溶鉄自由表面からの窒素吸収の液側物質移動係数に(10)式がよく適合することを見出している²⁵⁾。他にも大きな渦による表面更新が支配的と考えたFortescueらのLarge Eddy Model²⁶⁾, 最小渦による更新に表面張力の影響を考慮したDobbinsらのモデル²⁷⁾, 表面張力による界面更新の抵抗を考慮したDaviesのモデル²⁸⁾などがあるが, 物質移動に対して表面張力が影響するのは界面が汚染されている場合であると言われている²⁴⁾。

本報では物質移動モデルとして(1)~(3)式の浸透説と(10)式のEddy-cellモデルの2つを選び, 前述の数値解析によって得られた流れの計算結果を用いて物質移動係数の理論値を導出し, それを前報の実測値と比較, 検討した。

3. 実験

3・1 気-液間物質移動の実験

本報で計算結果と比較する物質移動に関する実験結果は前報^{17,20)}に詳しく述べられているので, ここでは実験方法の概要のみ示す。Fig. 1に気-液間容量係数の測定に用いた装置を示す。容器はアクリル製の円筒容器で, 底部の中心に設けた内径6mmのノズルから窒素または炭酸ガスが水中に吹き込まれる。槽の上部空間に設けたノズルからもガスが供給できるようになっている。上部空間にはガスの組成を均一にするための攪拌器が取り付けられている。また槽の側壁には液採取用のガラス管が2カ所に取り付けられている。実験は以下の条件で行った。槽半径 $r_1=0.145$ m, 液高さ $z_1=0.200$ m, 底吹きガス流量 $q_G=(16.7-167) \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ 。

実験は初めに水への純炭酸ガスの吸収を行い, (11)式で

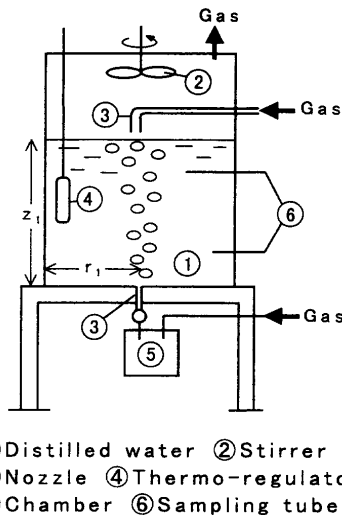


Fig. 1. Experimental apparatus used for the measurement of volumetric coefficient of CO₂ absorption in water.

定義される全容量係数を求めた。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{k_L A}{V} (C_e - C) \dots\dots\dots(11)$$

ここにCは液中の炭酸ガス濃度、C_eは液中の平衡炭酸ガス濃度、tは時間、Aは気-液界面積、Vは液の体積である。この全容量係数には気泡分散領域と液自由表面の2領域の容量係数が含まれる。

$$k_L A = (k_L A)_B + (k_L A)_S \dots\dots\dots(12)$$

これらの容量係数を分離して求めるために以下のような実験を行った。Fig. 1の装置において槽底部から炭酸ガスを吹込み、上部空間に窒素を吹き流す。このとき、液中炭酸ガス濃度の時間変化は次式で記述される。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{k_L A}{V} [\alpha(C_e - C) + (1-\alpha)(C_{eS} - C)]; \quad \alpha = \frac{(k_L A)_B}{k_L A} \dots\dots(13)$$

ここにC_{eS}は上部空間におけるガス濃度に平衡する液中炭酸ガス濃度で、槽に供給した炭酸ガスと窒素のガス流量から求められる。初めの実験で求めたk_LAの実測値を(13)式に代入し、種々のαを仮定して得られる濃度の経時変化と実測値とを比較して、両者が最もよく一致するαを決定した。そのαから(k_LA)_Bを求めた。

この実験から同時に得られる(k_LA)_Sには(k_LA)_S ≪ (k_LA)_Bの場合に大きな誤差が含まれる。そこで(k_LA)_Sを精度よく求めるために、槽底部から窒素を吹込み、上部空間に炭酸ガスを供給して濃度の経時変化を求めた。その濃度変化を(14)式の計算値と比較して(k_LA)_Sを求めた。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{k_L A}{V} [-(1-\beta)C + \beta(C_{eS} - C)]; \quad \beta = \frac{(k_L A)_S}{k_L A} \dots\dots\dots(14)$$



Fig. 2. Visualized flow pattern. (q_G = 167 × 10⁻⁶ m³ s⁻¹)

3・2 液面変動の測定

ガス吹込みに伴う液面変動は気液間物質移動と密接に関係すると考えられる。しかし従来の液自由表面形状に関する研究では時間平均の形状を検討した例はあるが^{29,30)}、液面変動を検討した例は少ない。そこで、液面のビデオ撮影によりガス吹込み条件下における液面の動的挙動を測定した。実験方法は以下の通りである。通気攪拌槽の上部からスリットを通したシート状の光を照射し、線状に照らされた液面の映像をシート光と直角方向からビデオカメラで撮影する。記録された映像を1コマずつ再生し、各画像からデジタイザーで液面位置をパーソナルコンピュータに取り込む。取り込んだ情報から10秒間にわたる時間平均の液面形状、変動の振幅、変動速度をそれぞれ算出した。また液面形状を軸対称と仮定して、1コマごとに気液界面積の概略値を算出し、これを平均して界面積の時間平均値を求めた。

4. 結果および考察

4・1 流れ

4・1・1 フローパターンとガスホールドアップ分布

Fig. 2にトレーサ法を用いて撮影した槽内の流動状態の1例を示す。槽内には時計回りの大きな循環流と側壁の下部に流れの緩やかなよどみ領域が認められる。また、気泡分散領域は上部ほど広がっている。

Fig. 3と4にフローパターンおよび局所ガスホールドアップ分布の計算結果を示した。これらの計算結果はFig. 2の観察結果をよく表現している。

Fig. 5に局所ガスホールドアップの半径方向分布の実測値と計算値とを比較して示した。計算値は実測値とほぼ一致している。

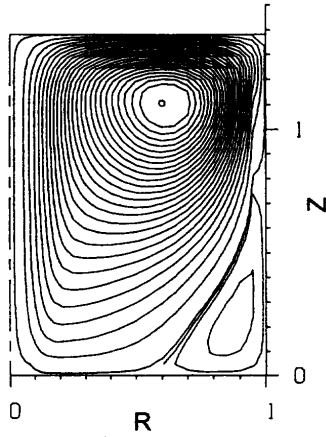


Fig. 3. Computed flow pattern. ($q_G=167 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$)

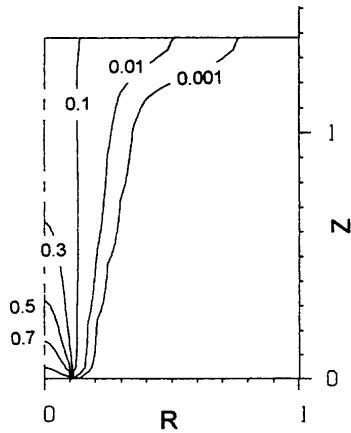


Fig. 4. Computed gas-holdup distribution. ($q_G=167 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$)

4.1.2 攪拌動力密度とエネルギー散逸速度

(15)式で与えられるガス吹込みにおける攪拌動力密度 $\dot{\epsilon}$ は、冶金容器内の混合状態の指標として広く用いられている³¹⁾。

$$\dot{\epsilon} = \frac{Pq_G}{\pi r_1^2 z_1 \rho_L} \ln \left(1 + \frac{\rho_L g z_1}{P} \right) \dots \dots \dots (15)$$

ここにPは液自由表面の圧力、 q_G はガス流量、 r_1 は槽半径、 z_1 は液高さ、 ρ_L は液密度、 g は重力加速度を表す。 $\dot{\epsilon}$ は気泡の膨張による仕事量で、これによって容器内の攪拌が行われる。乱流理論によれば系に加えられた仕事量は、まず大規模な流れの生成に使われ、次第に小規模の渦にカスケード的に伝達されていく。(9)式で示されるKolmogoroffの最小渦までエネルギー伝達が進むと、初めに加えられた仕事は粘性の作用で熱となって消散する。このエネルギー消散速度が ϵ に対応する。したがって、系が定常状態であれば $\dot{\epsilon}$ と槽内の ϵ の平均値 $\bar{\epsilon}$ とは同一の値をとるはずである。

$\bar{\epsilon}$ と(15)式の $\dot{\epsilon}$ とを比較したものをFig. 6に示した。図には(1)式で示される平均速度勾配による乱流生成速度Gのみを考慮した場合と、Gに(2)式で示される気泡の上昇に

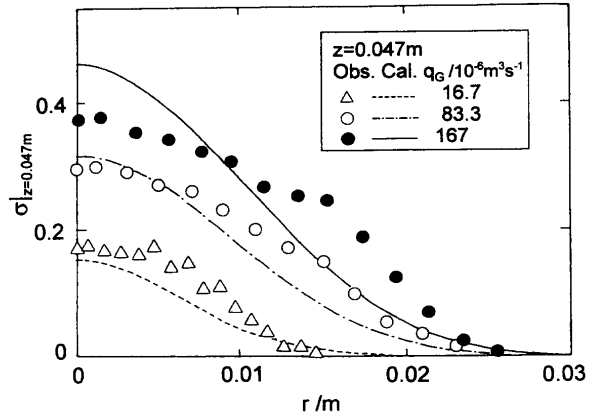


Fig. 5. Comparison between observed and calculated radial distribution of local gas-holdup.

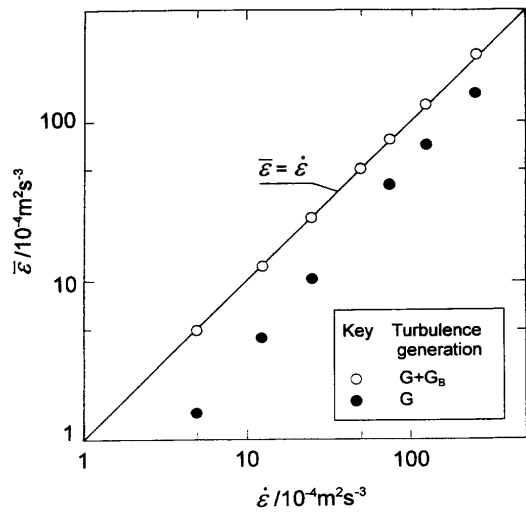


Fig. 6. Relation between computed energy-dissipation rate and stirring power density.

よる乱流生成速度 G_b を加えた場合のそれぞれについて結果を示した。図より気泡による乱流生成を考慮した場合には $\bar{\epsilon}$ は $\dot{\epsilon}$ とよく一致している。これより本報で展開した解析方法の妥当性が確認できるとともに、乱流を伴う複雑な装置内流動現象を(15)式のような単純な指標によって表しうることが計算の上からも確かめられた。

4.2 気-液間物質移動

全容量係数から分離して求めた気泡分散領域の容量係数 $(k_L A/V)_B$ とガス流量との関係をFig. 7に示した。図には層流と乱流の2つの物質移動モデルによって推算した計算値も合わせて示した。両モデルによる $(k_L A/V)_B$ の計算値は以下のように求めた。槽内の気泡の比表面積 (A/V) は数値計算から得られる局所ガスホールドアップの平均値 $\bar{\sigma}$ と気泡径 d_B より、 $(6/d_B)\bar{\sigma}$ として求められる。この比表面積と(4)式の $k_{L,B}$ を乗じて、浸透説に基づく容量係数を算出した。Eddy-cellモデルについては、(10)式で ϵ の計算値より $k_{L,B}$ を求め($c=0.5$)、これに比表面積の局所値 $(6/d_B)\bar{\sigma}$ を乗じ、それを槽内で積分平均することによって算出した。

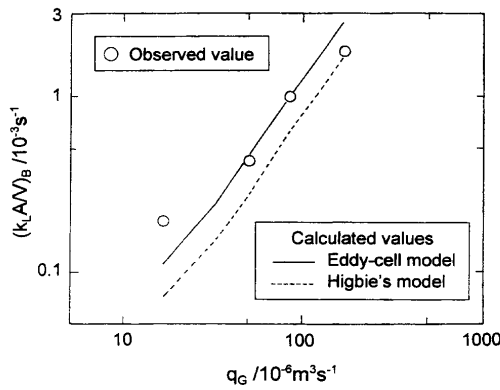


Fig. 7. Comparison between observed and calculated volumetric coefficients in bubble-dispersion zone.

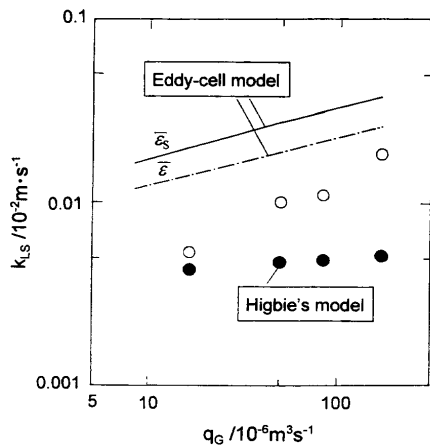


Fig. 8. Comparison between observed and calculated mass-transfer coefficients at free surface of water.

Fig. 7より、Eddy-cellモデルによる容量係数の計算値は、実測値より流量依存性が大きい傾向があるものの、中間のガス流量域では実測値とよく一致している。一方、浸透説による容量係数は、Eddy-cellモデルのそれより50%程度小さくなっている。著者らは前報^{19,20)}で気泡-液間物質移動の解析に浸透説を適用したが、Eddy-cellモデルの方が本系の物質移動を適切に表現できている。

次に液自由表面における容量係数について検討する。後述の自由表面形状のビデオ撮影結果から自由表面の面積を求めたところ、液面の変形による表面積の増加率は $167 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ の最大ガス流量において10%程度であった。そこで液面を平坦とみなして物質移動係数を求め、それをFig. 8に計算値とともに示した。Eddy-cellモデルによる k_{LS} の計算値はガス流量の約1/4乗に比例しており、自由表面の消散速度の平均値 $\bar{\epsilon}_s$ から求めた k_{LS} の方が $\bar{\epsilon}$ から求めた k_{LS} よりも約40%大きい。一方、浸透説による k_{LS} は、トレーサを用いた自由表面流速の実測値¹⁷⁾から(5)式を用いて算出したものであるが、その値は実測値よりも小さく、ガス流量依存性も非常に小さい。実測値はガス流量に対してほぼ0.5次の依存性を示し、低流量では浸透説に近く、大流量ではEddy-cellモデルに近づいている。

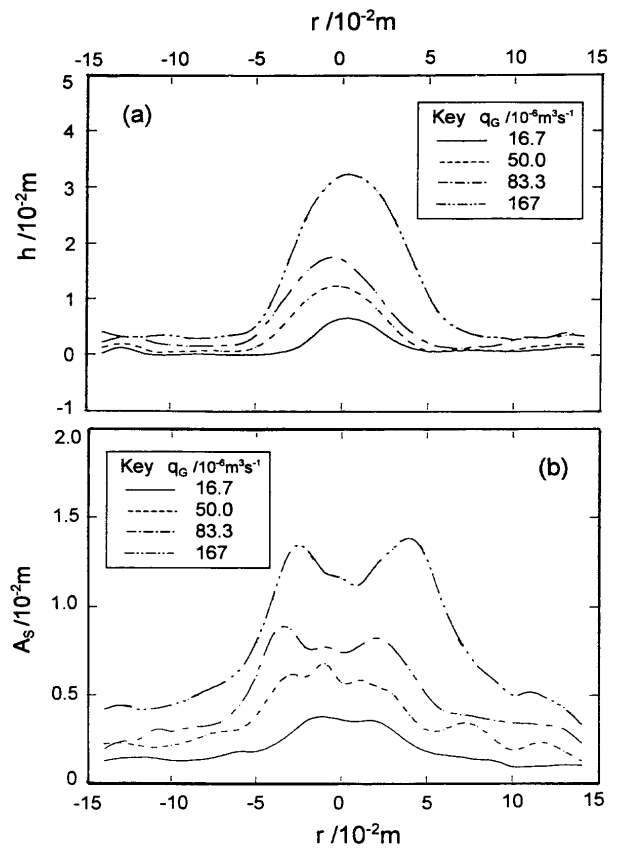


Fig. 9. Time-averaged free surface profile and amplitude of vertical oscillation.

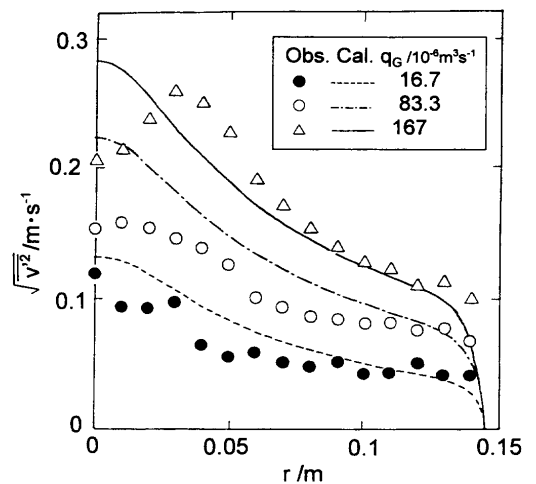


Fig. 10. Comparison between observed and calculated oscillating velocities of free surface.

気泡分散領域の物質移動に適用できたEddy-cellモデルが自由表面の物質移動に適用できない理由は現時点では十分明らかではないが、自由表面の変動特性の検討を通してその理由を考察してみる。

4.3 自由表面の変動特性

ビデオ撮影によって求めた時間平均の液面形状とその変動の平均振幅をFig. 9(a), (b)に示した。変動の平均振幅の分布に、大流量域で2つのピークが見られるが、これは大

流量域で気泡噴流が旋回するためと考えられる。

つぎに Fig.10には液面の上下運動から求めたz方向速度の実効値の分布を示した。図中に示した計算値は、k-εモデルによる流動計算から得た自由表面の乱流エネルギーの計算値 k_s から、(16)式で算出したz方向の乱流変動速度の実効値である。

$$v'_{rms} \equiv \sqrt{v'^2} = \sqrt{\frac{2}{3} k_s} \dots\dots\dots(16)$$

図より液面の変動速度の実測値は計算値と大略一致している。このことは液面の波動が表面乱流により生成することを示している。本研究における最小流量($q_G=16.7 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$)の場合にも計算値と実験値の一致が良好であることから、槽内の流動は発達した乱流状態にあると推定できる。したがって、前述の Fig. 8で低流量域における物質移動係数が浸透説に近かったのは、流れが層流に近いのではないと考えられる。

自由表面に波動(乱流による不規則波)を生成するためにはエネルギーが必要である。したがってこの波動を持続させるためには、系に投入された攪拌動力の一部が波動エネルギーの散逸分を補うために消費されるはずである。いま自由表面の変動速度が乱流変動速度と等しく、変動の幅2Aが乱流の渦スケール Λ と等しいとみなすことができれば、(17)式⁹⁾の関係から自由表面における波立ちのエネルギー散逸速度を見積もることができる。

$$\Lambda = C_D^{3/4} k^{3/2} / \epsilon \dots\dots\dots(17)$$

ここに $C_D = 0.09$ である。

(17)式より次式が得られる。

$$\epsilon_{S, wave} = C_D^{3/4} \left(\frac{3}{2}\right)^{3/2} \frac{v'_{rms}{}^3}{2A_S} = 0.151 \frac{v'_{rms}{}^3}{A_S} \dots\dots\dots(18)$$

この $\epsilon_{S, wave}$ と k-εモデルによる流動計算から得た自由表面のエネルギー散逸速度の計算値 ϵ_s を、自由表面全面にわたって積分平均し、その結果を Table 1に比較して示した。表より $\bar{\epsilon}_{S, wave}$ と $\bar{\epsilon}_s$ とは同程度の値であり、系に投入された攪拌動力のかなりの割合が表面波動に費やされているものと推定できる。

いま、 $\bar{\epsilon}_s$ から $\bar{\epsilon}_{S, wave}$ を差し引いた分が表面更新に使われるとすれば、 $q_G=16.7 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ の場合には乱流渦による表面更新は起こり得ず、 q_G の増加につれて次第に表面更新が起こるようになるものと考えられる。この仮説は Fig. 8の結果と矛盾しない。気-液間物質移動に及ぼす表面波動の役割についてはさらに詳細な研究が必要である。

5. 結言

本報ではガス吹込み攪拌されている円筒容器内の流動と

Table 1. Energy-dissipation rate for free-surface fluctuation.

$q_G / 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$	$\bar{\epsilon}_s / 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-3}$	$\bar{\epsilon}_{S, wave}$	$\bar{\epsilon}_s - \bar{\epsilon}_{S, wave}$
16.7	87	144	-57
50.0	309	182	127
83.3	536	294	242
167.0	1137	817	320

気-液間物質移動について主に理論的に検討することを目的とした。

まず、k-εモデルと気泡分散モデルとを組み合わせ、さらに気泡による乱流生成を考慮した新しい流動解析モデルを展開した。そのモデルによる槽内のフローパターンとガスホールドアップの分布に関する計算結果を示した。計算結果は実験結果とほぼ一致した。また計算で得た乱流エネルギー消散速度の槽内平均値は攪拌動力密度とよく一致し、微視的な計算と巨視的な収支が互いに一致することが確かめられた。

次に、気泡分散領域と液自由表面領域のそれぞれで得た容量係数の実測値を、各種の物質移動モデルを流動の計算結果と組合わせた理論値と比較した。気泡分散領域の容量係数は乱流モデルである Eddy-cellモデルでほぼ表されたが、自由表面の物質移動係数はこのモデルでは表されなかった。

最後に液自由表面の波立ちの挙動を測定し、流動解析から求めた表面乱流と比較したところ、両者はほぼ一致した。さらに液面の波立ちにエネルギー消費が起きることを前提として、自由表面の物質移動について考察した。

本研究の遂行にご協力いただいた、東北大学工学部金属工学科 和泉荘輔技官に謝意を表します。

文 献

- 1) T. Deb Roy, A.K. Majumdar and D.B. Spalding: *Appl. Math. Model.*, **2** (1978), 146.
- 2) T. Deb Roy and A.K. Majumdar: *J. Met. Mass Transfer*, **25** (1982), 487.
- 3) Y. Sahai and R.I.L. Guthrie: *Metall. Trans. B*, **13B** (1982), 203.
- 4) M. Salcudean, K.Y.M. Lai and R.I.L. Guthrie: *Can. J. Chem. Eng.*, **63** (1985), 51.
- 5) N. Bessho, S. Taniguchi and A. Kikuchi: *Tetsu-to-Hagané*, **71** (1985), 1117.
- 6) J.S. Woo, J. Szekely, A.H. Castillejos and J.K. Brimacombe: *Metall. Trans. B*, **21B** (1990), 269.
- 7) A. Kikuchi: *Computer Aided Innovation of New Materials II*, ed. by M. Doyama *et al.*, Elsevier, Amsterdam, (1993), 1707.
- 8) M. Zhu, T. Inomoto, I. Sawada and T. Hsiao: *ISIJ Int.*, **35** (1995), 472.
- 9) S.T. Johansen, F. Boysan and T.A. Engh: *Proc. of 4th Japan-Nordic Countries Joint Symp. on Science and Technology of Process Metallurgy*, ISIJ, Tokyo, (1986), 182.
- 10) I. Sawada and T. Ohashi: *Tetsu-to-Hagané*, **73** (1987), 669.
- 11) O.J. Illegbusi and J. Szekely: *ISIJ Int.*, **30** (1990), 731.
- 12) H. Turkoglu and B. Farouk: *ISIJ Int.*, **31** (1991), 1371.
- 13) W.K. Lewis and W.G. Whitman: *Ind. Eng. Chem.*, **16** (1924), 1215.
- 14) J.O. Higbie: *Trans. Am. Inst. Chem. Engrs.*, **31** (1935), 65.
- 15) P.V. Danckwerts: *Ind. Eng. Chem.*, **43** (1953), 1460.

- 16) R.I.L.Guthrie: *Engineering in Process Metallurgy*, Clarendon Press, Oxford, (1993), 317.
- 17) S.Taniguchi, Y.Okada, A.Sakai and A.Kikuchi: *Proc. of the 6th Int. Iron and Steel Congress*, vol. 1, ISIJ, Tokyo, (1990), 394.
- 18) M.Hirasawa, K.Mori, M.Sano, Y.Simatani and Y.Okazaki: *Tetsu-to-Hagané*, **73** (1987), 1350.
- 19) S.Taniguchi, A.Kikuchi, H.Matsuzaki and N.Bessho: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **28** (1988), 262.
- 20) N.Bessho, S.Taniguchi and A.Kikuchi: *Tetsu-to-Hagané*, **71** (1985), 1623.
- 21) D.B.Spalding: *VDI Forschungsh.*, **38** (1972), 5.
- 22) S.T.Johansen and F.Boysan: *Metall. Trans. B*, **19B** (1988), 755.
- 23) J.C.Lamont and D.S.Scott: *AIChE J.*, **16** (1970), 513.
- 24) H.Kataoka and T.Miyauchi: *Kagaku Kogaku*, **33** (1969), 181.
- 25) S.Taniguchi, A.Kikuchi and S.Kobayashi: *Mater. Trans., JIM*, **37** (1996), 932.
- 26) G.E.Fortescue and J.R.A.Pearson: *Chem. Eng. Sci.*, **22** (1967), 1163.
- 27) W.E.Dobbins: *J. San. Eng. Div., Proc. of ASME*, **90** (1964), 53.
- 28) J.T.Davies, A.A.Kilner and G.A.Ratcliff: *Chem. Eng. Sci.*, **19** (1964), 583.
- 29) Y.Higuchi and J.K.Brimacombe: *CAMP-ISIJ*, **6** (1993), 1042.
- 30) Y.Kishimoto, G.A.Irons and J.S.Chang: *CAMP-ISIJ*, **7** (1994), 1092.
- 31) D.Mazumdar and R.I.L.Guthrie: *ISIJ Int.*, **35** (1995), 1.