

배치형 내부 사이클론식 순환유동층 연소로내 2차 공기 주입에 의한 슬러지 소각 유해 배가스 저감효과

장석돈* · 신동훈** · 황정호*

Effect of Secondary Air Injection on Emission from Sludge Incineration in a Batch-type Internally Cycloned Circulating Fluidized Bed Combustor

Seuk Don Jang, Dong Hoon Shin and Jung Ho Hwang

ABSTRACT

Combustion performance of an internally cycloned circulating fluidized bed for paper sludge was discussed through a series of batch type experiments. Operation parameters such as water content, feeding mass of sludge and secondary air injection rate were varied to find out the effect on the combustion performance, which was examined with carbon conversion rate and pollutant emission such as CO and NOx. A conventional solid fuel reaction was observed in the experiments of varying water content and feeding mass of the sludge, which is characterized with kinetic limited reaction zone, diffusion limited reaction zone and transition zone. Secondary air injection with swirl enhances the mixing of the gas phase as well as the solid phase, and improves combustion efficiency accompanied with higher carbon conversion rate and lower pollutant emission rate.

Key Words : ICCFBC(Internally Cycloned Circulating Fluidized Bed Combustor), SAR(Secondary Air Ratio), NOx, CO, Batch-type

1. 서론

인구증가와 고도의 산업발달에 따른 경제규모의 팽창으로 방대한 양에 달하는 하수 및 폐수의 양이 증가하고 있으며, 이에 따라 하·폐수 정화 처리과정에서 발생하는 슬러지의 양도 증가하고 있다. 슬러지(sludge)란 하수 및 폐수 처리 후 발생하는 2차 부산물로, 건조시 발열량이 3000~5000kcal/kg 정도로 높지만 발생시에는 70~80%의 많은 수분을 함유하고 있는 저급 고체연료로 볼 수 있다[1]. 슬러지는 상수, 공업용수, 하수, 폐수, 제지, 축산 등 발생원이 다양하며 심각한

환경 오염 문제를 야기시키고 있어 이에 대한 효율적인 처리가 시급히 요청되고 있다[2,3]. 슬러지의 처리방법에는 매립 및 해양투기, 연소(또는 소각) 등 다양한 방법이 있다. 그러나 수분이 70~80%로 높고 부패하기 쉬운 유기물 함량이 높아, 단순 매립시 악취발생, 침출수의 배출 등으로 인한 지하수 및 토양오염 등의 문제가 발생한다. 해양투기는 슬러지를 해양에 투기하기까지 관리, 저장, 운반 등의 과정에서 어려움이 많으며 2003년도부터는 해양환경보존을 위한 국제적인 협약에 따라 해양투기가 금지된다. 이와같이 기존의 방법의 문제점으로 인해 환경오염이 적고 경제적으로 슬러지를 처리할 수 있는 방법의 개발이 주요 환경 과제 중의 하나로 부각되고 있다.

일반적인 슬러지의 특징인 높은 수분함량(70~80%)은 안전한 소각처리의 방해요소로 작용하고

* 연세대학교 기계공학과

** 연세대학교 CT(Clean Tech.) 연구단

† 연락처자, E-mail: hwangjh@yonsei.ac.kr

있으며, 연소의 전단계 과정으로 수분을 증발시키는데 막대한 양의 열량이 필요하고 보조연료량이 많이 소모되는 것이 문제점이다. 유동층 연소로는 다른 연소로에 비해 함수율 높은 슬러지의 연소에 적합한 것으로 인정받아 최근 연구개발이 이뤄지고 있다.

유동층 연소로는 유동화의 구조 및 특성에 따라 기포 유동층(BFB, Bubbling Fluidized Bed)과 순환 유동층(CFB, Circulating Fluidized Bed)으로 나눌 수 있다. 순환 유동층은 유동화 가스의 속도가 기포 유동층에 비해 높아 고속의 공기 유속에 의해 입자가 순환되는 특징이 있다. 유동물질의 순환으로 연소로의 모든 부분으로 연소영역이 확대되고, 슬러지등의 난연성 물질의 연소에 적합하여 널리 활용되고 있다.

현재의 유동층 연소 방법은 슬러지 등을 탈수 및 건조한 후 연소시키거나 또는 연소로 내에서 보조 연료를 이용해 건조 및 연소를 동시에 병행하는 시스템이 대부분으로, 건조기 설치와 운영 또는 보조연료 비용 상승 등의 비효율적인 면이 내포되어 있다. 본 연구에서는 이런 문제점들을 해결하기 위해 연소가스와 순환유동사의 흐름이로 내에서 내부 원통(riser)과 외부 원통사이(annulus)를 점선방향으로 순환되게끔 제작한 내부 사이클론식 순환유동층 연소로를 개발하였다. 이는 기존의 내부 순환식 유동층 연소로[5,6]의 변형된 형태이며 일반 순환유동층 연소로보다 Riser의 높이가 현저하게 줄어드는 장점이 있으며, 또한 연소 가스와 유동사의 흐름이 이중으로 순환함으로써 로 내에서 건조 및 연소가 동시에 이루어져 함수율 높은 슬러지소각에 효과적인 것으로 예상되는 설비이다. 또한 유동층 연소로에 2차공기(secondary air)를 주입하여 연소 후 배출되는 NO_x, CO등의 공해물질을 제어하고[7-9] 연소 과정에서 혼합을 증대시켜 연소효율 향상을 도모하였다[10].

본 연구에서는 내부 사이클론식 순환유동층 연소로에서의 제지 슬러지의 연소 특성 및 공해물질 배출 특성을 파악하고, 2차 공기 주입의 공해제거효과를 확인하는 것을 목적으로 한다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 실험장치

본 연구에 사용한 내부 사이클론식 순환유동층 연소로(ICCFBC)의 흐름도는 Fig. 1과 같다. 실험장치는 압축공기 공급부, 공기 유량계 및 예열장치, 내부사이클론식 순환유동층 연소로, 연소가스 분석장치, 온도 및 압력측정기 및 데이터 처리 시스템으로 구성되어 있다.

연소로는 2중 원통으로 구성되어 있는데, 내통에 해당하는 상승부(riser)와 외통의 사이클론식 하강부(annulus)로 구분되며, 내통은 SUS 310S로, 외통은 SUS 304 재질로 제작하였다. 상승부는 유동화 공기 주입을 위한 분산판의 내경이 0.04m이고 상단부 내경은 0.1 m로 테이퍼진 형태로 이루어져 있으며 상승부 전체 높이는 0.65m이다. 사이클론식 하강부 부분은 내경이 0.25m이고 높이는 상승부와 같다. 유동층 소각에 사용한 공기분산판에는 직경 6mm의 총 9개 공기주입구가 정방형으로 배열되어 있는 다공형 분산판을 사용하였으며 미세철망을 깔아 유동사의 하단부 유출을 방지하였다. 슬러지는 연소가 주로 이루어지는 상승부에 직접 투입되도록 연소로 상부에 주입구를 설치하였고, 슬러지 주입구 옆에 관측창을 내어 연소로 내부의 연소상태를 관찰할 수 있게 하였다. 단열을 위해 연소로 전체 외벽에는 세라믹 wool을 감아 단열시켰다. 그리고 연소로 각 지점에서의 온도를 측정하기 위해 T1 부터 T4까지의 네군데에 K-형 열전대를 설치하였고 측정된 온도는 자동기록계에 의해 연속적으로 기록되었다. 소각 후 배출되는 연소가스는 가스분석기(GreenLine Mk2)를 이용하여 CO, CO₂, O₂, NO_x, HC(Hydrocarbon)을 측정하였다. 연소용 공기는 압축공기 주입구에서 유동화공기 및 2차 공기로 나뉘어져 유동화 공기는 공기 예열기 내에서 예열된 후 공기 분산판을 통해 연소로 내부로 주입되고, 2차 공기는 상승부 내부로 주입되는데, 공기 분산판에서 0.35m, 또는 0.55m상단에서 반경방향과 30 도의 각도를 갖는 방향으로 설치한 주입관을 통해 로내부로 주입된다. 상승부 상부로 배출된 연소가스와 유동사는 사이클론식 하강부에 점선방향으로 유입되고, 연소가스는 외통 벽면에 설치된 출구로, 유동사는 바닥으로 분리되어 내려간 후 다시 상승부로 유입되어 순환된다.

2.2 실험방법

연소실험은 먼저 유동사($d_p = 300\mu\text{m}$, $\rho_s = 2,240 \text{ kg/m}^3$)를 주입한 후 예열된 공기를 공급하면서 층내 온도가 500℃가 될 때까지 가열시킨 후에 제지 슬러지를 투입하였다. 실험은 Table 1에 나타난 바와 같이 슬러지 함수율, 투입질량과 2차공기 주입비율 등을 변화시키며 수행하였다.

본 연구에서 사용된 제지 슬러지의 공업분석치와 원소분석치를 Table 2에 나타내었다. 슬러지에 대한 발열량 측정은 별도로 하지 않았다. 발열량 계산은 Dulong식을 많이 사용하나 이것은 석탄과 같이 안정된 탄소성분이 주성분을 이루는 폐기물의 발열량 추정에 이용되며, 슬러지의 발열량 추정에는 Steuer 식이 잘 맞는 것으로 알려

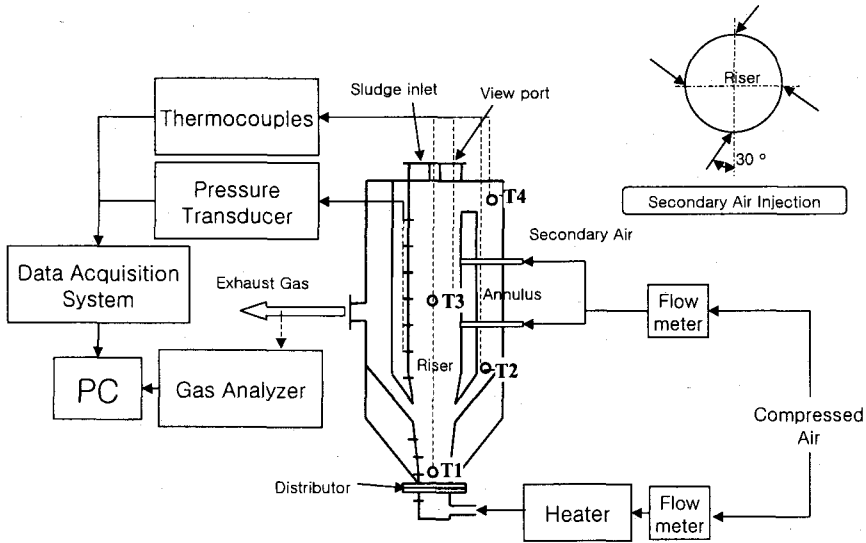


Fig. 1 Schematic diagram of ICCFBC

졌으며 계산식은 다음과 같다[11].

Steuer 식 :

$$\begin{aligned}
 HHV = & 8100(C - \frac{3}{8}O) + \\
 & 34250(H - \frac{O}{16}) + \\
 & 2500S + 5700(\frac{3}{8}O) \text{ [kcal/kg]}
 \end{aligned} \tag{1}$$

2.3 탄소전환율과 평균 탄소 전환 시간 탄소전환율(carbon conversion ratio)

연료로 투입된 탄소총량중에서 연소반응에 의해 CO₂, CO 등의 가스로 전환된 탄소의 비율을 탄소전환율(Carbon conversion ratio)이라 하며 다음과 같이 정의된다[12].

$$\begin{aligned}
 & \text{Carbon conversion ratio(\%)} \\
 & = \frac{\text{carbon emission}}{\text{carbon in fuel}} \times 100
 \end{aligned} \tag{2}$$

본 연구에서는 슬러지로 주입된 탄소의 총량은 원소 분석결과로부터 계산하고, 배출되는 탄소량은 CO₂, CO 가스로부터 계산하였다. 실제의 경우, HC이 측정되지만, 측정되는 HC은 다양한 종의 HC을 구분하지 않고 전체 총량의 개략적인 값을 보여주기에 정확도가 떨어지므로 고려하지 않았다.

Table 1 Experiment conditions

Parameters	Range
Water content (%)	14, 25, 35, 45, 62
Sludge weight (g)	30, 60, 90
Static bed height (m)	0.15
Total air flow (lpm)	300
Secondary air ratio, SAR (%)	0, 10, 20
Bed temperature (°C)	500

Table 2 Composition of the paper sludge

Proximate analysis	(wt, %)
Volatile matter	50.48
Fixed carbon	8.75
Ash	40.77
Ultimate analysis	(wt, %)
C	25.75
H	3.88
N	25.37
O	4.23
S	0.0
Calorific value	(kcal/kg)
HHV	2647

Carbon emission:

$$\begin{aligned}
 & N_{CE} \text{ [mole]} \\
 & = \int_0^{t_b} \frac{Q}{22.4} (\chi_{CO} + \chi_{CO_2}) dt
 \end{aligned} \tag{3}$$

Carbon in fuel:

$$N_{CF}[\text{mole}] = \frac{f_c \times m_{\text{fuel}}}{12} \quad (4)$$

여기서 f_c , m_{fuel} , Q , x , t_B 는 각각 연료중의 탄소 함유율(%), 투입된 연료의 질량(kg), 연소가스유량(liter/s), 물분율(%), 총 연소시간(sec)이다. 연소가스 유량은 직접 측정하지 않고 유입된 공기의 유량을 0°C로 온도 보정한 값을 이용하였다. 총연소시간은 연소가스의 화학종을 측정하여 CO₂ 농도가 0이 되는, 연소가 종료되는데 필요한 시간으로 정의하였다.

평균탄소전환시간(mean conversion time)

평균 탄소 전환 시간은 연료로 유입된 탄소의 유동층 내 평균 체류시간을 의미하고 다음과 같이 계산된다[12].

$$\bar{t}_c = \int_0^{t_B} \left(1 - \frac{n_{CE}}{N_{CE}}\right) dt \quad (5)$$

$$n_{CE} = \int_0^t \frac{Q}{22.4} (x_{CO} + x_{CO_2}) dt \quad (6)$$

여기서 n_{CE} 은 임의의 시간 t 에서의 탄소전환율이다.

3. 결과 및 고찰

3.1 투입량과 수분의 영향

Fig. 2는 슬러지의 질량별 수분함량 변화에 따른 평균 탄소 전환 시간을 나타낸 것이다. 수분함량과 슬러지 투입량이 증가하면 평균 탄소 전환 시간이 길어졌다. 수분함량이 증가할수록 수분증발에 의한 연소지연효과가 커지며, 투입량이 증가할수록 반응시간이 길어지는 것으로 판단된다. 이 경향은 최등[9]이 실험한 제지 슬러지에 대한 결과에서도 동일하게 나타났다.

Fig. 3은 슬러지 투입질량과 수분함량을 변화 시키며 수행한 실험군에서 탄소전환율을 도시한 결과이다. 모든 슬러지 투입질량에서 수분함량 35%근처가 탄소전환율이 가장 높게 나타나고 있다. 이러한 경향은 전통적인 고체연료 연소특성으로 해석할 수 있다[13]. Fig. 4에 나타난 바와 같이 수분 함량이 높은 경우, 슬러지 연소에 의한 발열보다 수분 증발에 소요되는 에너지가 크기 때문에 연소분위기는 낮은 온도로 유지되고

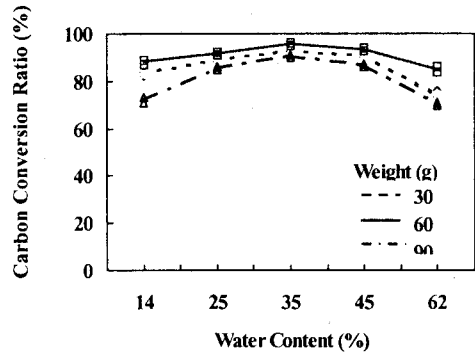


Fig. 3 Carbon conversion ratio by water content and sludge feeding rate

이에 따라 연소가 원활히 진행되기 보다는 불완전 연소가 진행된다(kinetic limited zone). 수분함량이 줄어들게 되면 발열에너지가 점차 증가하여 연소분위기는 좋아지게 되고 적당한 산소공급과 높은 분위기 온도로 연소가 원활하게 진행된다(transition zone). 한편, 수분함량이 과도하게 줄어들어 발열량이 더욱 상승하면, 반응이 급격히 진행되지만, 산소의 공급이 반응속도를 따라가지 못하여 완전연소가 되지 못하고 불완전 연소생성물이 배출된다(diffusion limited zone). 본 연구의 결과에서 수분함량 35%의 경우가 가장 우수한 탄소전환효율을 보인 것은 적절한 온도와 연료 그리고 산소의 공급이 균형을 이루었기 때문으로 판단된다.

한편, 슬러지 투입량이 30g이나 90g 보다 60g인 경우가 가장 높은 탄소전환율을 보이는데, 이 역시 수분함량의 영향과 유사한 이론으로 설명할 수 있다. 유동화 공기의 유량이 300 lpm 으로 일정한 조건에서 연료의 투입량이 작은 경우에는 반응이 빠르게 발생하지만 발열 에너지양이 유입되는 유동화공기량에 비해 적기 때문에 가스의

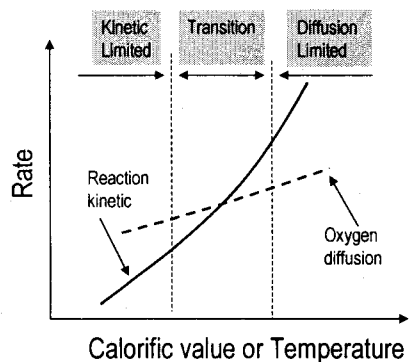


Fig. 4 Rate-controlling regimes for heterogeneous solid fuel oxidation

온도가 고온이 되기 어렵다. 연료투입량이 증가할수록 발열 에너지가 증가하게 되어, 연소가스 온도는 충분히 상승하며 가스상 불완전 연소물질의 반응을 증진시키게 된다. 한편, 투입량이 과도한 경우, 발열 에너지양이 많지만 분해된 가스들이 미처 산소와 혼합하여 반응하지 못하고 연소로를 빠져나가는 비율이 점차 증가하게 된다. 이

에 따라, 투입량이 과도하게 적거나 또는 과도하게 많으면 각기 다른 이유로 탄소전환율이 떨어지는 것으로 판단된다.

3.2 2차공기의 영향

Fig. 5는 35%의 수분함량을 가진 제지 슬러지에 대해 2차 공기비를 0%~20%까지 변화시키면서 탄소 전환율을 측정 한 결과이다. 2차 공기의 주입비율이 증가할수록 탄소 전환율도 증가한다는 것을 알 수 있다. 이는 2차 공기의 주입이 입자상과 가스상의 미연분과 연소공기의 혼합을 증진시키기 때문으로 판단된다.

Fig. 6은 2차 공기 주입비의 변화에 따른 CO로 배출되는 탄소의 비율(CO 배출계수)을 보여준다. CO 및 CO₂ 배출계수는 다음과 같이 정의되었다.

CO/CO₂ emission ratio(%):

$$= \frac{\text{carbon emission in the form of CO/CO}_2}{\text{carbon in fuel}}$$

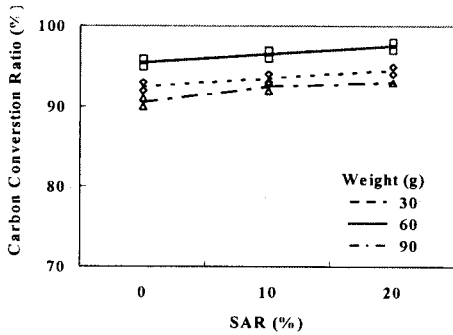


Fig. 5 Carbon conversion ratio by SAR

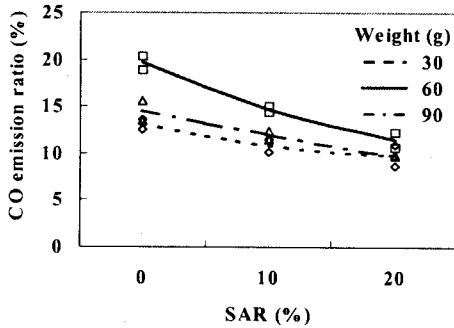


Fig. 6 CO emission ratio by SAR

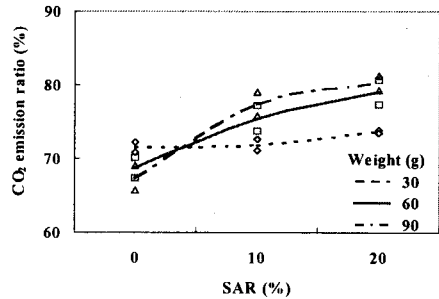


Fig. 7 CO₂ emission ratio by SAR

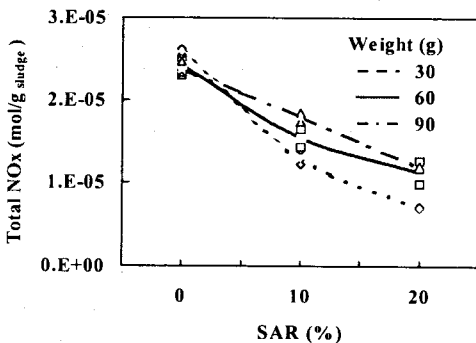


Fig. 8 Total NO_x emission by SAR

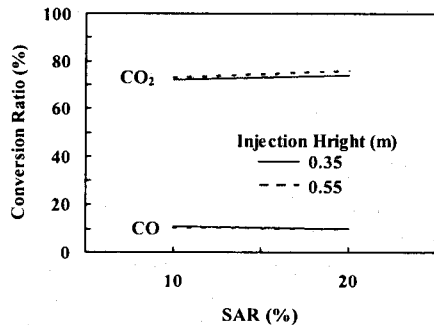


Fig. 9 Effect of secondary air injection height

2차 공기의 주입비율이 증가할수록 CO의 총 배출량은 감소하는 것으로 나타났는데 이는 가스상의 혼합효과가 증진됨으로 인하여 CO가 산소와 반응하여 CO₂로 전환되었기 때문이다. 이는 Fig. 7의 CO₂의 형태로 배출되는 탄소의 비율을 나타내는 도표에서도 같은 경향을 보인다. 즉, 2차 공기 주입비율이 증가할수록 CO₂로 전환되는 비율이 높아짐을 알 수 있는데 이는 2차 공기를 주입함으로써 연소로 내의 혼합이 증가하여 연소효율이 증가하고, 그에 따라 CO가 CO₂로 많이 전환되기 때문이다.

Fig. 8은 2차 공기 주입비의 변화에 따른 NOx의 배출량 측정 결과를 보여준다. 2차 공기 주입비율이 증가할 수록 NOx의 배출농도는 감소하는 것을 알 수 있다. 일반적으로 NOx의 발생을 억제하는 방법중 하나로써 다단연소개념으로 2차 공기를 활용하는데[8], 이는 연속운전시에 해당하는 것으로서, 본 연구에서와 같이 배치식 실험 조건과 부합되지 않는다. 그러나, Fig. 8에 나타난 바와 같이 2차 연소공기의 활용에 의해 NOx 배출량이 급감한 것은 연소로내 혼합효율을 증가시켜, Thermal NOx 생성의 원인인 국부적 고온 영역 형성을 억제하는 효과에 의한 것으로 판단된다.

Fig. 9는 2차 공기 주입 위치를 분산판위의 35cm와 55cm 위치로 바꾸면서 실험을 수행하여 측정된 탄소전환율을 비교한 그림이며, 2차 공기의 주입 위치에 상관없이 탄소전환율은 비슷한 것으로 나타났다. 따라서 본 연구에서는 2차 공기의 활용은 주입위치보다는 주입량이 연소효율에 영향을 미치는 중요한 인자인 것으로 판단되었다.

3.3 화상부하율 예측

배치식 연소기 실험에서는 기초적인 연료와 연소기의 상호작용에 의한 연소특성을 보는 것을 목적으로 하지만, 연속 운전시 또는 대형화할 경우의 성능을 예측하는 것은 한계가 있다. 본 연구에서는 내부 사이클론식 순환유동층 연소로의 연속운전시 연소 성능을 몇가지 가정을 포함하는 단순화를 통해 예측하였다. 우선, 배치식 실험에서 슬러지 투입량을 평균탄소전환시간, \bar{t}_c 로 나타낸 값을 연속 운전시 연료유량으로 가정하였다. 평균 탄소전환시간은 연소로내에 투입된 연료가 연소되어 가스형태로 배출되는데 걸리는 평균시간을 의미하므로 이 기간이 지난후에 다시 연료를 투입하면 연속적인 운전이 근접한 조건으로 가정할 수 있다. 이러한 가정하에서 일반적인 유동층 연소로 설계인자인 화상부하율(유량을 화상면적으로 나눈값)을 다음 식으로 계산하여 도시하였다 (Fig. 10).

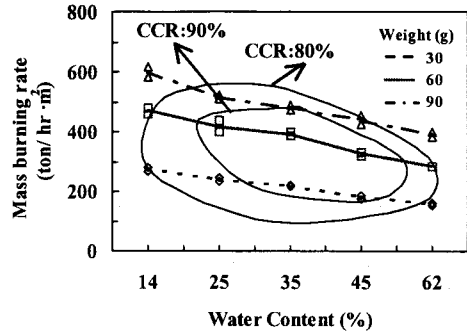


Fig.10 Combustion capacity estimation

$$Mass\ burning\ rate = \frac{m_{fuel}}{A t_c} \quad (7)$$

위 식에서 A는 유동층 상승부(Riser) 단면적을 나타낸다. 적정 연소범위의 판단근거로 탄소 전환율을 활용하였는데, 탄소 전환율이 높을수록 연소효율이 높은 것으로 가정하였다. 실험영역 내의 탄소전환율이 90%이상인 영역과 80% 이상인 영역을 그림에 타원으로 도시하였다. 탄소 전환율 90% 이상이 되려면, 수분 함량이 25%에서 45% 범위내에서 투입량은 200에서 400 t/m² hr 정도의 범위가 적정 연소범위인 것으로 나타났고, 탄소 전환율 80% 이상이면 더욱 그 범위가 넓어지는 것으로 판단된다.

4. 결론

내부 사이클론식 순환유동층 연소로를 이용해 제지 슬러지 수분함량에 대한 실험과 2차 공기 주입을 하면서 실험을 수행하였다.

1) 1차 공기만을 주입했을 때 제지슬러지는 35%의 수분함량에서 가장 높은 탄소 전환율을 보였다. 이때 2차 공기 주입했을 때 탄소전환율이 증가하였다.

2) 투입량을 변화시켰을 때 60g에서 가장 높은 탄소전환율을 보였다.

3) 2차 공기비가 증가할수록 CO와 NOx가 감소하였는데 이는 반경방향으로 2차 공기를 주입함으로써 다단연소와 체류시간이 길어진 영향 때문으로 판단된다. 따라서 2차 공기의 적극적인 활용이 공해 저감과 효율증대에 효과적임을 알 수 있다.

후기

본 연구는 에너지 학술진흥사업(2000-C-CC03-P-02)의 일환으로 진행되었습니다.

참고문헌

- [1] Park, Y. S. and Son, J. K., "Operating Experience of a Fluidized Bed Dryer for Paper Sludge," *J. Korean Solid Wastes Eng. Society*, Vol. 6, No. 2, 1989, pp. 97-104.
- [2] Lee, J. K., Lee, K. H., Lee, K. H. and Chun, H. S., "Incineration of Paper Sludge Wastes in a Two-Stage Swirl-Flow Fluidized Bed Combustor," *J. Korean Institute of Chemical Engineers*, Vol. 28, No. 4, 1990, pp. 470-479.
- [3] Sänger, M., Werther, J. and Ogada, T., "NO_x and N₂O Emission Characteristics from Fluidized Bed Combustion of Semi-Dried Municipal Sewage Sludge," *Fuel*, Vol. 80, 2001, pp. 167-177.
- [4] 환경부, '99 하수도 통계, 2000.
- [5] Mukadi, L., Guy, C. and Legros, R., "Parameter Analysis and Scale-up Considerations for Thermal Treatment of Industrial Waster in an Internally Circulating Fluidized Bed Reactor," *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, 1999, pp. 3071-3078.
- [6] Mukadi, L., Guy, C. and Legros, R., "Modeling of an Internally Circulating Fluidized Bed Reactor for Thermal Treatment of Industrial Solid Wastes," *Can. J. Chem. Eng.* Vol. 77, 1999, pp. 420-431.
- [7] Brem, G. and Brouwers, J. J. H., "Mathematical Modeling of Staged Combustion in an AFBC," in *Fluidized Bed Combustion*, ASME, Vol. 1, 1991, pp. 449-458.
- [8] Gulyurtlu, I. K., Bordalo, C. and Cabrita, I. A., "The Effect of Staging of Reburning Fuel to Reduce NO_x and N₂O Levels during Fluidised Bed Coal Combustion," *Fluidized Bed Combustion*, Vol. 2, 1995, pp. 1351-1357.
- [9] Lyngfelt, A. and Leckner, B., "Combustion of Wood-chips in Circulating Fluidized Bed Boilers-NO and CO Emissions as Functions of Temperature and Air-staging," *Fuel*, Vol. 78, 1999, pp. 1065-1072.
- [10] Takahashi, K., "Combustion Improvement in Fluidized Bed Sewage Sludge Incinerator," *Proc. of 5th Int. Conf. on Incineration for Clean Environment*, 1999, pp. 337-343.
- [11] 환경 시리즈 2, 폐기물 소각로 - 계획과 설계, 환경연구회편, 문지사, 1993.
- [12] 최진환, 박영호, 최상민, "고체 폐기물 연료의 유동상 연소-연료 특성 및 운전 인자 변화," *한국폐기물학회지*, Vol 18, No 3, 2001, pp. 1-9.
- [13] Hobbs, M. L., Radulovic, P. T. and Smoot, L. D., "Combustion and Gasification of Coals in Fixed-Beds," *Prog. Energy Combust. Sci.*, Vol. 19, 1993, pp. 505-586