

ذوب و تصفیه مستقیم

خطیب‌الاسلام صدرزیاد (دانشیار)

عبدالرضا سیم‌چی

دانشکده مهندسی متوسطه

چکیده

طراحی و ساخت راکتورهای «ذوب و تصفیه مستقیم» تابع سرعت انعام تعولات فیزیکو شیمیایی در قطعات غوطه‌ور در فازهای مذاب درون کوره است. ایجاد شرایط واقعی عمل برای تحقق پراهمون نوع و میزان تأثیر پارامترهای مرتبه به طراحی کوره، ارزی و مواد بر سرعت ذوب و تصفیه شدن قطعات بسیار برهزینه و مشکل است. لذا برای تعیین نوع و میزان تأثیر عوامل مختلف همچون نوع و ابعاد کوره، آنالیز مواد، سرعت بار کردن و اندازه قطعات بر سرعت تولید محصول، فرایند‌های ذوب و تصفیه در قطعات غوطه‌ور به وسیله یک الگوی ریاضی-فیزیکی شبیه‌سازی شده است. شرایط بهینه عملیات به منظور دستیابی به حد اکثر بازدهی در فرایند‌های گرم شدن، احیاء، ذوب و تصفیه تا تولید آبیار مطلوب برای جد نمونه واقعی از فرایند‌های ذوب و تصفیه مستقیم بررسی شده‌اند.

مقدمه

عوامل مختلف همچون سرعت احیای اکسیدهای آهن، درجه احیای اولیه، نسبت احتراق تابویه، عیار بار، نوع زغال‌سنگ، گف آبودشدن سرباره و میزان تلاطم فازهای مذاب درون کوره بر بازدهی فرایند ذوب و تصفیه مستقیم تأثیر دارند. این تأثیر به علت اندرکنشهای متناظر بین عوامل مختلف بسیار برجده بوده و ارزیابی دقیق آن تنها از طریق استفاده از مدل‌های کامپیوتری امکان‌پذیر

جدول ۱. پارامترهای مؤثر در طراحی سیستم ذوب و تصفیه مستقیم

| | | |
|---|-------|---------|
| درجه احیای اولیه سنگ معدن با رگری سنج احیاء شده استفاده از فراشه به عنوان قسمتی از بار ورودی استفاده از ارزی کتریکی بدست اکسیژن و هوا با نسبت دلخواه نسبت احتراق تابعه. | ورودی | فرایند |
| - بازدهی انتقال حرارت از فاز گاز به فاز ملایم - درصد گرد غبار تولید شده در راکتور - درصد اختلاف حرارت - درصد اختلاف ارزی کتریکی در سیستمهای بررسی | ورودی | راکتور |
| سنگ معدن، سنگ احیاء شده فراشه زغال سنگ، رواسانز گرد غبار | بار | برآورده |
| درصد FeO سرباره، درجه قلبانی بودن سرباره | غلهای | مواد |
| حجم و دما | متغیر | |
| فلز، سرباره، دود | ماده | خروجی |
| وزن - حجم - دما - ترکیب شبیه‌سازی | کلیت | |

است. انجام همزمان فرایندهای انتقال حرارت، انتقال جرم، واکنش شبیه‌سازی، واکنش الکتروشیمی و جریان سیال تیار به تعزیزه و تحلیلهای دقیق موازنۀ جرم-حرارتی بین مواد ورودی و خروجی با توجه به واکنشهای گرم‌گیر و گرم‌گذاشت و سیستمک تحولات همگن و غیرهمگن درون و بینون فارها دارد. فهرست عوامل مهم مؤثر در طراحی فرایند در جدول ۱ ذکر شده است. در این تحقیق از اثرباره متفاصل عوامل مؤثر در طراحی از طریق تدوین و توسعه یک برنامه جامع کامپیوئری مبتنی بر اصول ترمودینامیکی حاکم بر سیستم و موازنۀ های جرمی و حرارتی بررسی شده است. در انجام این مقاصد فرضهای ساده شده زیر مورد استفاده، فرار گرفته است:

- محل گرم شدن، ذوب شدن و حذف شدن مواد فزار موجود در زغال سنگ مختلف فعال ذوب و تصفیه داخل سرباره است.
- فشار جریان گازهای درون گوره با استفاده از نسبت احتراق تابعه (معادله ۱) و ثابت تعادل بین گازها تعیین می‌شود.

$$PCR = 100 \left(\frac{P_{CO_2} + P_{H_2O}}{P_{CO_2} + P_{H_2O} + P_{CO} + P_{H_2}} \right) \quad (1)$$

۳- بازدهی انتقال حرارت حاصل از احتراق تابعه به گازهای مذاب (η_{pc}) به نسبت احتراق تابعه بستگی داشته و بعد از محاسبه عددی ثابت در نظر گرفته می‌شود.

$$\eta_{pc} = 100 \left(\frac{\Delta H_{pc}}{\Delta H_f} \right) \quad (2)$$

ΔH_{p} : حرارت حاصل از احتراق ثانویه در دمای گاز.

ΔH_{f} : حرارت حاصل از احتراق ثانویه در دمای فلز مذاب.

۴- ده درصد از کل حرارت تولید شده توسط واکنشهای گرمایار و ده درصد از الکتریسیته مصرفی به عنوان اتلاف انرژی راکتور فرض می‌شود.

۵- محتوای FeO سرباره در شرایط عمل ثابت است.

کاربرد الگو در طراحی راکتور

برنامه کامپیوتری ساخته شده در این تحقیق می‌تواند برای طرح یک راکتور ذوب و تصفیه مستقیم به کار رود. برای مثال یک راکتور ۵ تنی با سرعت تولید ۸۷۰۰ تن در سال را در نظر بگیرید. تجزیه شیمیایی مواد مورد استفاده در این راکتور در جدول ۲ داده شده است. این مواد عبارتند از:

الف) سنگ آهن تغليظ شده گل گوهر [۱ و ۲].

ب) گندله ساخته شده از سنگ معدن گل گوهر دارای ۷۵٪ درصد بتونیت [۱ و ۲].

ج) گندله هماتیتی کم سیلیس تجاری [۳].

د) قراضه برگشتی فولاد.

ه) کوک خارجی [۴].

و) نمونه کوک مصرفی ذوب آهن اصفهان [۴].

ز) زغال سنگ آنتراسیت [۴].

نتایج محاسبات الگو بر روی این مواد در شکل‌های ۱ تا ۵ خلاصه شده و در قسمت‌های ذیل شرح داده می‌شوند.

درجه احیاء اولیه

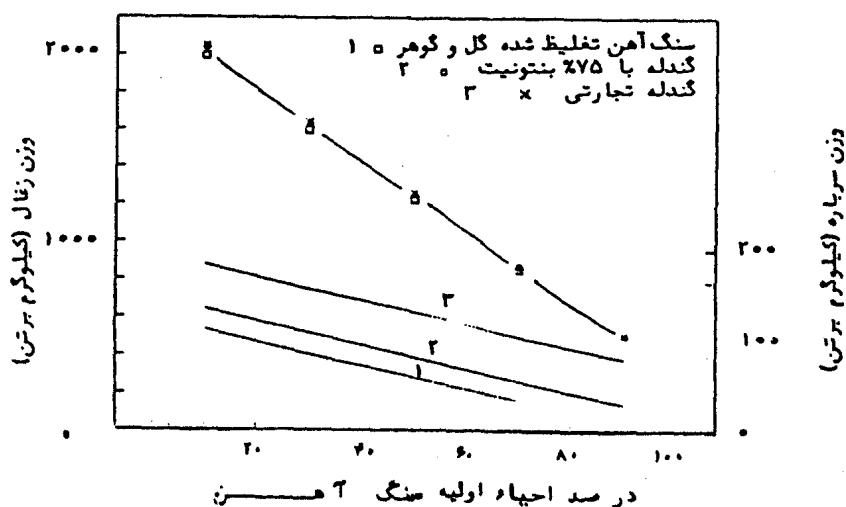
شکل ۱ نشان می‌دهد که افزایش درجه احیاء اولیه سبب کاهش مصرف زغال سنگ و وزن سرباره می‌شود. باید توجه داشت که این محاسبات مربوط به شرایطی است که در آن احتراق ثانویه وجود نداشته باشد. پتانسیل احیایی گازهای CO و H_2 در راکتور ذوب و تصفیه مستقیم در این حالت حداقل است. اگرچه براساس این منحنیها، افزایش درجه احیاء اولیه می‌تواند منجر به کاهش مصرف سوخت و تیجات کاهش هزینه‌های تولید فلز مذاب شود، اما به علت کاسته شدن از ضخامت قشر سرباره که نقش محافظت را برای فلز مذاب داشته و محمل انجام واکنشها برای تولید و تصفیه فلز است [۵ و ۶]. خطر اکسید شدن مجدد فلز و تنزل میزان و سرعت تولید به وجود می‌آید. مقایسه منحنیهای شکل ۱ نشان می‌دهد که تغییر نوع سنگ معدن تأثیر چندانی بر میزان مصرف زغال سنگ ندارد. اما در صورت افزایش مواد سنگی همراه، مقدار سرباره تولید شده نیز بالطبع اضافه خواهد شد و این موضوع در مورد سنگهای وارداتی (ماده ج جدول ۲) در منحنی مربوط در شکل ۱ دیده می‌شود. از طرف دیگر باتوجه به پیچیدگی الگوهای مربوط به تأثیر اندازه و شکل مواد مصرفی بر سرعت واکنشهای شیمیایی و انتقال حرارت در کوره ذوب و تصفیه مستقیم، برای سهولت از این نوع تفاوتها در محاسبات فعلًاً صرف نظر می‌شود.

جدول ۲ تجزیه شیمیایی مواد مورد استفاده در طراحی در راکتور نیمه صنعتی ۵ تنی موضوع تحقیق.

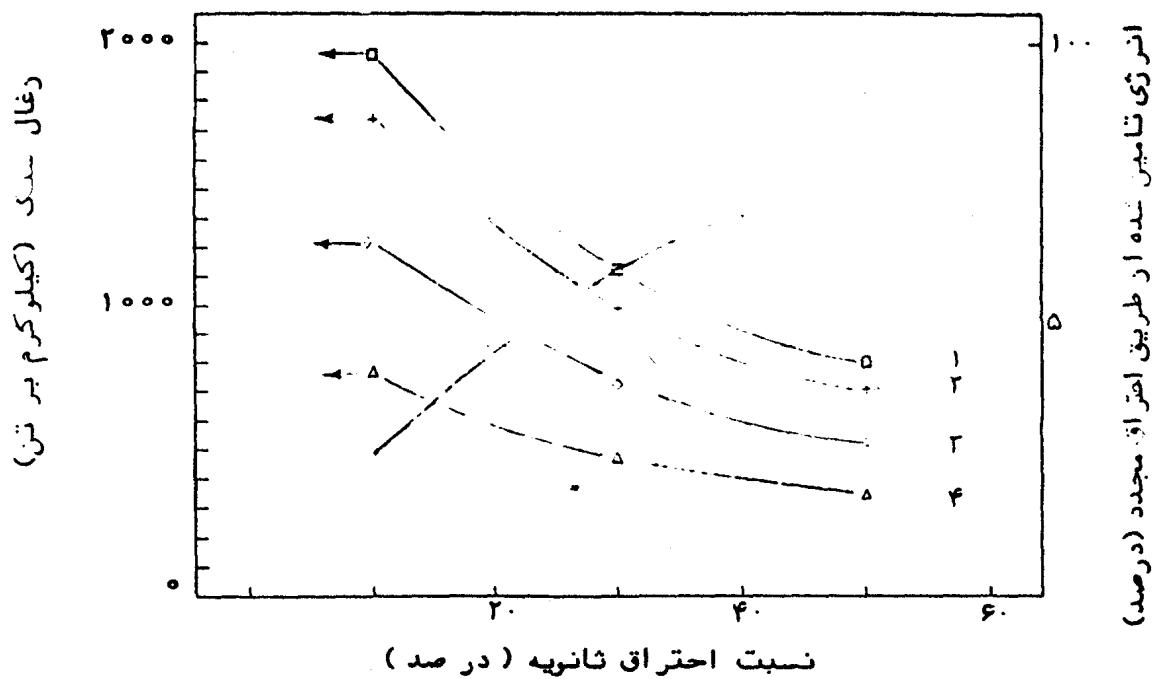
| آهن | ماده | آهن کل | ماگنتیت | هماتیت | سیلیس | الومینا | کلسیم اکسید | گوگرد | فسفر | رطوبت | ترکیب شیمیایی خاکستر | | | | | | |
|-------------------------------------|--------------------------------|--------|---------|--------------------------------|------------------|----------------------|-------------|-------|-------|-------|----------------------|---------|-------|---|------|-----|------|
| | | | | | | | | | | | پودر سنگ آهن | الف | سنگ | ب | معدن | | |
| ۱,۵ | ۰,۰۳ | ۰,۰۶ | ۰,۵۰ | ۰,۱۰ | ۰,۱۵ | ۰,۶ | ۷۲,۰ | ۲۵,۰ | ۶۸,۳ | ۶۸,۳ | پودر سنگ آهن | | | | | | |
| - | ۰,۰۳ | ۰,۰۰۳ | ۰,۵۰ | ۰,۱ | ۰,۳ | ۱,۱ | ۹۷,۰ | ۱,۰ | ۶۸,۶ | ۶۸,۶ | تخلیط شده گل دگهر | الف | سنگ | ب | معدن | | |
| - | ۰,۰۰۵ | ۰,۰۰۹ | ۰,۱۱ | ۰,۱۱ | ۰,۲۹ | ۲,۶۸ | ۹۶,۰ | - | ۶۷,۵۵ | ۶۷,۵۵ | گندله کم سیلیس | | | | د | | |
| $Mn = ۰,۰$. $Si = ۰,۲$. $C = ۰,۴$ | | | | | | | | | | | قراضه برگشتی | | | | د | | |
| P | Fe _۲ O _۳ | MgO | CaO | Al _۲ O _۳ | SiO _۲ | ترکیب شیمیایی خاکستر | | | | | فاوار | مواد | رطوبت | S | C | نوع | سوخت |
| * | ۳۰-۱۵ | * | * | ۲۲-۴۶ | ۴۸-۵۴ | ۱۰-۱۲ | ۲-۴ | ۱-۳ | * | ۸۱-۸۵ | ۵ | وارداتی | * | * | * | کوک | |
| ۰,۲۹ | ۶,۸ | ۱,۹ | ۲,۲ | ۲۲,۲ | ۵۲ | ۲۴,۱ | ۱,۳ | * | ۰,۶ | ۷۵,۶ | ۵ | ذوب | | | | | |
| - | - | ۱-۲ | ۵-۷ | ۲۶-۲۷ | ۳۳-۳۷ | ۴-۵ | ۴-۶ | ۲-۴ | * | ۸۵-۹۰ | ۵ | آهن | | | | | |
| ۱,۳ | ۲۲ | | | | | | | | | | | اصفهان | | | | | |
| رغل سنگ ر آنتراسیت | | | | | | | | | | | | | | | | | |

ارقام جدول بر حسب درصد وزنی بیان شده‌اند.

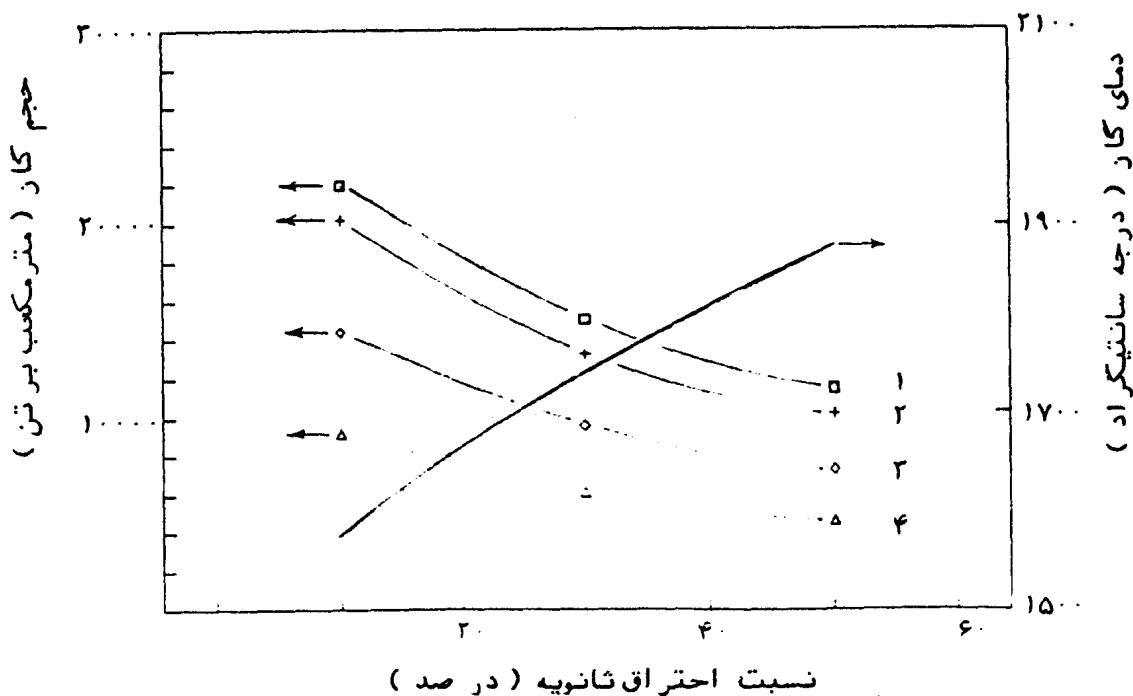
* جزئی



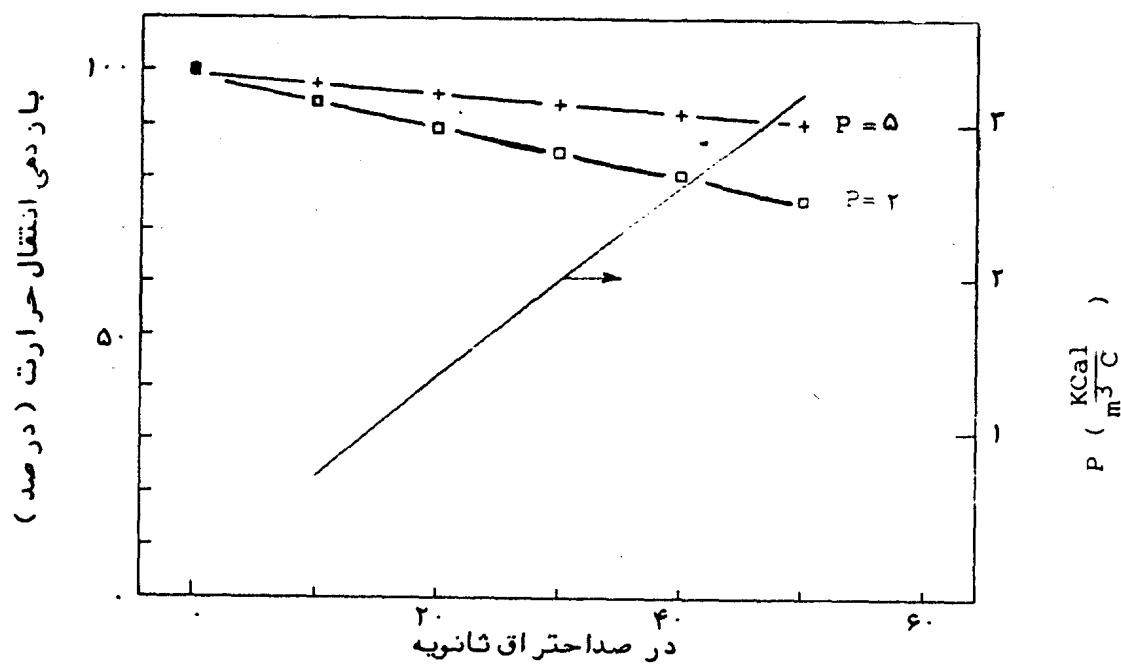
شکل ۱ تأثیر افزایش درجه احیاء اولیه بر مصرف آنتراسیت و تولید سرباره در غیاب احتراق ثانیه. نقاط روی شکل از محور سمت چپ و خطوط پر از محور سمت راست خوانده می‌شوند.



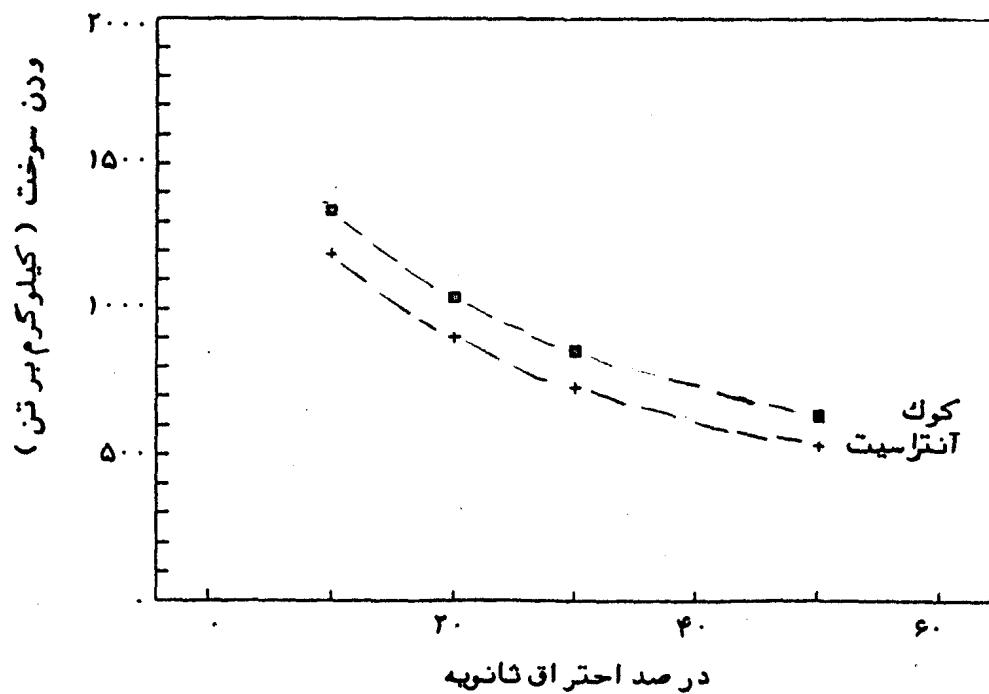
شکل ۲ اثر نسبت احتراق ثانویه بر میزان مصرف زغال سنگ آتراسیت و درصد انرژی تأمین شده از احتراق ثانویه گاز درصد احیاء اولیه و دمای بار در راکتور پیش احیاء به ترتیب: ۱-۰، ۰-۲، ۰-۳، ۸۰۰ و ۸۰۰-۴ و ۶۰۰-۴ و ۸۰۰ بوده است.



شکل ۳ اثر نسبت احتراق ثانویه بر حجم و درجه حرارت گاز خارج شده از راکتور درصد احیاء اولیه و دمای بار در راکتور پیش احیاء به ترتیب: ۰-۰، ۰-۲، ۰-۳، ۸۰۰ و ۸۰۰-۴ و ۸۰۰ بوده است.



شکل ۴ اثر درصد احتراق ثانویه و مقدار p بر بازدهی انتقال حرارت.



شکل ۵ اثر درصد احتراق ثانویه بر مصرف کوك ذوب آهن و زغال سنگ آنتراسیت برای باری که ۳۰٪ پیش احیاء شده است.

نسبت احتراق ثانویه

احیای اکسید آهن و گاری شدن رغال سنگ هر دو باعث تولید مقادیر قابل توجهی گاز در راکتور ذوب و تصفیه مستقیم می‌شوند. دما و پتانسیل احیایی این گاز نسبتاً بالاست و در نتیجه احیایی سنگ آهن تا درصد های بالا توسط گاز امکان پذیر است. راه دیگر برای باریابی انرژیهای حرارتی و شیمیایی گاز کنترل فشار جزئی اکسیژن داخل راکتور به منظور احتراق درصدی از CO_2 و H_2 موجود در گاز و تأمین قستی از انرژی حرارتی مورد نیاز راکتور است (شکل ۲). این تعلو که به احتراق ثانویه معروف است، سبب کاهش مصرف رغال سنگ نوع آنتراستیت هنگام ذوب و تصفیه گندله های دارای ۷۵ درصد بتنوتیت با بازدهی حرارتی ۸۵ درصد در شکل ۲ شده است.

باید توجه داشت که استفاده از انرژی حرارت از گاز به حوضجه فلز و سرباره است. آزمایشها انجام شده در مقیاس نیمه صنعتی توسط سایر محققین [۷ و ۸] نشان داده است که بازدهی انتقال حرارت از فاز گاز با افزایش نسبت احتراق ثانویه کاهش می‌باید. از حجم و پتانسیل گاز خروجی نیز بر اساس ارقام حاصل از این تحقیق با افزایش نسبت احتراق ثانویه کاسته می‌شود در حالی که اضافه شدن نسبت احتراق ثانویه دمای گاز فروزنی می‌باید (شکل ۳).

اضافه شدن دمای گاز تواأم با کاهش بازدهی انتقال حرارت در اثر افزایش نسبت احتراق ثانویه می‌تواند اختلالاتی را در کار راکتورهای ذوب و تصفیه مستقیم به وجود آورد. برای مثال دمای طراحی شده کوره های احیای مستقیم که معمولاً بین ۸۰۰ تا ۸۵۰ درجه سانتیگراد است با استفاده از گازهای داغ خروجی راکتور ذوب می‌تواند دستخوش تغییر و نوسان شود. در عوض استفاده از گازهای محترق شده با پتانسیل احیایی کم در کوره های احیای مستقیم می‌تواند لزوم افزایش دبی و تغییر ترکیب شیمیایی را خاطرنشان سازد.

بازدهی انتقال حرارت

بازدهی انتقال حرارت از فاز گاز به فازهای مذاب درون کوره به شدت تلاطم مذاب، نوع و مشخصات رغال سنگ بار شده و تعداد، مکان و طرح دمنده های اکسیژن بستگی دارد. برای افزایش میزان تلاطم، می‌توان اکسیژن دمیده شده را با گاز CO_2 یا N_2 مخلوط کرده و عمل دمش را نیز از کف انجام داد. تحقیقات انجام شده در کوره نیمه صنعتی [۸] نشان داده است که با افزایش شدت تلاطم به بیش از ۲ کیلووات بر تن، بازدهی انتقال حرارت می‌تواند از مرز ۹۰ درصد بگذرد. افزایش بازدهی انتقال حرارت به بازیابی حرارت محسوس گازها کمک کرده و از مشکل ورود گاز داغ به راکتور احیای مستقیم می‌کاهد.

تأثیر نسبت احتراق ثانویه بر بازدهی انتقال حرارت را می‌توان با کمک موازنه حرارتی در کوره های واقعی ذوب و تصفیه مستقیم به دست آورد. این تأثیر برای کوره ۵ تنی نیمه صنعتی مورد اشاره در مرجع ۹ به صورت رابطه ۳ قابل تعیین است:

$$\eta_{pc} = 100 - 90 \left(\frac{\text{PCR}}{100} \right)^{\frac{1}{p}} \quad (3)$$

که در آن p کیمی است تجربی نشانده‌نده تعداد دمنده های اکسیژن، وسعت منطقه احتراق ثانویه در فاز سرباره و سرعت ظاهری گاز.

رابطه ۳ به وضوح نشان می‌دهد که برای دستیابی به یک بازدهی حرارتی معین، لازم است دو کمیت PCR و μ را به‌نحوی کنترل کرد که با افزایش نسبت احتراق ثانویه از بازدهی حرارتی کاسته نشود (شکل ۴). مثلاً در صورت افزایش PCR، لازم است تعداد و سطح پوشش دمنده‌های اکسیژن در فاز سرباره نیز بیشتر شود. بنابراین به نظر می‌رسد که در طراحی راکتورهای ذوب و تصفیه مستقیم تعداد و ارتفاع دمنده‌های اکسیژن از سطح سرباره حائز اهمیت بسیاری می‌باشد که لازم است به آن توجه شود.

انتخاب سوخت

نوع سوخت بار شده بر بازدهی انتقال حرارت و میزان مصرف سوخت تأثیر دارد. یک نمونه از این نوع تأثیر در شکل ۵ نمایش داده شده است. اگرچه دستیابی به بازدهی حرارتی صدرصد در شرایط عملی غیرممکن به نظر می‌رسد، لکن با تغییر نوع سوخت و شرایط احتراق ثانویه ممکن است بتوان صرفه‌جویی قابل توجهی در میزان مصرف سوخت به وجود آورد. برای مثال اطلاعات شکل ۵ نشان می‌دهد که استفاده از زغال سنگ آنتراسیت به جای کوک ذوب آهن اصفهان می‌تواند باعث کاهش مصرف سوخت شود. البته مقدار تفاوت با افزایش نسبت احتراق ثانویه، مرتباً کوچکتر می‌شود.

در اینجا باید توجه کرد که کاهش مصرف سوخت ضرورتاً به معنای اقتصادی‌تر شدن فرایند نیست زیرا قیمت‌های مواد مصرفی و هزینه حمل و نقل، نقش اساسی در هزینه‌های فرایند دارند. علیهذا لازم است آزمایشهای حساسیت الگو با توجه به شرایط واقعی فرایند به منظور دستیابی به شرایط بهینه انجام شود.

شرایط بهینه اقتصادی

به منظور دستیابی به شرایط بهینه فرایند ذوب و تصفیه مستقیم از نظر اقتصادی، محاسبات الگو را می‌توان برای مواد مصرفی و شرایط متفاوت تکرار کرده و نتایج را هم مقایسه کرد. برای مثال ارزیابی تأثیر نوع سوخت بر هزینه فرایند منجر به نتایج نشان داده شده در شکلهای ۶ و ۷ می‌شود. محاسبات برای دو راکتور ۵ تنی تحت شرایط زیر انجام شده است:

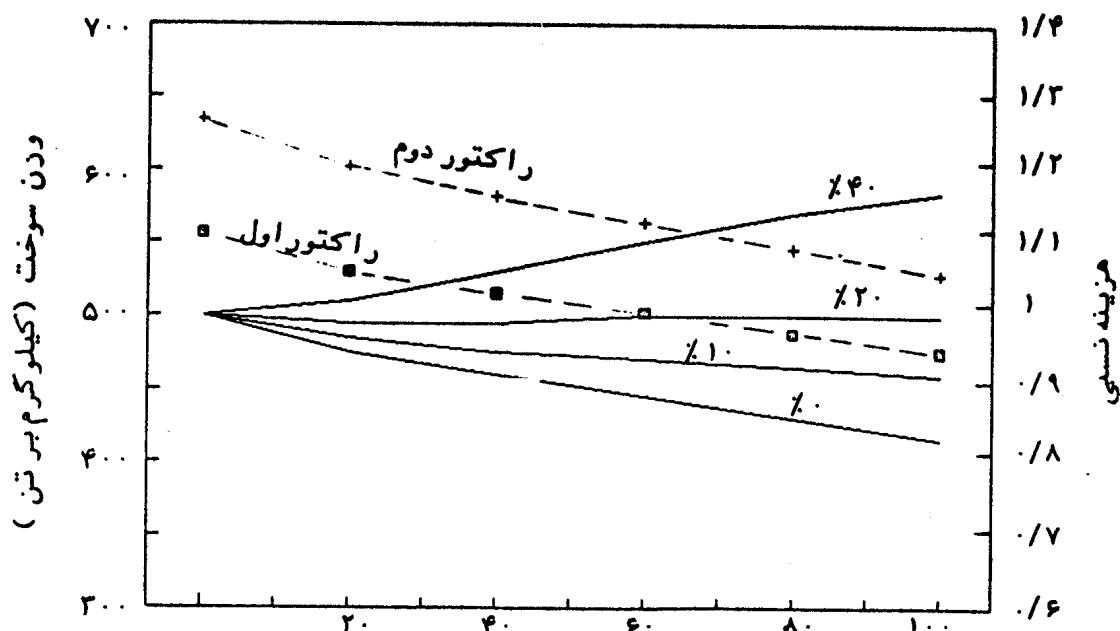
راکتور اول

درجه احیای اولیه: ۳۰ درصد، نسبت احتراق ثانویه: ۵۰ درصد.

راکتور دوم

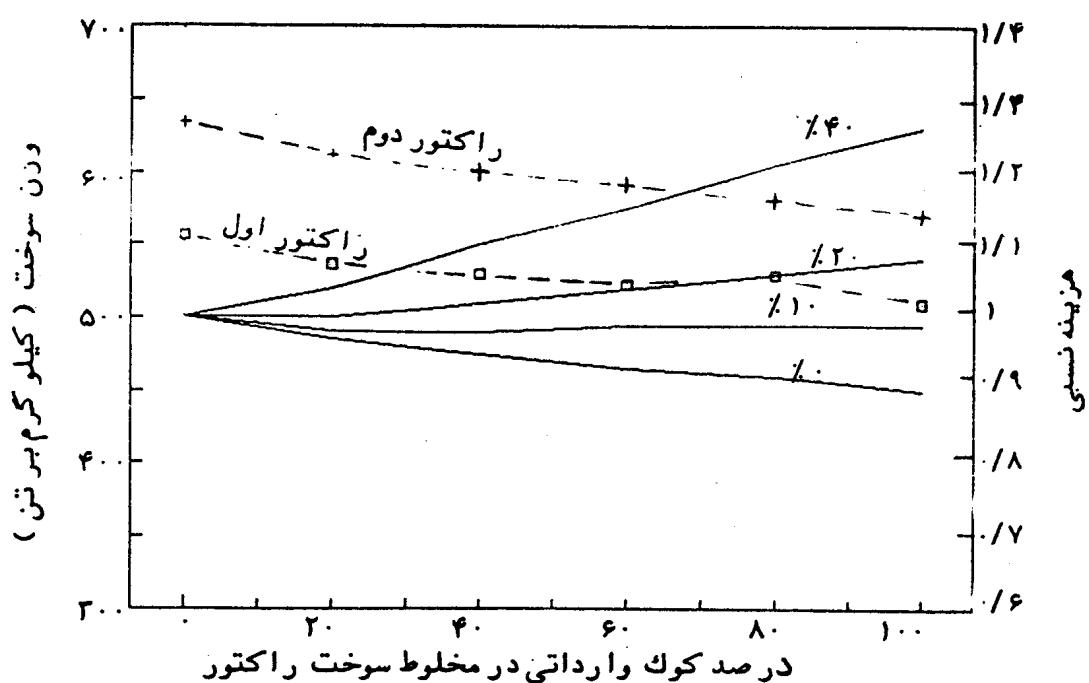
درجه احیای اولیه: ۶۰ درصد، نسبت احتراق ثانویه: ۳۰ درصد.

هزینه‌های نسبی بر اساس ثابت بودن نسبتها دو به دوی قیمت سوختها تعیین و ترسیم شده است. برای مثال اگر قیمت کوک وارداتی تا ۲۰ درصد بیشتر از قیمت کوک ذوب آهن اصفهان باشد، استفاده از کوک ذوب آهن اصفهان اقتصادی‌تر خواهد بود. منحنی‌های شکلهای ۶ و ۷ مصرف سوخت راکتور اول را ۲۰ تا ۸۰ کیلوگرم برتن فلز مذاب کمتر از مصرف سوخت در راکتور دوم نشان می‌دهد.



درصد آنتراسیت در مخلوط سوخت راکتور

شکل ۶ اثر درصد زغال سنگ آنتراسیت در مخلوط با کوک ذوب آهن اصفهان بر مصرف سوخت و هزینه نسبی فرایند. خطوط درصد هزینه ثابت برای راکتور دوم ترسیم شده است.



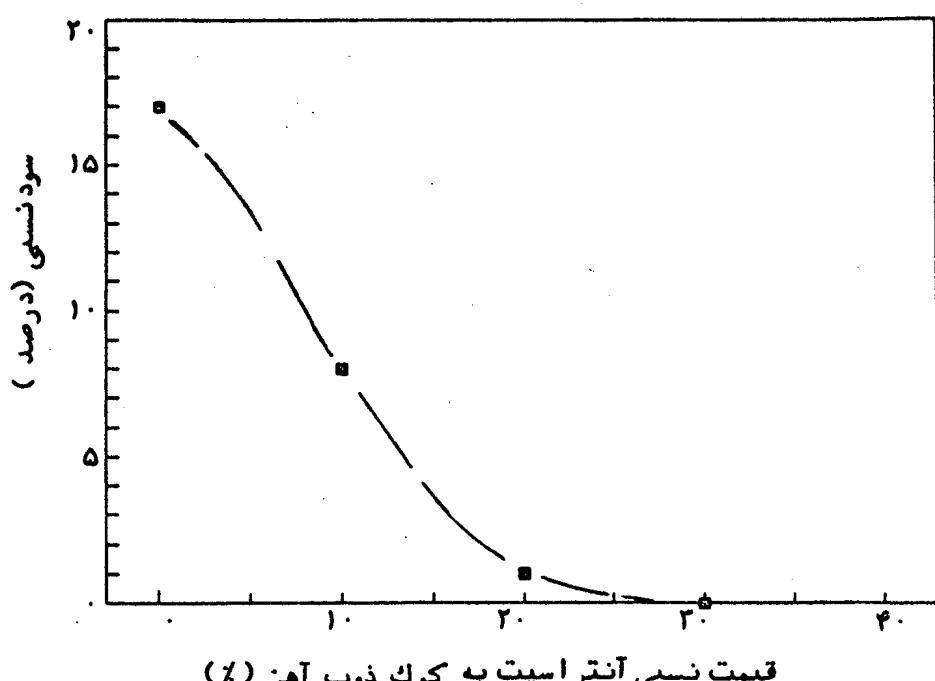
شکل ۷ اثر درصد کوک وارداتی در مخلوط با کوک ذوب آهن بر مصرف سوخت و هزینه نسبی فرایند. خطوط درصد هزینه ثابت برای راکتور دوم ترسیم شده است.

اثر مخلوط کردن سوختها بر سود نسبی فرایند در شکل ۸ نمایش داده شده است. از این نوع اطلاعات می‌توان برای انتخاب بهترین مخلوط سوختها با توجه به قیمت انواع سوخت در بازار جهانی بهره جست. نمونه دیگر از این نوع اطلاعات در شکل ۹ نشان داده شده است که در آن مازاد سود نسبی برای راکتور با تولید ۵۰۰۰۰ تن فلز در سال بر حسب قیمت کوک ذوب آهن اصفهان رسم شده است. اطلاعات شکل میزان فایده حاصل از مخلوط کردن را در صورت افزایش قیمت‌های داخلی آشکار می‌سازد.

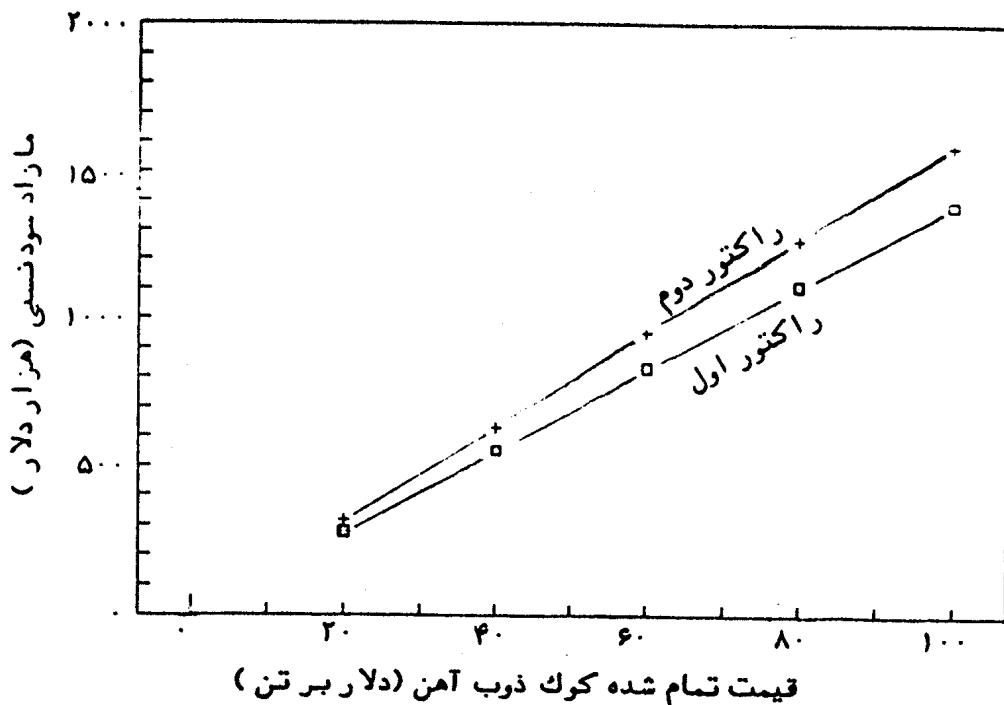
نتیجه‌گیری و جمع‌بندی

شبیه‌سازی فرایند ذوب و تصفیه مستقیم می‌تواند اطلاعات ارزشمندی را در خصوص میزان مصرف و نوع سوخت، سرعت بارگیری و میزان تولید فلز مذاب، انتخاب نوع و میزان مواد خام و شرایط بهینه به کارگیری راکتور بدست دهد. به ویژه آنکه با توجه به پیچیدگی‌های فراوان فرایند، امکان آزمایش‌های عملی قبل از رسیدن به جوابهای قابل قبول از طریق محاسبات الگو، کاری دشوار و پرهزینه است.

الگوی ریاضی ساخته شده در این تحقیق می‌تواند کمک شایانی برای دستیابی به اطلاعات مورد نیاز در مورد فرایند ذوب و تصفیه مستقیم از طریق پیش‌بینی عملکرد راکتور تحت شرایط اجرایی گوناگون بدست دهد. نتایج محاسبات می‌تواند در عملیات طراحی و به کارگیری راکتور به کار رود.



شکل ۸ اثر قیمت نسبی آنتراسیت به کوک ذوب آهن اصفهان بر سود حاصل از افزایش آنتراسیت در مخلوط سوخت.



شکل ۹ مازاد سود نسبی که در اثر مخلوط کردن کوک ذوب آهن با آتراسیت به نسبت ۶۰ به ۴۰ برای طراحی یک راکتور با ظرفیت ۵۰۰۰۰۰۰ تن در سال بدست می‌آید. قیمت دو نوع سوخت یکسان فرض شده است.

مراجع

- [۱] ناصر توحیدی، «جزوه احیای مستقیم»، جلد دوم، (۱۳۶۷) صفحه ۲۵.
- [۲] Esfahan Steel-Works Long Products, Project Plan. Volume II. Assesment of Plant Alternatives, British Steel Corporation, 71.3, (Cited by Ref. 1).
- [۳] ناصر توحیدی، «جزوه احیای مستقیم»، دانشکده فنی دانشگاه تهران (۱۳۶۴)، صفحه ۳۵۰.
- [۴] «فرو سیلیسیوم»، دفتر طرح و تحقیق شرکت صنایع فرو آلیاژ ایران، (۱۳۷۰).
- [۵] T. Ibaraki, M. Kanemoto, S. Ogata, H. Katayama and H. Ishikawa. "Development of melting Reduction of Iron Ore-An Approach to Commercial Ironmaking": I& SM, (December 1990), 306.
- [۶] Y. Kishimoto, K. Yamaguchi, S. Takeuchi, Y. Sakuraya and T. Fujii, "Smelting Reduction of Iron- 37."
- [۷] H. Katayama, T. Ohno, M. "Ore in 5 ton Test Converter": Transaction ISIJ, Vol. 28, (1988).

- [8] Yamauchi, M. Matsuo, T. Kawamura and T. Ibaraki, " Mechanism of Iron Oxide Reduction and Heat Transfer in the Smelting Reduction Process with a Tick Layer of Slag": **ISIJ International**.
- [9] T. Hirata, M. Ishikawa and S. Anzaki, "Stirring Effect in Bath-Smelting Furnace with Combined 32, 1, (1992), 65-101. Blowing of Top and Side Blown Oxygen and Bottom blown Nitrogen": **ISIJ International**, Vol 32, 2, (1992), 182-189.
- [10] K. Takahashi, M. Muroya, K. Kondo, T. Hasegawa, I. Kikuchiand and M. Kawa Kami, "Post 32,2, (1992), 182-189. Combustion Behaviour in In-bath Type Smelting Reduction Furnace": **ISIJ International**, Vol 32,1,(1992), 102-110.