

بررسی انتقال حرارت ذرات پلیمری در راکتور پلیمریزاسیون فاز گازی با تحلیل CFD



● یعقوب بهجت^۱، محمدعلی دهنوی^۲، شاهرخ شاهحسینی^{۱*} و سیدحسن هاشم‌آبادی^۱

۱ - دانشگاه علم و صنعت ایران، دانشکده مهندسی شیمی

۲ - دانشگاه امام حسین (ع)، دانشکده علوم و مهندسی، گروه مهندسی شیمی

Shahrokh@iust.ac.ir

واژه‌های کلیدی: شبیه‌سازی، دینامیک سیالات محاسباتی (CFD)، انتقال حرارت، پلیمریزاسیون الفین‌ها

مقدمه

در پلیمریزاسیون الفین‌ها در فاز گازی، ذرات ریز کاتالیست ($20-80 \mu\text{m}$) از محلی در بالای توزیع کننده گاز وارد می‌شوند و وقتی در معرض جریان گاز حاوی منومر قرار می‌گیرند، واکنش پلیمریزاسیون اتفاق می‌افتد. در مراحل اولیه پلیمریزاسیون، نیروهای هیدرولیکی ایجاد شده ناشی از تشکیل پلیمر، موجب شکسته شدن ذره کاتالیست به تعداد زیادی ذرات ریزتر می‌شود که سریعاً توسط پلیمر تازه تشکیل، احاطه شده و به طور مداوم رشد می‌کند تا به اندازه $200-3000 \mu\text{m}$ برسند. به علت اختلاف در اندازه ذرات پلیمر، فرایند تفکیک^۱ اتفاق می‌افتد. به این صورت که ذرات پلیمر کاملاً رشد یافته به سمت پایین رفته و از راکتور خارج می‌شوند و ذرات کوچکتر پیش پلیمر همچنین ذرات کاتالیست به سمت بالای راکتور حرکت کرده و پیوسته با منومر ترکیب می‌شوند. از آنجائی که واکنش پلیمریزاسیون الفین‌ها، یک واکنش فوق العاده گرمایزا با گرمای پلیمریزاسیون 110 kJ/mol است، دمای پلیمر شروع به بالا رفتن می‌کند. گاهی اوقات این دما از نقطه ذوب پلیمر نیز تجاوز کرده و باعث می‌شود ذرات پلیمر در حین برخورد، به هم‌دیگر بچسبند و تشکیل یک

چکیده

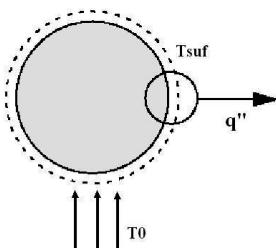
در این مقاله از دینامیک سیالات محاسباتی (CFD) برای بررسی انتقال حرارت از ذرات پلیمر، در راکتورهای فاز گازی پلیمریزاسیون الفین‌ها، تحت شرایط مختلف استفاده شده است. در این بررسی نشان داده شده است که روابط کلاسیک، مثل رابطه Ranz-Marshall، برای حالتی که ذرات پلیمر روی یکدیگر برهمنکش ندارند، دقیق می‌باشد. اما زمانی که برهمنکش ذرات پلیمر در نظر گرفته می‌شود، این روابط در محاسبه مقدار انتقال حرارت دارای خطای زیادی می‌باشند. اثر پارامترهای مختلف، همانند قطر ذرات، سرعت انتقال حرارت بررسی شده است. همچنین اثر پیکربندی و فاصله ذرات از یکدیگر بر مقدار عدد Nu روی سطح ذره پلیمری نیز آورده شده است. با انجام شبیه‌سازی CFD و بررسی نتایج، نشان داده شده است که انتقال حرارت جابجایی تنها عامل انتقال حرارت از ذرات ریز پلیمر با فعالیت زیاد نیست و انتقال حرارت هدایتی در ذرات ریز پلیمر نیز حائز اهمیت است.

۴ - به علت مقیاس‌های طولی و زمانی فوق العاده کوچک در این قبیل سیستم‌ها، تعیین مکانیسمی که انتقال حرارت واقعی موجود در این سیستم‌ها را به صورت فیزیکی بیان کند، خیلی مشکل است.

به دلایل مذکور، از دینامیک سیالات محاسباتی^۳ (CFD) برای بررسی مکانیسم‌های انتقال حرارت در این مطالعه استفاده شده است [۳].

فرمول‌سازیون مسئله

شکل ۱ نمای ساده‌ای از نحوه عبور جریان از روی کاتالیست را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، گاز با دمای T_0 از روی ذره پلیمری عبور کرده و گرمای حاصل از واکنش پلیمریزاسیون را انتقال می‌دهد.



شکل ۱- نمای ساده حرکت گاز روی ذره کاتالیست

معادلات مدل، شامل موازنۀ مومنتوم برای گاز و موازنۀ انرژی برای گاز و ذره، به صورت زیر می‌باشند [۹، ۳ و ۱۲]:

$$\rho \frac{DV}{Dt} = -\nabla P + \mu \nabla^2 V + \rho g \quad (1)$$

$$\rho \cdot C_P \frac{DT}{Dt} = K \nabla^2 T \quad (2)$$

که ترم مشتق^۴ $\left(\frac{D}{Dt} \right)$ در معادلات بالا به صورت زیر تعریف می‌شود.

$$\frac{D}{Dt} = \frac{\partial}{\partial t} + V_x \frac{\partial}{\partial x} + V_y \frac{\partial}{\partial y} \quad (3)$$

توده بزرگ دهنده. این پدیده موجب غیرسیال‌سازی راکتور می‌شود. بنابراین کنترل انتقال حرارت و دمای موضعی در سطح ذره، بسیار حائز اهمیت است [۱-۶].

به دلیل گرمایابودن واکنش پلیمریزاسیون، میزان حرارت تولید شده در داخل و اطراف ذرات در حال رشد، می‌تواند خیلی خطرناک باشد. چون معمولاً واکنش در دمای ۸۰-۹۰°C انجام می‌گیرد و نقطه ذوب پلیمر بسته به ترکیب درصد آن بین ۱۰۵-۱۳۵°C متغیر است. بنابراین مدل‌سازی انتقال حرارت راکتور به منظور جلوگیری از ذوب پلیمر و از کار افتادن راکتور حائز اهمیت فراوان است [۹، ۳۷۸].

فلوید^۱ و همکارانش از اولین افرادی هستند که بررسی‌های نسبتاً عمیقی در خصوص انتقال حرارت در داخل و اطراف یک ذره کاتالیست تازه و ذرات پلیمر در حال رشد، انجام داده‌اند. آن‌ها اشاره کرده‌اند که مسئله انتقال حرارت در واکنش‌های فاز گازی نسبت به واکنش‌های فاز مایع یا دوغابی از اهمیت بیشتری برخوردارند [۱۰].

قسمت اعظم تحقیقات منتشره در ارتباط با پلیمریزاسیون الفین‌ها، با تکیه بر روابط کلاسیک مهندسی شیمی، مثل روابط Ranz-Marshall جهت پیش‌بینی ضرایب انتقال حرارت و انتقال جرم در اطراف یک ذره در حال رشد، انجام شده است. مک‌کنا^۲ و همکارانش اشاره کرده‌اند که روابط موجود برای بررسی انتقال حرارت در سیستم‌های کاتالیستی مدرن به سه دلیل عمدۀ زیر مناسب نمی‌باشند [۳ و ۱۱]:

۱ - روابط موجود برای تخمین ضرایب انتقال حرارت بر مبنای ذراتی با قطر حداقل چند صد میکرون یا بیشتر است. (قطر اولیه ذرات در فرایند پلیمریزاسیون الفین‌ها حدود ۱۰-۲۰ μm است).

۲ - در این مدل‌ها فرض بر این است که حرارت خارج شده از ذرات در حال رشد، صرفاً از طریق مکانیسم جابجایی صورت می‌گیرد.

۳ - مدل‌های استفاده شده برای پیش‌بینی چگونگی خروج حرارت از سیستم پلیمریزاسیون، نمی‌تواند بر همکنش‌های ذرات با محیط اطرافشان را در برگیرد.

یکی از بهترین روابط شناخته شده برای تخمین عدد ناسلت ذرات کروی در جریان آزاد گاز معادله رانز-مارشال (R-M) است که به طور گسترده در مطالعات مدل‌سازی مورد استفاده قرار می‌گیرد. این رابطه به شکل معادله ۵ است.

$$Nu = 2 + 0.6 \text{Re}^{1/2} \text{Pr}^{1/3} \quad (5)$$

$$\text{Re} = \frac{D \rho u}{\mu}, p_r = \frac{\mu c_p}{k_f} \quad (6)$$

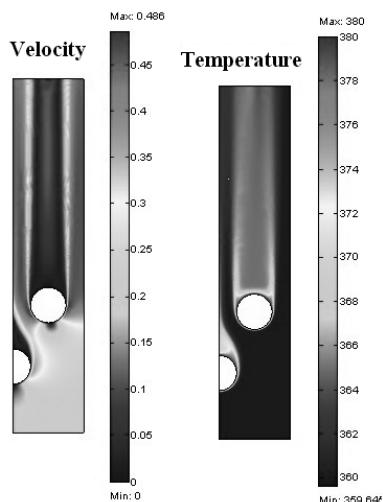
به خاطر استفاده گسترده از رابطه بالا و این واقعیت که به کارگیری رابطه (R-M) برای موقعیت‌های چند ذره‌ای مشکل است، در ابتدا درستی و صحت آن تحت شرایط گفته شده بررسی می‌شود. برای این کار عدد ناسلت به دست آمده از محاسبات CFD برای یک ذره و دو ذره محاسبه و نتایج آن با نتایج بدست آمده از رابطه R-M مقایسه شده است.

طبق تعریف، با توجه به پروفایل توزیع دما در جریان گاز، مقدار عدد ناسلت موضعی روی سطح ذره از رابطه محاسبه می‌شود [۲ و ۳].

$$Nu = \frac{q''}{(T_s - T_\infty)} \frac{2R}{K_f} \quad (7)$$

$$q'' = K_f \left. \frac{\partial T_g}{\partial r} \right|_s \quad (8)$$

میدان‌های دما و جریان در شکل ۲ برای سه ذره پلیمری با آرایش مثلثی واقع در میدان جریان، آورده شده است.



الف- میدان دما
ب- میدان سرعت
شکل ۲- الف- میدان دما
ب- میدان سرعت برای یک ذره
پلیمری در معرض جریان گاز

شرایط مرزی برای معادلات بدين صورت است که، دما روی سطح ذره برابر یک مقدار ثابت و سرعت در روی سطح ذره پلیمری برابر با صفر در نظر گرفته شده است.

$$U, V = 0 \quad \text{at } r = D/2 \quad (4)$$

$$T = T_{surf} \quad \text{at } r = D/2 \quad (5)$$

شبیه‌سازی CFD انتقال حرارت ذرات پلیمر

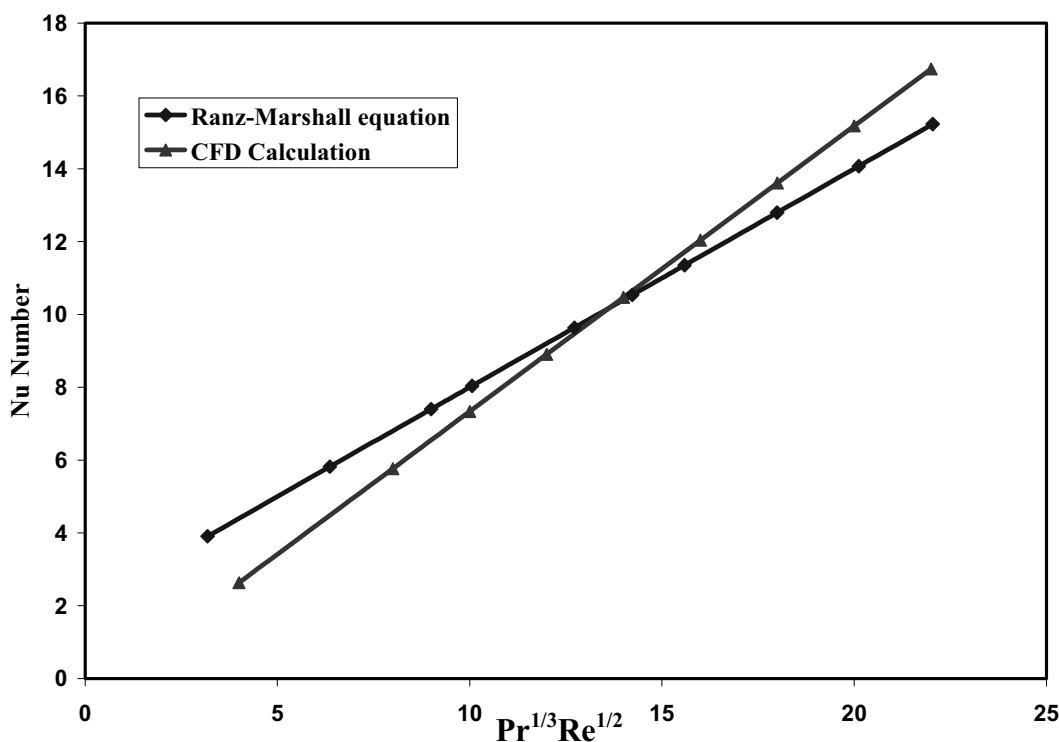
معادلات (۱) و (۲) با استفاده از شرایط متنوع و خواص سیال تعریف شده در جدول ۱، به منظور محاسبه مقادیر عدد ناسلت، همراه با میدان‌های دما و جریان، برای مطالعه مکانیسم انتقال حرارت حل شده‌اند. همچنین در استفاده از محاسبات عددی سعی شده است که محاسبات، مستقل از شبکه‌بندی باشند. از آنجایی که مشاهده مستقیم تمامی پدیده‌های موجود در این مسایل خیلی مشکل است، تصمیم گرفته شد که رفتار ذره پلیمری در شرایط ایده‌آل شبیه‌سازی شود. برای این منظور از نرم‌افزار FEMLAB برای محاسبه گروه‌های مختلف مرتبط با ضرایب انتقال حرارت استفاده شد. این محاسبات اطراف یک، دو و سه ذره با اندازه‌های متفاوت و تحت شرایط جریانی متفاوت انجام گردید.

جدول ۱- پارامترها و پیکربندی ذرات برای مدل‌سازی

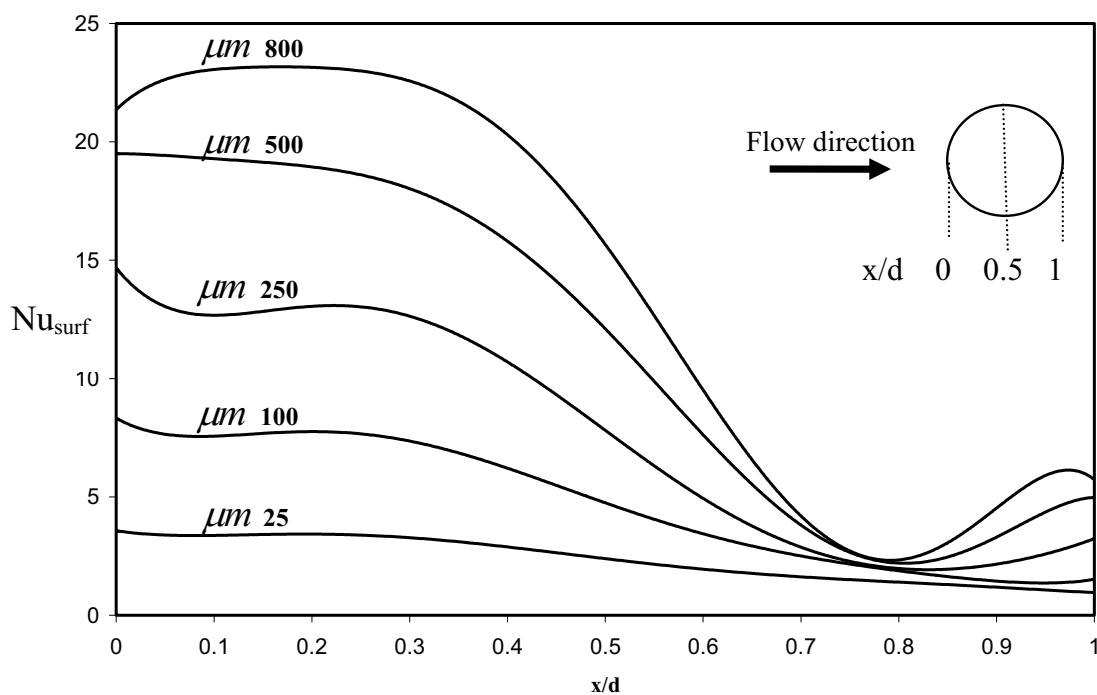
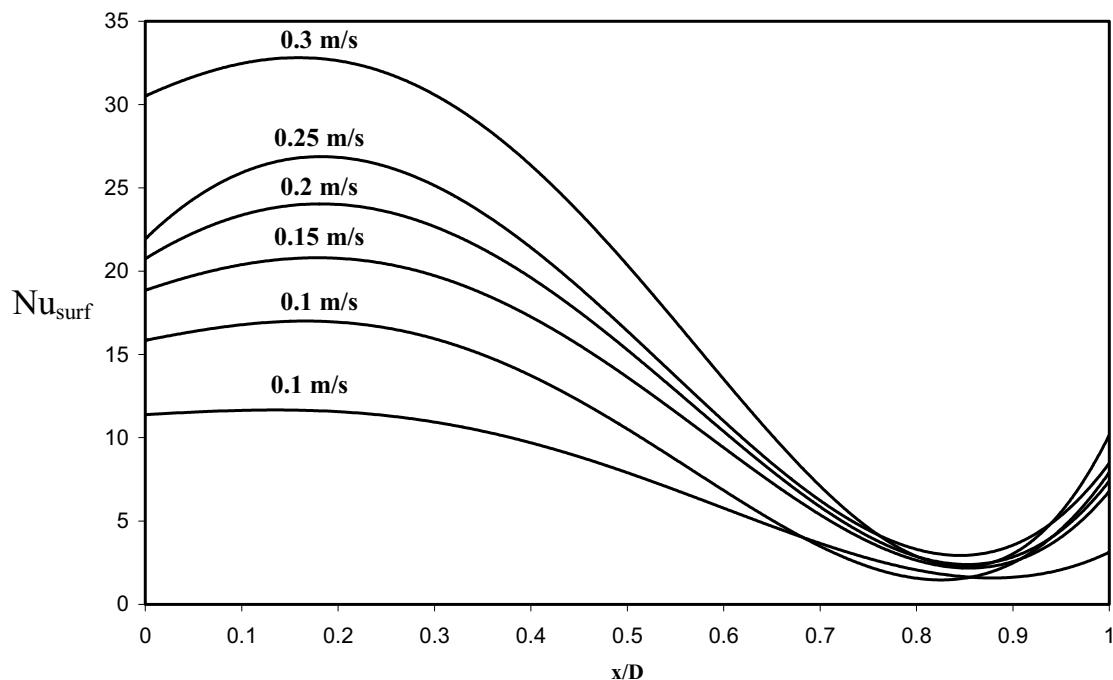
پارامتر	مقدار
اندازه ذره پلیمری	$25-800 \mu\text{m}$
سرعت‌های نسبی گاز	$0/0.5-0.3 \text{m/s}$
دانسیته فاز گاز	24Kg/m^3
ویسکوزیته فاز گاز	$0/000014 \text{Kg/m.s}$
ضریب هدایت حرارتی فاز گاز	$0/0.214 \text{W/m.K}$
دماهی گاز ورودی	360K
پیکربندی ^۱ ذرات	۱ ذره منفرد ۲ ذره با فواصل مختلف از هم ۳ ذره با آرایش مثلثی با فواصل مختلف از هم

شده توسط رابطه $R-M$ است. این بدین معناست که استفاده از رابطه $R-M$ منجر به پیش‌بینی مقدار بیشتری برای عدد ناسلت، در سطح ذره در سیستم‌های ذرات نزدیک به هم می‌شود، در نتیجه ضرایب انتقال حرارت جابجایی با مقدار بالاتری پیش‌بینی می‌شود. در شکل ۴ و ۵ اثر عوامل اندازه ذرات و سرعت گاز بر مقدار عدد ناسلت آورده شده است. عدد ناسلت گزارش شده بر حسب یک عامل بدون بعد (x/d) آورده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، با افزایش قطر ذره و سرعت گاز مقدار عدد ناسلت افزایش می‌یابد. علت این امر، افزایش سطح تماس ذره و افزایش عدد رینولدز در اثر افزایش سرعت گاز است. اما در روی سطح ذره پلیمری در یک قطر و سرعت ثابت مقدار عدد ناسلت روند کاهشی دارد. حداقل مقدار عدد ناسلت در نقطه جدائی سیال در روی سطح ذره اتفاق می‌افتد. اما به علت تشکیل گردابه‌ها در پشت ذره پلیمری و افزایش آشفتگی جريان، مقدار عدد ناسلت در پشت ذره پلیمری روند صعودی دارد. اثر شکل ذره پلیمری و موقعیت آن نسبت به جهت جريان

نتایج حاصل از محاسبات CFD با نتایج رابطه $R-M$ در شکل ۳ برای یک ذره منفرد مقایسه شده است. ملاحظه می‌شود که نتایج CFD، با رابطه M برای یک ذره منفرد تطابق خوبی دارد. با افزایش عدد رینولدز، مقدار عدد ناسلت نیز زیاد می‌شود. در شرایط $Pr^{1/3} Re^{1/2} = 18$ ، مقدار عدد ناسلت متوسط به دست آمده از محاسبات CFD برای ذراتی که با هم در تماس می‌باشند برابر با $4/7$ است. همچنان مقدار عدد ناسلت متوسط در همان شرایط $Pr^{1/3} Re^{1/2} = 18$ برای ذراتی که به فاصله معادل قطر ذره از هم قرار دارند، برابر با $6/3$ می‌باشد. در حالی که رابطه $R-M$ مقدار عدد ناسلت مساوی با $12/8$ را برای این حالت پیش‌بینی می‌کند. با توجه به نتایج بدست آمده، مشخص است که مقدار متوسط عدد ناسلت با استفاده از محاسبات CFD در حالتی که برهmekش میان ذرات پلیمر وجود دارد، کمتر از مقدار عدد ناسلت برای ذره‌ای منفرد بدون وجود برهmekش محاسبه شده توسط رابطه $R-M$ و یا نتایج CFD است. در واقع برای ذرات در حال تماس، مقدار عدد ناسلت کمتر از نصف مقدار محاسبه



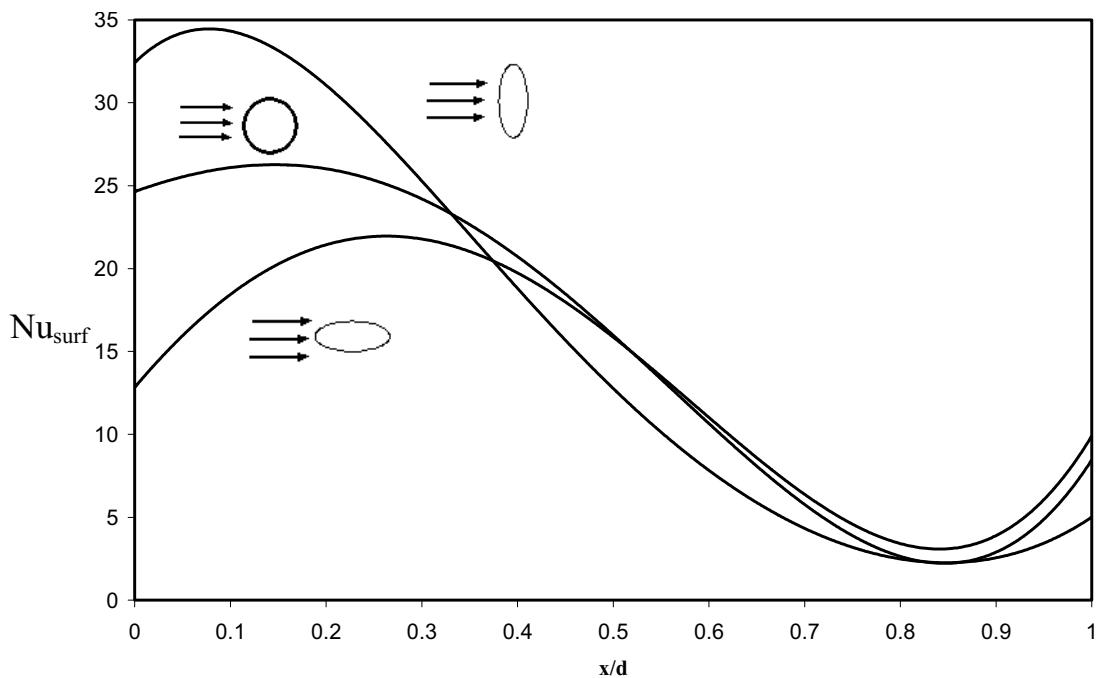
شکل ۳- مقایسه مقادیر عدد ناسلت متوسط محاسبه شده بین نتایج CFD و روابط تجربی

شکل ۴- عدد ناسلت بر حسب نسبت بدن بعد (x/d) برای اندازه ذرات مختلف با سرعت 0.2 m/s شکل ۵- عدد ناسلت بر حسب نسبت بدن بعد (x/d) برای سرعت‌های مختلف با قطر $\mu\text{m} 800$

است. علاوه بر این، مقدار متوسط عدد ناسلت برای ذرات هم جهت با جریان، کمی بیشتر از مقدار این عدد برای ذرات غیر هم جهت با جریان سیال است.

در شکل ۷ و ۸ اثر پیکربندی و فاصله ذرات بر روی مقدار Nu روی سطح ذره پلیمری آورده شده است. لازم

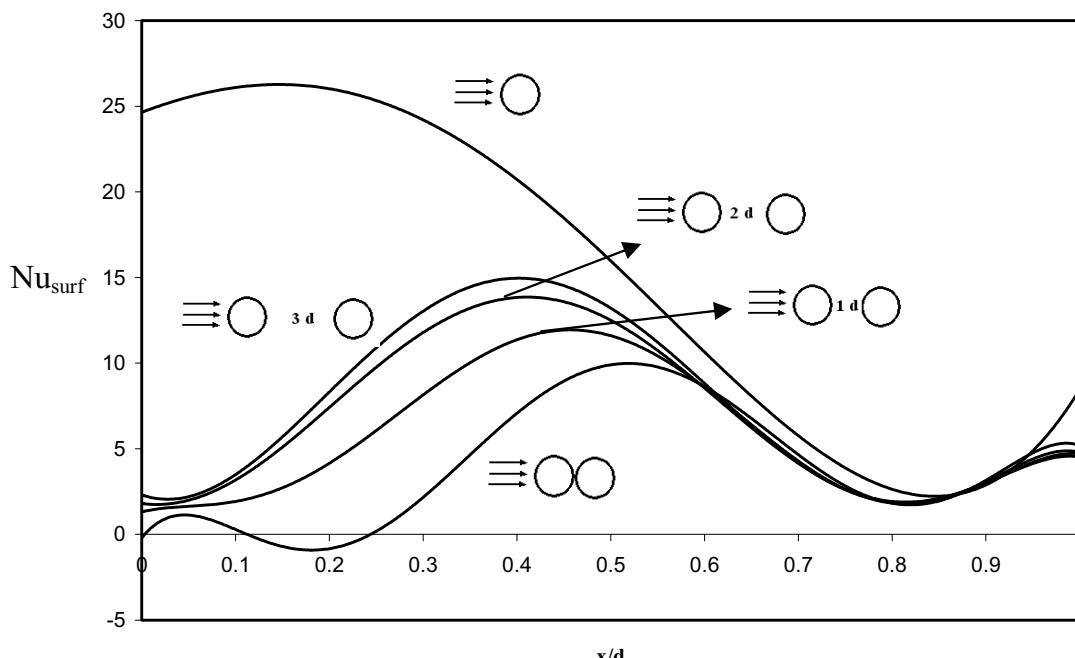
بر مقدار عدد ناسلت در شکل ۶ آورده شده است. نسبت قطر اصلی به قطر فرعی در ذره پلیمری بیضی شکل، ۲ به ۱ می‌باشد. ملاحظه می‌شود که مقدار عدد ناسلت در اولین نقطه‌ای که به ذره برخورد می‌کند به شدت متاثر از شکل ذره پلیمر و موقعیت آن نسبت به جهت جریان



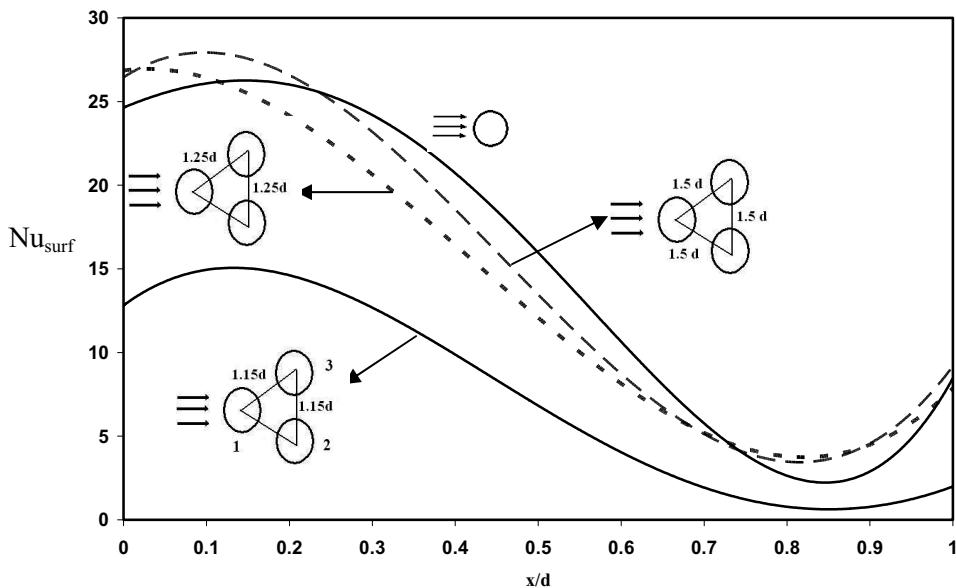
شکل ۶- اثر ذره پلیمری و جهتگیری آن نسبت به جهت جریان بر مقدار عدد ناسلت

دو ذره صفر است. بنابراین محل تشکیل نقطه داغ، در میان دو ذره پلیمری در حال تماس است. همچنین با افزایش فاصله ذرات، میزان برهمکنش آنها نسبت به هم کمتر شده و این امر باعث می‌شود که مقدار عدد ناسلت ذره دوم به مقدار ذره منفرد نزدیک‌تر شود. با توجه به نتایج بدست آمده در شکل‌های ۷ و ۸ مشخص است که در حالتی که دو ذره پشت سرهم قرار

به ذکر است که در شکل ۷ و ۸ مقدار عدد ناسلت گزارش شده برای ذره دوم به منظور بررسی برهمکنش ذره اول است. در این حالت قطر ذرات پلیمری $800\text{ }\mu\text{m}$ در نظر گرفته شده و فرض می‌شود که ذرات در دمای ثابت 380 K زمانی که سرعت گاز 2 m/s می‌باشد، قرار دارند. مشاهده می‌شود که وقتی ذرات با هم تماس دارند، مقدار موضعی انتقال حرارت در محل تماس



شکل ۷- عدد ناسلت بر حسب نسبت بدون بعد (x/d) برای فواصل مختلف ذرات

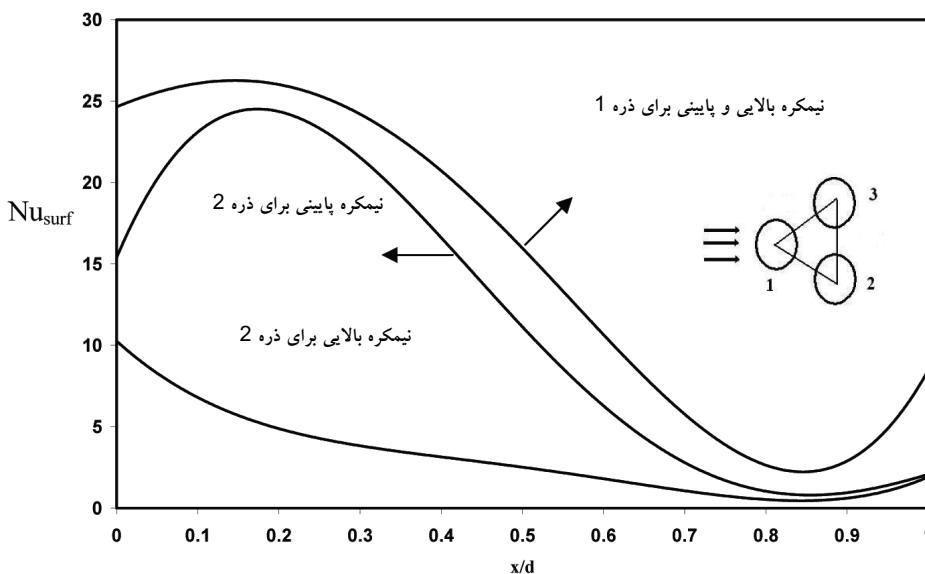
شکل ۸- عدد ناسلت بر حسب نسبت بدون بعد (x/d) برای فواصل مختلف ذرات در آرایش مثلثی

همچنین مقدار عدد ناسلت برای نیمکره‌های بالایی و پایینی ذرات ۲ و ۳ با مقدار عدد ناسلت برای نیمکره‌های بالایی و پایینی ذره اول مقایسه شده است.

نتایج، برای محاسبات عدد پکلت (Pe) برای ذره منفرد با اندازه‌های مختلف قطر ذرات در میدان جریان گاز در شکل‌های ۱۰ و ۱۱ نشان داده شده است. محاسبه Pe در طول شعاع عمود بر حرکت جریان سیال انجام شده است. در اینجا x/d موقعیت شعاعی بدون بعد است، به طوری که $x/d = 0$ مرکز ذره و $x/d = 1$ سطح ذره و $x/d = 0.5$ نقطه‌ای است که به اندازه شعاع از سطح ذره دور است. عدد پکلت که بیان‌گر نسبت انتقال حرارت جابجایی به انتقال حرارت هدایتی است،

دارند، وقتی فاصله آنها $d/4$ است (مرکز تا مرکز ذرات پلیمر) می‌توان از برهمکنش ذرات صرفه‌نظر کرد و از روابط کلاسیک انتقال حرارت استفاده نمود. این در حالی است که در آرایش مثلثی، وقتی ذرات پلیمر به فاصله $1/5d$ از هم قرار می‌گیرند، برهمکنش آن‌ها قابل صرفه‌نظر است.

در شکل ۹ مقادیر عدد ناسلت برای دو قسمت مختلف ذره پلیمری، در حالت آرایش مثلثی و ذره منفرد آورده شده است. مشاهده می‌شود که مقدار عدد ناسلت در نیمکره‌ای که بین دو ذره پلیمری ۲ و ۳ احاطه شده (نیمکره بالایی ذره ۲) بسیار کمتر از مقدار عدد ناسلت در نیمکره پایینی ذره ۲ است. این اختلاف ناشی از تغییر میدان جریان بهعلت حضور ذره اول می‌باشد.

شکل ۹- عدد ناسلت بر حسب نسبت بدون بعد (x/d) برای ناحیه‌های متفاوت ذرات در آرایش مثلثی

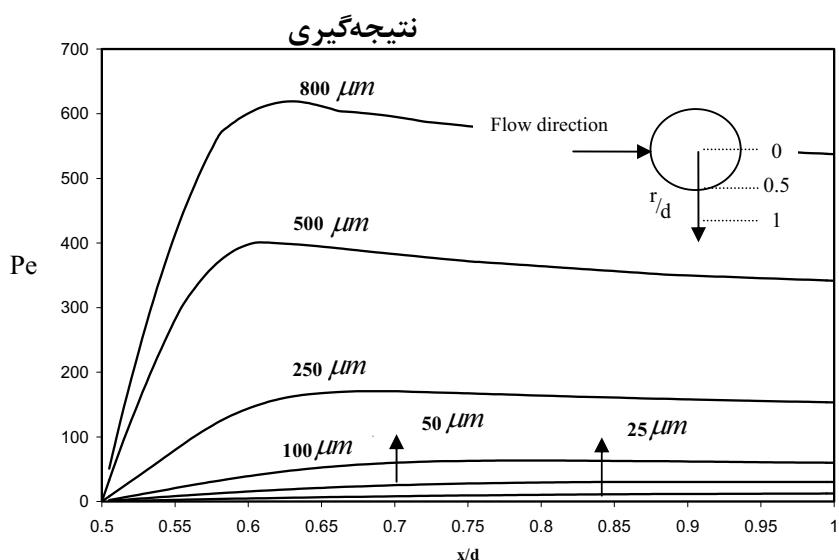
ذره، انتقال حرارت هدایتی نیز در انتقال حرارت از ذره ریز اهمیت پیدامی کند.

برای ذره با قطر $25\mu m$ ، مشاهده می‌شود که لایه مرزی مومنتوم احاطه کننده ذرات، غالباً باشعاع ذره هم ضخامت است. در اینجا انتقال حرارت هدایتی اهمیت پیدا می‌کند. این امر یک نتیجه مهم است، چرا که تمام روابط در دسترس برای محاسبه Nu تنها برای ذرات بزرگ توسعه داده شده‌اند. بنابراین فرض این که تمام حرارت از طریق جابجایی انتقال می‌یابد، برای ذرات بزرگ معتبر است. این فرض برای ذرات در مراحل اولیه پلیمریزاسیون با قطر کم، زیاد اعتبار ندارد.

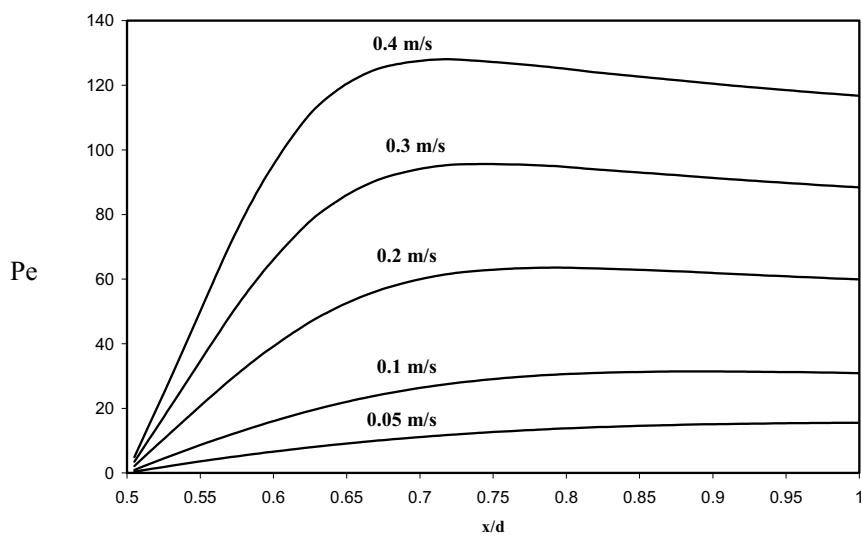
به صورت معادله ۹ تعریف می‌شود:

$$Pe = \frac{D\rho u C_p}{k_f} \quad (9)$$

شکل‌های ۱۰ و ۱۱ نشان می‌دهند، زمانی که $Pe > 1$ است، برای ذرات بزرگ، مقدار این عدد در نزدیکی سطح ذره افزایش می‌یابد. این بدان معناست که برای ذرات بزرگ‌تر به علت کوچک بودن ضخامت لایه مرزی در مقایسه با اندازه ذره، انتقال حرارت از طریق جابجایی انجام می‌شود. عکس این مسئله برای ذرات ریز در سرعت کم جریان‌های آزاد، صادق است و به علت هم اندازه بودن ضخامت لایه مرزی با اندازه



شکل ۱۰- عدد پکلت (Pe) بر حسب نسبت بدون بعد (x/d) برای ذرات مختلف با سرعت 0.2 m/s



شکل ۱۱- عدد پکلت (Pe) بر حسب نسبت بدون بعد (x/d) برای سرعت‌های مختلف گاز

انتقال حرارت صفر است و نقطه داغ در میان دو ذره تشکیل می‌شود. همچنین در حالتی که دو ذره پشت سرهم قرار دارند، وقتی ذرات پلیمر به فاصله $4d$ (مرکز تا مرکز) از یکدیگر قرار می‌گیرند، می‌توان از برهمکنش ذرات صرفه نظر کرد. در این حالت از روابط کلاسیک انتقال حرارت استفاده می‌شود. این در حالی است که در آرایش مثلثی ذرات، وقتی ذرات پلیمر به فاصله $1/5d$ از هم قرار می‌گیرند، برهمکنش ذرات قابل صرفه نظر است. با انجام شبیه‌سازی CFD و بررسی نتایج، نشان داده شده است که انتقال حرارت جابجایی تنها عامل انتقال حرارت از ذرات ریز پلیمر با فعالیت زیاد نبوده و انتقال حرارت هدایتی نیز در ذرات ریز پلیمر، حائز اهمیت است.

علایم و نشانه‌ها

C_p : ظرفیت حرارتی گاز (J/kgK)

μ : ویسکوزیته گاز (kg/ms)

Nu : عدد ناسلت

D : قطر ذره (m)

منابع

در این مقاله از دینامیک سیالات محاسباتی (CFD) برای بررسی انتقال حرارت از ذرات پلیمر در راکتورهای فاز گازی پلیمریزاسیون الفین‌ها در قطرها و سرعت‌های مختلف استفاده شده است. در این بررسی نشان داده شده است که روابط کلاسیک همانند رابطه Ranz-Marshall برای حالتی که ذرات پلیمر با هم برهمکنش ندارند، دقیق است. اما زمانی که برهمکنش میان ذرات پلیمر در نظر گرفته شود، این روابط در محاسبه ضریب انتقال حرارت خطای زیادی دارند. همچنین اثر عواملی چون قطر ذرات، سرعت گاز و شکل ذرات پلیمر بر مقدار ضریب انتقال حرارت بررسی شده است. اثر پیکربندی و فاصله ذرات از هم بر روی مقدار Nu در سطح ذره پلیمری نیز بررسی و ارائه شده است. با توجه به نتایج بدست آمده، ملاحظه می‌شود که وقتی ذرات با هم تماس دارند، مقدار موضعی

ρ : دانسیته فاز گاز (kg/m^3)

v : بردار سرعت گاز (m/s)

T : دمای گاز (K)

k_f : ضریب هدایت حرارتی گاز (W/ms)

Re : عدد رینولدز

Pr : عدد پرانتل

- [1] H. Hatzantonis, H. Yiannoulakis, A. Yiagopoulos, C. Kiparissides, Recent developments in modeling gas-phase catalyzed olefin polymerization fluidized-bed reactors: *The effect of bubble size variation on the reactor's performance*, Chemical Engineering Science, 55, 3237-3259, 2000.
- [2] T.F. McKenna, D. Cokljat, and P. Wild, *CFD Modeling of Heat Transfer During Gas Phase Olefin Polymerization*, Comput. Chem. Eng., 22, S285-S292, 1998.
- [3] T.F. McKenna, R. Spltz, and R. Cokljat, *Heat Transfer from Catalysts with Computational Fluid Dynamics*, AIChE Journal, Vol. 45, No. 11, 2392-241, 1999.
- [4] R. Fan, D.L. Marchisio, R. O. Fox, *Application of the direct quadrature method of moments to poly-disperse gas - solid fluidized beds*, Powder Technology, 139, 7–20, 2004.
- [5] H. Hatzantonis, A. Goulas, C. Kiparissides, *A comprehensive model for the prediction of particle-size distribution in catalyzed olefin polymerization fluidized-bed reactors*, Chem. Eng. Sci., Vol. 53, No. 18, pp. 3251-3267, 1998.