

유동층 PE반응기의 제어 현황

김재연 · 이혁준

1. 서 론

LLDPE(linear low density polyethylene) 또는 HDPE(high density polyethylene)를 생산하는 Union Carbide의 UNIPOL 공정은 유동층 반응기를 고분자 중합공정에 적용한 기술 중의 하나이다. 에틸렌과 α -올레핀을 유동층 반응기 속에 주입하여 Ziegler-Natta 촉매 (또는 최근에 개발되고 있는 metallocene촉매)를 이용한 공중합을 통해 선형의 저밀도 폴리에틸렌을 만들어낸다. 이 공정에 대한 개략도는 그림 1과 같다.

반응기 속으로 들어가는 공급물은 에틸렌, 1-부텐, 수소, 질소가스 등으로 구성되어 있다. 에틸렌은 액체로 주입되어 반응기에 들어가는 순간 기화되어 반응기내의 중합열을 제거하는 역할을 한다. 촉매와 조촉매도 연속적으

로 반응기속으로 투입된다. 한편 이 중합반응은 유동층 반응기속을 한번 통과할 때의 전화율이 매우 낮기 때문에 반응이 안된 단량체들은 재순환시킨다. 그리고, 이때 이 반응이 발열 반응이므로 반응기를 통과한 폴리머 입자와 미반응물들의 온도는 상당히 높기 때문에 냉각시킨 후, 새로운 공급물과 합쳐 반응기 안으로 재순환시킨다. 그리고 생성물은 반응기 중간부분에서 주기적으로 빼주는데, 이때 섞여 나온 미반응 기체들도 재순환하게 된다. 이런 과정을 통해서 폴리에틸렌이 생산되는데, 폴리머의 중요한 물성인 MI(melt index)와 밀도(density) 등을 맞추기 위해서 사용하는 촉매의 특성, 반응물의 조성, 반응기 온도, 압력 등을 조절한다. 제품경쟁이 심한 현실에서 폴

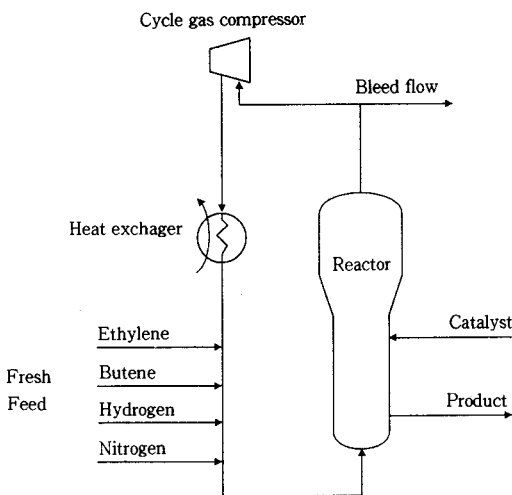
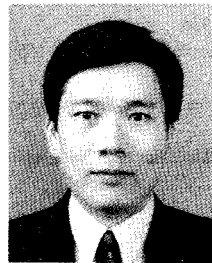
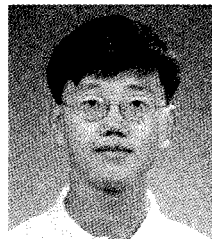


그림 1. UNIPOL ethylene polymerization process.



김재연

1982 인하대학교 화공과(학사)
 1985 서울대학교 화공과(석사)
 1989 한양화학 중앙연구소 연구원
 1994 Univ. of Massachusetts at Amherst 화공과 (박사, Post Doc.)
 1995 Univ. of Wisconsin at Madison 화공과(Post Doc.)
 1995~ 현재 한화그룹중합연구소 화성연구센터 책임연구원



이혁준

1992 서강대학교 화공과(학사)
 1997 서강대학교 화공과(석사)
 1997~ 현재 한화그룹중합연구소 화성연구센터 연구원

Control Strategies for PE Fluidized Bed Reactors

한화그룹중합연구소 화성연구센터(Jae Youn Kim and Hyuk Joon Lee, Chemicals Research Division, Hanwha Group R/E Center, Taejon 305-345, Korea)

리에틸렌의 물성을 향상시키면서 동시에 생산량을 최대한으로 하기 위한 방법들을 고려해야 하는데, 이러한 방법 중 두 가지를 소개하면 다음과 같다.¹⁻³

첫째로, 폴리에틸렌의 품질을 조절하는 것이다. 상업화되어 있는 폴리에틸렌은 여러 가지 종류의 다양한 등급의 제품이 생산되고 있다. 따라서 각 등급마다 요구되는 MI와 밀도가 주어져 있다. 결국은 어떤 한 등급을 생산하다가 다른 등급을 생산하려면 제어하고자 하는 MI와 밀도의 목표치가 달라지므로 전이과정(grade transition)에서 off-spec.을 최소화하면서 또 다른 정상상태로 빨리 들어갈수록 제어하는 것이 중요한 문제이다. 그런데, 이처럼 MI와 밀도와 같은 물성을 on-line으로 제어하기 위해서는 MI, 밀도나 반응기체들의 조성을 측정할 수 있어야 한다. 그러나 이런 것들을 샘플을 취해서 lab에서 분석과정을 통해서만 알 수 있으므로 수십 분에서 몇 시간 까지도 시간이 걸리는 문제가 있다. 따라서 on-line으로 이런 물성들을 예측할 수 있는 모델을 개발함으로써 문제를 해결하였다.

둘째로, 공정의 안정성과 최적의 전환율을 얻기 위해서는 중합반응 중 발생하는 열을 제거해줌으로써 원하는 온도로 유지해주어야 한다. 특히 이 중합반응은 기상반응이기 때문에 반응기 안에서의 반응물이 기체상으로 유지되어야 한다는 제약조건 때문에, 온도가 이슬점 이상이 되도록 해야 한다. 게다가 생성물인 고분자가 덩어리로 뭉쳐지지 않기 위해서는 고분자의 녹는점 이하에서 운전되어야 하기 때문에 상당히 좁은 온도범위에서 제어하는 것이 요구된다. 실제 상업화된 대부분의 선형 저밀도 폴리에틸렌의 기상중합 반응기는 75~110 °C에서 운전되고 있다. 또한 원하는 온도범위 안에서 운전되고 있다 할지라도 국부적인 지점에서 과열 등의 영향으로 원하는 온도 범위 밖에서 조업될 수도 있으므로 조심해야 한다. 그렇지 않으면 제품의 특성이 심각할 정도로 달라지거나 촉매의 수명이 줄어들어 생산성이 떨어지게 된다. 그런데 이

런 폴리에틸렌 생산 공정은 비선형성이 매우 심하므로 선형 제어기로는 그 성능에 한계가 있으므로 점차 비선형 ETC(error trajectory control)기법을 이용하고자 하는 연구가 진행되고 있다.

2. 본 론

2.1 기체 조성의 예측

폴리에틸렌 반응기에서는 제품의 물성을 조절하기 위해서 공급물에 포함된 에틸렌/수소, 에틸렌/부텐 기체의 조성 비율을 제어한다. 이를 위해서 기체 조성을 6분마다 한번씩 기체 크로마토그래프(gas chromatograph)로 분석한다. 그러나 on-line 제어를 보다 잘 하기 위해서는 6분 간격의 측정값만으로는 부족하다. 따라서 그 사이의 값들을 잘 예측하는 것이 필요하다. 이를 위해서 Smith predictor를 이용하는 방법이 있다. 이는 예측값과 측정값이 천천히 변화한다는 가정하에서 과거의 예측 오차를 이용하여 현재의 예측값을 보정하는 방법이다. 이로써 GC조성이 새롭게 갱신될 때까지 그사이의 값들을 연속적으로 부드럽게 예측할 수 있게 된다. 이 과정을 블록선도로 나타내면 **그림 2**와 같다.

Smith predictor는 예측값과 측정값과의 오차를 이용하여 현재의 예측값을 보정해주는 방법에 따라서 passive correction과 interactive correction의 두 가지로 나눌 수 있다. 우선 Smith predictor를 구성하기 위한 모델을 세우기 위해서 재순환 흐름의 순환속도가 매우 빠르다는 가정을 도입하여 CSTR 모델로 근사한다.

$$M \frac{dy}{dt} = y_f f_f - y f_v - w f_p$$

f_f, f_v, f_p : flowrate of feed, vent, product

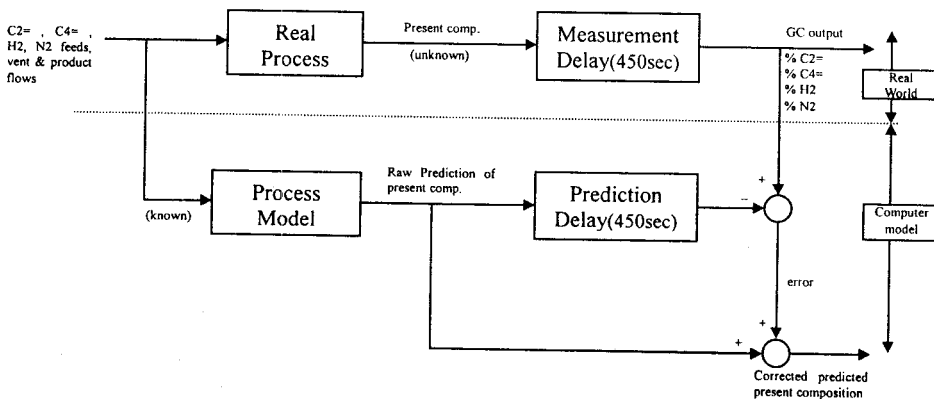


그림 2. 현재의 기체 조성값 예측을 위한 Smith predictor.

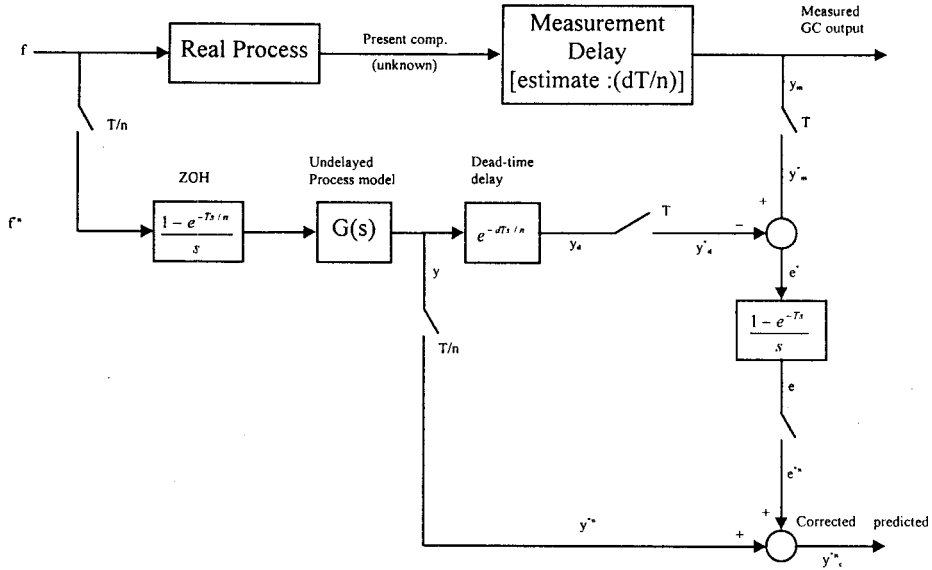


그림 3. Conventional Smith predictor using passive correction.

y_p, y, w : composition of feed, vent, product

위 모델을 정상 상태값을 중심으로 선형화하여 흐름속도와 조성사이의 선형모델을 얻는다.

$$Y(s) = G(s) f(s)$$

이 모델에 의한 출력 값에 대한 Smith predictor의 passive correction 방법은 그림 3과 같이 나타내어진다. 그러나 폴리에틸렌 반응기에서 생성물의 조성은 feed의 유량의 변화에 대해서 매우 민감하기 때문에, passive Smith predictor만으로는 실제 값을 추정하는데 무리가 있다.

따라서 Kalman filter와 비슷한 recursive filter를 이용해서 적분된 상태들의 값을 조정하는 interactive correction 방법을 쓰는 것이 바람직하다. 이는 그림 4에 나타나 있다.

2.2 MI와 밀도 추정 모델

MI나 밀도는 분자량 분포나 분자내의 짧은 측쇄가 얼마나 있는가와 관계가 있기 때문에 최종 제품인 선형 폴리에틸렌의 종류를 결정하는 주요 변수들이다. 그러나, 이러한 유연학적 성질들(short chain branch, crystallinity 등)과 운전 조업 조건과의 상관관계를 도출하는 것은 상당히 어렵다. 따라서, 이들보다는 생성 고분자의 벌크 특성인 MI나 밀도 등을 촉매의 특성이나 반응기체의 조성, 반응온도의 함수로 표현한다. 즉, 원하는 등급의 폴리에틸렌을 생산해내기 위해서는 조성 및 온도라는 변수를 조절하여 MI나 밀도를 제어해야 하는 것이다. 그

리기 위해서는 MI나 밀도를 on-line으로 측정해야 하는데, 기존의 방법으로는 실험실에서 분석하는 것인데 반응 시간에 비해 상당히 오랜 시간이 걸린다. 따라서 MI와 밀도는 on-line으로 추정되는 기체 조성과 온도측정값, 그리고 이론에 근거한 모델로부터 계산된다. 그리고 이 모델의 매개 변수들은 수 시간 후에 off-line으로 실험실에서 분석된 MI와 밀도로부터 갱신된다. 이러한 제어시스템의 정보흐름을 그림 5에 나타내었다.

우선 제품의 물성 제어기 설계에 이용되는 모델은 수소, 부텐 feed의 유량이 물성에 미치는 효과를 예측할 수 있어야 한다. 뿐만 아니라 반응기 온도, 촉매 투입량, vent유량, bed level의 변화에 대한 효과도 고려해야 한다. 따라서 수소, 부텐, 촉매, 폴리에틸렌에 대한 질량 보존식을 세우면 아래와 같다.

$$\frac{d[H_2]}{dt} = \frac{1}{V_g} \left\{ F_{H_2} - k_H Y[H_2] - \frac{[H_2]b}{[C_T]} - g[H_2] \right\} \quad (1)$$

$$\frac{d[M_2]}{dt} = \frac{1}{V_g + V_l} \left\{ F_{M_2} - k_{p_2} Y[M_2] - \frac{[M_2]b}{[C_T]} - S[M_2]O_p \right\} \quad (2)$$

$$\frac{dY}{dt} = F_{cat} a_{cat} - \frac{YO_p}{B_w} - k_d Y \quad (3)$$

$$\frac{d[B_w]}{dt} = Y \{ k_{p1}[M_1]m_{w1} + k_{p2}[M_2]m_{w2} - O_p \} \quad (4)$$

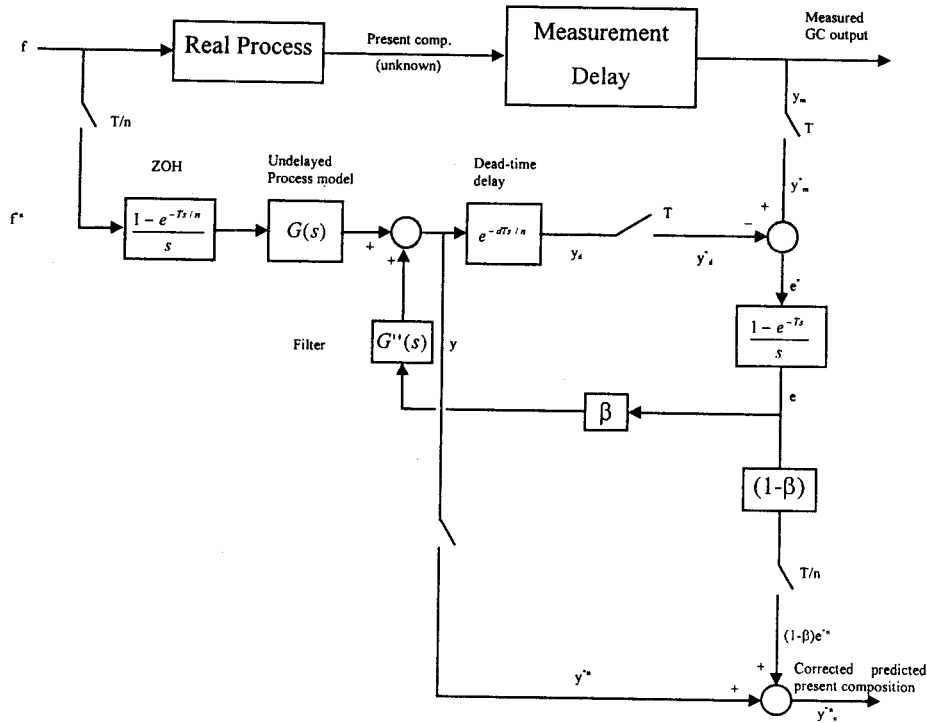


그림 4. Smith predictor using interactive correction.

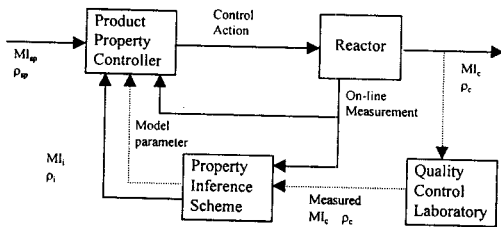


그림 5. Product property controller information flow diagram.

여기서, $[H_2]$, $[M_1]$, $[M_2]$ 는 수소, 에틸렌, 부텐의 농도이다. $[C_T]$ 는 기체성분의 전체 농도이다. V_g 는 반응기 시스템에 있는 기체의 부피이고, V_s 는 폴리머에 용해되어 있는 부텐의 부피이다. F_{H_2} , F_{M_2} , F_{cat} 는 수소, 부텐, 촉매가 시스템으로 유입되는 양이다. 그리고 Y 는 반응기 내 촉매의 활성부위의 몰수이고, a_{cat} 는 촉매 feed에 있는 활성부위의 농도를 나타낸다. B_w 는 유동층 베드내에 있는 폴리머의 질량을 의미한다. K_{fp} , k_{p1} , k_{p2} 는 중합반응에서 소비되는 수소, 에틸렌, 부텐의 속도상수이다. k_d 는 촉매부위의 비활성화 속도상수이고 b 는 vent 유량이다. O_p 는 폴리머 제품의 유량을, m_w , m_w2 는 에틸렌과 부텐의 분자량이다. 식 (1)~(4)는 수소의 feed 유량, 부텐, 에틸렌 농도, 폴리머 제품의 유량으로부터 반응기 내 수소, 부텐 농도를 예측하는데 이용된다. 그리고 여기서 예측된 반응기 내의 수소, 에틸렌, 부텐의

농도로부터 MI_i , ρ_i 를 추정한다. 이 모델은 (5)와 (6) 식과 같은 형태를 갖게 된다.

$$Y_1 = \ln(MI_i) = h_1([H_2], [M_1], [M_2], T) \quad (5)$$

$$Y_2 = \rho_i = h_2([H_2], [M_1], [M_2], T) \quad (6)$$

그리고 모델 (1)~(4)에 있는 매개변수 g_1 , k_{p2} , k_d , O_p 는 EKF(extended Kalman filter)를 이용해서 새로운 값들로 갱신한다. 그리고 (5), (6)식의 보다 구체적인 함수관계를 나타내면, (7), (8)과 같은 MI모델과, 밀도 모델을 구할 수 있다.

$$\ln(MI) = k_7 \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) + 3.5 \ln \left(k_6 + k_1 \frac{[M_2]}{[M_1]} + k_2 \frac{[M_3]}{[M_1]} + k_3 \frac{[H_2]}{[M_1]} + k_4 \frac{[R]}{[M_1]} + k_5 \frac{[I]}{[M_1]} \right) \quad (7)$$

$$\rho = \rho_0 + \rho_1 \ln(MI) - \left\{ \rho_2 \frac{[M_2]}{[M_1]} + \rho_3 \frac{[M_3]}{[M_1]} \right\}^{\rho_4} \quad (8)$$

여기서 $k_0, \dots, k_7, \rho_0, \rho_1$ 는 매개변수이며, $[M_1]$, $[M_2]$, $[M_3]$, $[H_2]$, $[R]$, $[I]$ 는 각각 에틸렌, 부텐, α -

올레핀, 수소, 기상 조촉매, 기상 불순물들의 농도를 나타낸다.

2.3 반응기 내의 온도 제어

2.3.1 ETC(Error Trajectory Control)

대개의 실제 화학공정은 비선형적인 특성을 보인다. 그러나 연속적인 조업을 할 경우 정상상태가 존재하므로 이를 기준으로 선형화한 모델을 이용하여 제어를 설계하는 것이 가능하다. 그러나 발열이 심한 반응기 시스템의 경우 매우 심한 비선형성을 나타내므로 선형 제어기만 가지고 제어하는 것은 불가능하다. 게다가 조작변수가 제약 조건에 걸려 발생하는 비선형성도 무시할 수 없다. 따라서 최근에는 선형 제어기의 한계를 인식하고 많은 사람들이 비선형 제어기 설계에 관심을 갖고 연구하고 있다. 예를 들면, GLC, 비선형 IMC, GMC, ETC와 같은 기법들이 이러한 범주에 속한다. 여기에서는 그 중에서도 비선형 ETC기법을 GPPER(gas phase polyethylene reactor)에 적용한 경우에 관하여 언급하고자 한다.⁴

일반적으로 비선형 시스템은 아래와 같은 미분방정식으로 표현 가능하다.

$$\frac{dx}{dt} = f(x) + g(x)u \quad (9)$$

$$y = h(x)$$

여기서 $f(x)$ 는 drift vector로서 시스템의 상태가 어떻게 전이되는가를 나타내는 항이고, $g(x)$ 는 control weighting vector로서 제어가 시스템에 어떤 영향을 미치는지를 나타내는 항이다. ETC기법이란 제어기 성능을 나타내는 index인 추적 오차 제적 함수 $K(\cdot)$ 를 0으로 만드는 제어입력을 찾아내는 것이다. 보통 $K(\cdot)$ 는 추적 오차와 시스템의 상대차수(relative order)까지의 오차에 대한 도함수와 각 항에 대한 계수들의 합으로 구성된 함수들이다. 상대차수는 시스템의 차수라고 말할 수도 있는데, 즉 조작변수가 몇 단계 후에 제어변수에 영향을 미치는가를 의미한다.

$$e(t) = y_d(t) - y(t) \quad (10)$$

여기서 y_d 는 출력변수의 설정점 제적이며, $y(t)$ 는 시간 t 에서의 시스템의 출력을 의미한다.

따라서 만일 어떤 시스템의 상대차수가 r 이라면 $K(\cdot)$ 는 (11)식과 같이 주어진다.

$$K(\cdot) = e^{(r)}(t) + \beta_{r-1}e^{(r-1)}(t) + \beta_{r-2}e^{(r-2)}(t) + \dots + \beta_0 e(t) = 0 \quad (11)$$

그리고 모델의 부정확성이나 매개 변수들의 오차를 고

려하여 PI 항을 $K(\cdot)$ 에 추가하면, (12)식과 같이 된다.

$$K(\cdot) = e^{(r)}(t) + \beta_{r-1}e^{(r-1)}(t) + \beta_{r-2}e^{(r-2)}(t) + \dots + \beta_0 e(t) + K_I \left[e(t) + \frac{1}{\tau_{IE}} \int_0^t e(\tau) d\tau \right] = 0 \quad (12)$$

(9)식과 (10)식을 이용하여 (11), (12)식을 풀면, 제어입력 $u(t)$ 를 얻을 수 있다.

2.3.2 Heat Exchanger Model

그림 1과 같은 GPPER 시스템은 외부의 열 교환기를 통해서 제열함으로써 온도를 제어하도록 구성되어 있다. 반응기에서 나오는 뜨거운 기체는 열 교환기의 튜브안쪽으로, 냉각수는 바깥(shell)쪽으로 들어가서 역류방식으로 열교환을 한다. 따라서 반응기만을 모델링하였던 지금까지의 방법과는 달리 외부 열 교환기에 대한 모델을 제어기 설계에 이용한다면 보다 좋은 제어 성능을 나타낼 것으로 예상된다. 따라서 몇 가지 형태의 열 교환기 모델이 제시되었다.

Model Type A. First-order dynamic heat removal rate : 가장 쉽게 생각할 수 있는 것은 제열속도를 임의의 시상수를 갖는 1차 동특성 모델로 근사하는 방법이다.

$$\frac{dQ}{dt} = \frac{Q_{ss} - Q}{\tau}$$

Q 와 Q_{ss} 는 각각 동적, 정적 제열 속도를 의미한다.

$$Q_{ss} = F_g C_{pg} (T - T_{go,ss})$$

F_g 와 C_{pg} 는 유량과 기체의 열용량이다. T 와 $T_{go,ss}$ 는 열 교환기로 들어가는 기체의 온도와 정상상태에서의 기체의 출구 온도이다.

$$T_{go,ss} = \frac{T_{wi}[1 - \exp(\gamma)] - T[1 - \eta]}{\eta - \exp(\gamma)}$$

단,

$$\gamma = AU \left(\frac{1}{F_g C_{pg}} + \frac{1}{F_w C_{pw}} \right); \eta = \frac{F_g C_{pg}}{F_w C_{pw}}$$

T_{wi} 는 열 교환기로 들어가는 냉각수의 온도이며, A 는 전열면적, U 는 열전달 계수이다. F_w , C_{pw} 는 냉각수의 유량과 열용량을 의미한다.

위의 모델링 방법은 간단하다는 장점은 있으나 정확성에 있어서는 다소 부족한 점이 있다. 따라서 Alspop과 Edgar는 제열 시스템의 모델에 대한 정확성을 높이기 위해서, N-staged 열 교환기 모델을 제안했다. 이는 그림 6과 같이 열 교환기 N개의 조그만 역류 열 교환기가 시

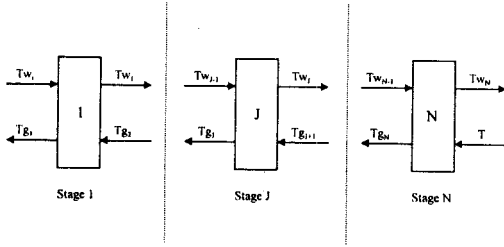


그림 6. N-stage recycle gas cooler model.

리프로 연결되어 있으며, 각 부분은 완전한 back-mixing이 이루어진다는 가정을 도입한 모델링 방법이다. 여기에는 LMTD(log mean temperature difference) driving force model과 LTD(linear temperature difference) driving force model의 두 가지 형태가 있다.

Model Type B. Log-mean temperature difference driving force : 이 모델에 대한 에너지 수지식을 세우면 아래와 같다.

$$\frac{dT_{w,j}}{dt} = \frac{NF_w}{M_w}(T_{w,j-1} - T_{w,j}) - \frac{UA}{M_w C_{pw}} \Delta T_{lm,j} \quad j=1, \dots, N$$

$$\frac{dT_{g,j}}{dt} = \frac{NF_g}{M_g}(T_{g,j-1} - T_{g,j}) + \frac{UA}{M_g C_{pg}} \Delta T_{lm,j} \quad j=1, \dots, N$$

여기서,

$$\Delta T_{lm,j} = \frac{(T_{w,j} - T_{g,j+1}) - (T_{w,j-1} - T_{g,j})}{\ln \frac{(T_{w,j} - T_{g,j+1})}{(T_{w,j-1} - T_{g,j})}}$$

$\Delta T_{lm,j}$ 는 j번째 stage에서 물과 기체사이의 log-mean temperature difference이며, M_w , M_g 는 각각 열 교환기의 물과 기체가 있는 곳에서의 전체 molar holdup이다. $T_{g,N+1}(=T)$ 는 입구쪽의 기체 온도이고, $T_{w,0}(=T_{w,1})$ 는 외부 열 교환기쪽으로 들어가는 입구쪽 냉각수의 온도이다. $T_{g,j}$ 와 $T_{w,j}$ 는 j번째 stage에서의 기체 온도와 냉각수 온도를 나타낸다.

Model Type C. Linear temperature difference driving force :

$$\frac{dT_{w,j}}{dt} = \frac{NF_w}{M_w}(T_{w,j-1} - T_{w,j}) - \frac{UA}{M_w C_{pw}}(T_{w,j} - T_{g,j}) \quad j=1, \dots, N$$

$$\frac{dT_{g,j}}{dt} = \frac{NF_g}{M_g}(T_{g,j-1} - T_{g,j}) + \frac{UA}{M_g C_{pg}}(T_{w,j} - T_{g,j}) \quad j=1, \dots, N$$

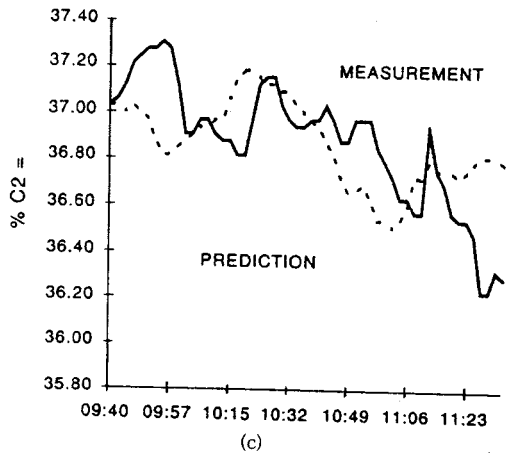
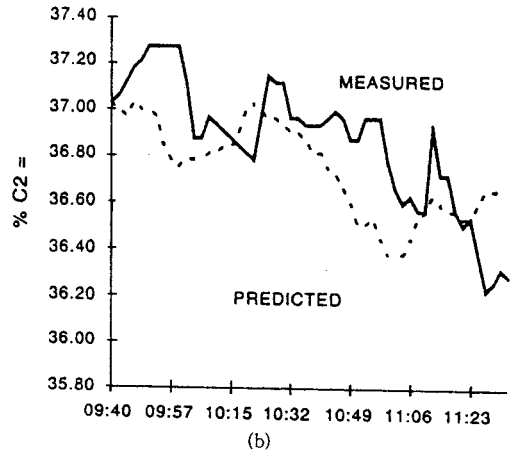
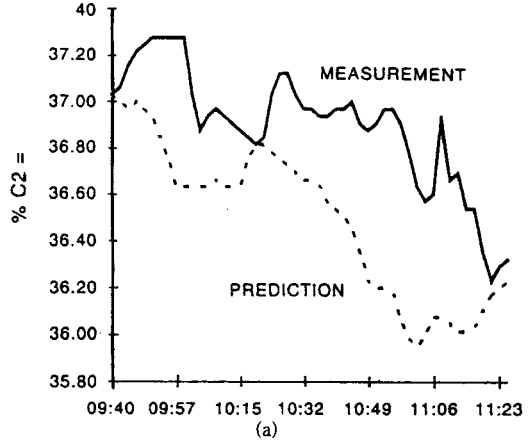


그림 7. Prediction performance of Smith predictor using passive, interactive correction.

3. 적용 결과

3.1 Prediction Performance of Smith Predictor Using 그림 7(a)는 Smith predictor를 사용하지 않고 물질수

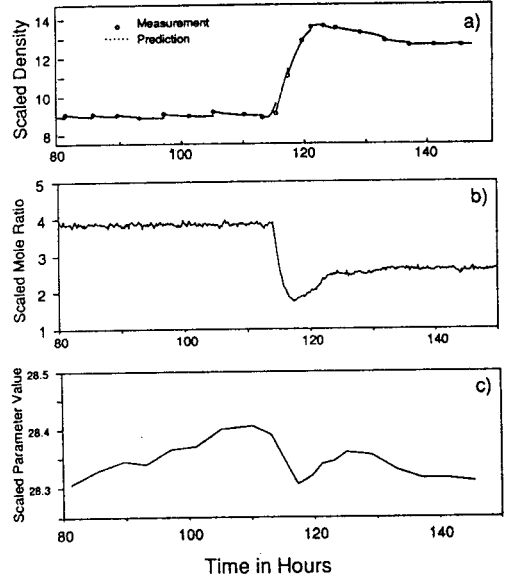
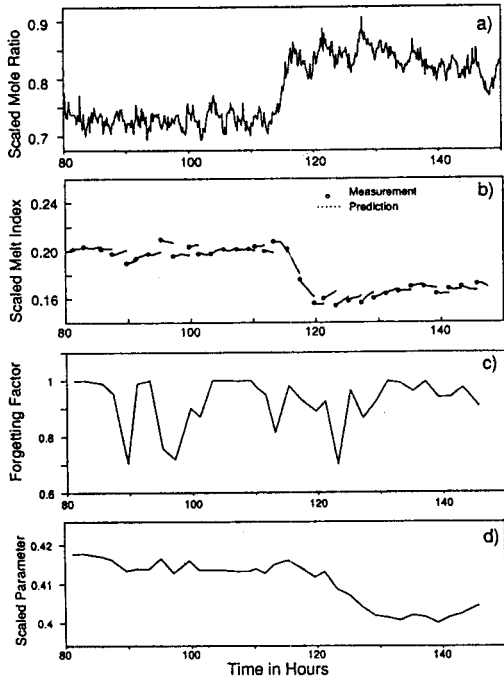


그림 8. Recursive updating of on-line density & MI model using industrial data.

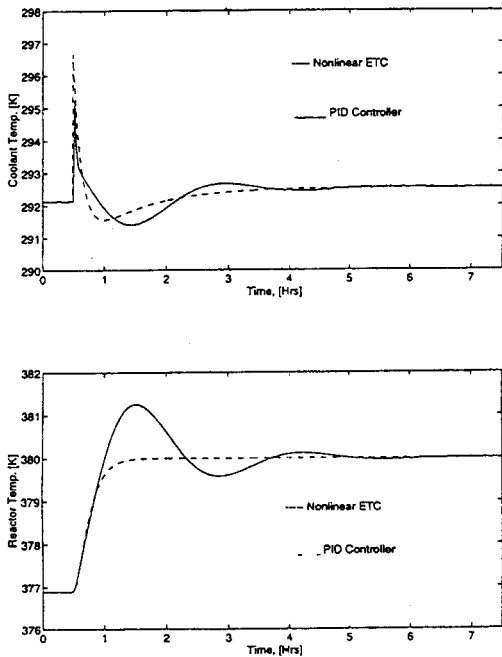


그림 9. Comparison of reactor temperature and coolant temperature response.

지식만을 이용한 모델로 에틸렌 기체의 조성을 예측하였을 경우, 측정된 기체 조성과의 차이를 나타낸 것이다. 반면 그림 7(b), 7(c)는 각각 passive correction을 이용

한 Smith predictor와 $\beta=0.1$ 인 interactive correction을 이용하는 Smith predictor로 예측한 값들과 측정값과의 오차를 보여준다. 이 중에서 interactive correction을 이용한 Smith predictor를 이용할 경우의 예측 성능이 가장 우수함을 알 수 있다.

3.2 Prediction Using MI, Density Model

그림 8은 각각 (7), (8)식의 모델을 이용하여 MI와 밀도를 예측하고 있음을 보여주고 있다. 점으로 표시된 것은 2-3시간마다의 시료 분석결과로부터 나온 MI와 밀도를 on-line으로 feedback 하여 보정을 해주면서 그 사이의 시간동안 예측기로서의 역할을 잘 함을 보여주고 있다.

3.3 Temperature Control of Reactor Using Nonlinear ETC

그림 9는 $T=377\text{K}$, $T_{wi}=292.14\text{K}$, $F_c=5.8\text{ kg/h}$, $E_a=5.5\text{ kcal/mol}$ 인 운전조건에서 반응기 온도의 설정치를 계단 모양으로 380 K까지 바꾸었을 때의 응답 결과이다. 선형 제어기인 PID에 비해 열 교환기 모델 A를 이용한 nonlinear ETC의 경우 overshoot이 훨씬 적고 설정값에 빨리 수렴해감을 보여준다.

4. 결 론

이상에서 LLDPE를 생산하는 UNIPOL반응기를 운전할 때 보다 성능 향상을 위해 적용하는 기술들을 요약해

참 고 문 헌

보았다. 즉, 폴리머의 품질을 제어하기 위해 on-line제어를 위한 센서 역할을 하는 추정기들과 여러 가지 모델들, 제어 기법들에 대해 간단히 설명하였다. 경쟁이 치열해지는 시장상황과 보다 균일하며 물성이 향상된 고분자 제품을 생산하기 위해서는 최신제어 기법의 도입이 필요하게 되며, 본 고에서 살펴본 기법들을 실제 적용함으로써 이전보다 더 안정된 상태에서 수요자의 요구사항을 재빠르게 맞추도록 생산하는 것이 용이하게 이루어지리라고 기대한다.

감사의 글: 본 고를 발표할 수 있게 허락한 한화그룹 종합연구소에 감사를 표합니다.

1. K. B. McAuley and J. F. MacGregor, *AIChE J.*, **37**(6), 825 (1991).
2. K. B. McAuley and J. F. MacGregor, *AIChE J.*, **38**, 1564 (1992).
3. K. B. McAuley and J. F. MacGregor, *AIChE J.*, **39**, 855 (1993).
4. S. A. Dadebo, M. L. Bell, P. J. McLellan, and K. B. McAuley, *J. Proc. Cont.*, **7**, 83 (1997).