

行政院國家科學委員會專題研究計畫 期中進度報告

反應/分離迴流程序之設計與控制(1/3)

計畫類別：個別型計畫

計畫編號：NSC92-2214-E-002-021-

執行期間：92年08月01日至93年07月31日

執行單位：國立臺灣大學化學工程學系暨研究所

計畫主持人：余政靖

計畫參與人員：洪嘉聰、陳逸航

報告類型：精簡報告

報告附件：出席國際會議研究心得報告及發表論文

處理方式：本計畫可公開查詢

中 華 民 國 93 年 5 月 27 日

行政院國家科學委員會補助專題研究計畫成果報告

清淨製程：反應/分離迴流程序之設計與控制(1/3)

計畫類別： 個別型計畫 整合型計畫

計畫編號：NSC92 - 2214 - E - 002 - 021 -

執行期間： 92年 08月 01日至 93年 07月 31日

計畫主持人：余政靖

本成果報告包括以下應繳交之附件：

赴國外出差或研習心得報告一份

赴大陸地區出差或研習心得報告一份

出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份

國際合作研究計畫國外研究報告書一份

執行單位：國立台灣大學

中 華 民 國 九 十 三 年 五 月 二 十 七 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

清淨製程：反應/分離迴流程序之設計與控制(1/3)

迴流程序的動態：多重入料三成分系統

計畫編號：NSC92-2214-E-002-021-

執行期限：92年08月01日至93年07月31日

主持人：余政靖

國立台灣大學化工系

計畫參與人員：洪嘉聰、陳逸航

國立台灣大學化工系

1、中文摘要

在本研究中針對一個兩階不可逆反應 ($A+B=2C$) 的多入料迴流系統，探究了這個系統在不同穩態設計下的動態情形以及控制上的問題。

首先由質量平衡式出發，得到了以系統設計參數為函數的轉移函數 ($z_C, z_A/z_B$)，此轉移函數能夠清楚的描繪出在組成三角圖上任一點的迴流程序動態情形，這讓我們發現了多入料的迴流工廠存在內部流不穩定的特性 (一個極點在原點)，只有兩股進料相等時系統才能穩定，在此證明了 Luyben 所提的迴流工廠進料必須滿足化學計量平衡，這個發現也讓我們瞭解到前饋控制結構在實務中是不能使用的，必須使用回饋控制來確保兩股進料相等。在除去不可使用的前饋控制之後，我們還提出了幾個控制結構，對於這些結構使用非線性分析 (bifurcation analysis) 的方式，此方式提供了我們一個全面性的視野，讓我們瞭解使用各控制結構的穩定區域。另外線性轉移函數讓我們看到了在各個穩態設計點上各控制結構所得到的動態響應情形，也可經由極點的位置來選擇適用的控制結構，對於所選擇的控制結構更可以導入一個動態補償器來改善得到完美產控制。

最後使用一個反應器加上兩根蒸餾塔的真實嚴謹系統來印證線性分析方式的可靠度，結果顯示不只控制結構的選擇無誤，也能夠達到近乎完美產能控制的響應。

Abstract

In this work we explore dynamics and control of recycle plants with multiple feed streams under different process designs. Without loss of generality, a ternary system with second order irreversible reaction, $A+B=2C$, is used to illustrate the dynamics and control of such multiple-feed systems. Given design parameters, process transfer function matrices can be derived analytically (design parameters are expressed in terms of reactor composition, i.e., z_A, z_B , and z_C in the triangular composition space). Therefore, we are able to evaluate recycle dynamics for different designs (e.g., different conversion, z_C , and reactant distribution, z_A/z_B). The results show that, irrespective of design parameters, recycle plants with multiple feeds are internally unstable system (a pole at the origin). The recycle plant can be stabilized only if the feed flows are exactly the same at steady-state. This proves Luyben's conjecture that we have to balance the reactants down to the last molecule. This also implies feed-ratio control scheme will not work in practice and one of the feed flows should be adjusted via feedback. After eliminating unworkable control structures, remaining candidate control structures are evaluated next. Globally, for a given control structure, the bifurcation diagram is used to identify unstable region (if exist) in the composition space and, subsequently, a stability boundary can be drawn.

Locally, the speed of recycle flows (pole location from transfer function matrix) is used select the preferable one. Finally, dynamical compensation to the feed flow is devised according to the transfer function matrix such that almost perfect production rate control can be achieved. A nonlinear recycle process with one reactor and two columns (programmed in FORTRAN) is used to illustrate the usefulness of the proposed analysis. Simulation results clearly indicate that correct control structure is selected and almost perfect production rate changes can be achieved.

2、簡介

典型的化工程序是由數個子單元程序所組成。然而整個製造程序的完成與每個子單元是否操作平順有關。過去大多的研究大多致力於獨立單元的探討，例如：反應器 (Perlmutter, 1965; Lee and Weekman, 1976; Ray, 1983) 或蒸餾塔 (Shinsky, 1984; Buckley et al, 1985; Luyben, 1992)。

關於迴流程序的動態與控制等問題的探討，在過去的研究中，已經有許多位學者針對迴流程序作探討。如果從動態的回饋系統來分析這系統，我們可以將此迴流系統式視為程序迴圈增益小於 1 的正向回饋系統。在一般的正向回饋系統中，假設我們增加系統程序迴圈的穩態增益時，我們可以發現兩個重要的特性：(1) 此行為會使系統的動態響應變慢，(2) 另外一方面也會增加系統直接路徑的穩態增益。

另外非線性分析 (bifurcation) (Bildea, et al., 2003) 用於迴流工廠的研究給了我們一個新的啟發，非線性分析讓我們看到在全部設計範圍上的系統穩定度及靈敏度。分歧圖 (bifurcation diagrams) 能夠清楚的指出任何設計及操作參數下的穩定度。相反的，使用線性分析的方法能夠讓我們看到一個特定設計點上的動態行為，但假如線性模式為程序設計參數的函數的話 (反應速率常數、轉化率、反應物組成分佈)，我們將可得到一個系統動態的完整視野，本文將致力於此研究，進而延伸到控制結構的設計。

3、迴流系統動態-簡單模式

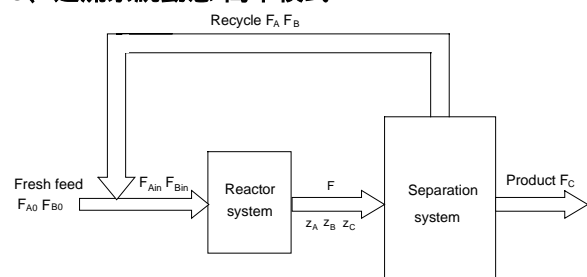


圖 1. 三成分迴流程序示意圖

一個簡單的反應器與分離系統的迴流程序，控制結構設計的問題已經由 Papadourakis 等人(1987)與 Wu 和 Yu(1996)所探討，但是在討論迴流程序之前，我們先針對迴流程序中的單元有一些了解，一般的迴流程序大概分成兩部分：一部份為反應器；另外一部份就是分離單元。簡單的迴流系統就由這兩單元組合而成，我們所要探討的迴流程序的流程圖就如圖所示，圖中的反應器為一恆溫 CSTR，兩股新鮮進料 (F_{A0} , F_{B0}) 進入反應器內反應，反應為 $A+B \rightarrow 2C$ 的不可逆二階反應，其反應速率可以用下式來表示：

$$R = kV_R z_A z_B \quad (1)$$

反應器流出股 F (mol/hr⁻¹) 進入分離系統內作分離，假如產品 C 為輕成分或重成分可使用一根蒸餾塔將 C 由塔頂或塔底分出，未反應完的 A 與 B 一起由另一端迴流回反應器繼續反應，假如 C 為中間成分則需使用兩根蒸餾塔來分離，此時有先分離重產物或先分離輕產物兩種選擇，產品 C 由第二根塔流出。

3.1 反應器系統

過去的研究對於反應器系統的轉移函數分析都是針對反應器出口的濃度 (z_A , z_B) 作分析，並將反應物濃度 (z_A , z_B) 視為系統的狀態變數，卻沒有針對系統的各成分的流量作分析，不過對於迴流系統的分析工作，利用流量的分析方式對於往後的迴流系統較容易分析討論，Yu and Chang (2002) 使用流量取代濃度作為系統的狀態變數，使迴流程序的分析簡單了許多。由圖所示，反應器有 F_{Ain} , F_{Bin} 兩股進料，反應器出口流量 F 實際上包含了 F_A , F_B , F_C 三股純成分流量，此為一個 3×2 的多變數系統，我們可預期能夠得到一個 3×2 的轉移函數矩陣，並加以線性化及拉式轉換 (Laplace Transfer)，並將變數 F 以 $F_{A0} + F_{B0}$ 取代，且將兩個參數 z_C , λ 來取代原有的 τ , x ，其中 λ 為反應物的分佈 (z_B/z_A)，得到以反應器內狀態為參數的轉移函數：

$$\frac{F_A(s)}{F_{in}(s)} = \frac{(1-z_c)}{(1+\lambda)} \cdot \frac{s + \frac{k(1-z_c)(\lambda z_c + 2\lambda^2 z_c + z_c + 2\lambda)}{z_c(1+\lambda)^2}}{s + \frac{k(1-z_c)(\lambda^2 z_c + z_c + 2\lambda)}{z_c(1+\lambda)^2}} \quad (2)$$

$$\frac{F_B(s)}{F_{in}(s)} = \frac{\lambda(1-z_c)}{(1+\lambda)} \cdot \frac{s + \frac{k(1-z_c)(\lambda z_c + \lambda^2 z_c + 2z_c + 2\lambda)}{z_c(1+\lambda)^2}}{s + \frac{k(1-z_c)(\lambda^2 z_c + z_c + 2\lambda)}{z_c(1+\lambda)^2}} \quad (3)$$

$$\frac{F_C(s)}{F_{in}(s)} = z_c \cdot \frac{s + k(1-z_c)}{s + \frac{k(1-z_c)(\lambda^2 z_c + z_c + 2\lambda)}{z_c(1+\lambda)^2}} \quad (4)$$

由以上三式可以清楚觀察到反應器系統的設計參數與動態響應的關係，由轉移函數的可輕易的得到此系統的極點 (pole) 位置，而此值與系統的穩定度及動態響應快慢有關。此系統具有一個極點 $p = -k(1-z_c)/(\lambda^2 z_c + z_c + 2\lambda)/(z_c(1+\lambda)^2)$ ，由圖的根軌跡圖可以發現，當 C 成分 z_c 等於零時，系統的極點位於負無限遠的位置，意味著系統的動態很快，此乃因為這代表著反應器為一小反應器，系統動態快是可以理解的，當 z_c 慢慢增加到 1 時，極點位置漸漸接近原點，動態響應越來越慢，乃因反應器變大所致，如圖 2(A) 所示。

除了反應器體積會影響動態快慢外，反應的快慢也是影響動態快慢的一個因素，由反應式 $r = V_R k z_A z_B$ 可知，影響反應快慢的除了體積 V_R 外，尚有 z_A , z_B 乘積跟反應常數 k ，對於一個特定的 z_c 來說， $z_A + z_B$ 的值是固定的，若想使乘積最大， $\lambda = z_B/z_A$ 要等於 1，由圖可發現當 $\lambda = 1$ 時，系統的極點在 $-k(1-z_c)(1+z_c)/(2z_c)$ 的位置，當反應器內兩反應物 A , B 分佈差異變大時，即 $\lambda = 0$ 或 ∞ 時，可得極點位置在 $-k(1-z_c)$ ，明顯比 $\lambda = 1$ 時接近原點，所以由此可

知當反應器內 C 成分組成 z_c 決定時，相等莫耳分率的反應物 A , B 會帶給系統較快的動態響應。與反應快慢有關的反應常數 k 同樣也影響極點的位置，當 k 值大時，反應速率快，極點的位置也遠離原點，得到較快的動態響應。如圖 2(B) 所示。

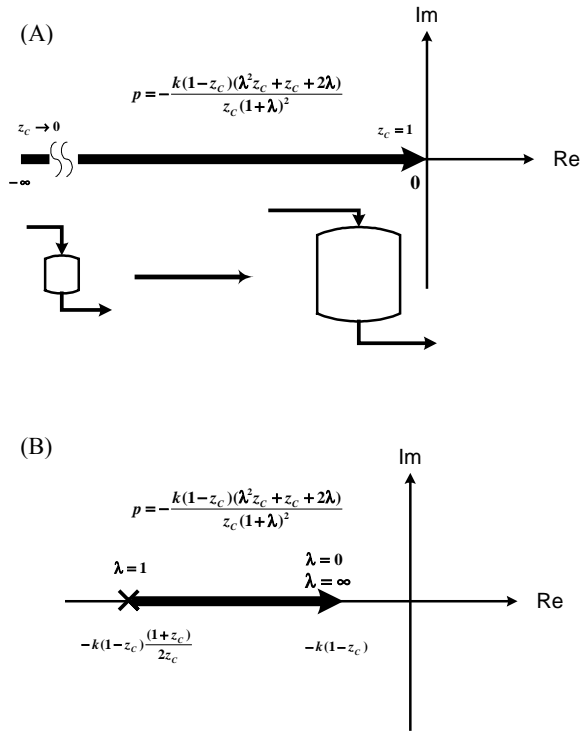


圖 2. 反應器系統根軌跡圖

3.2 反應器/分離器系統

所以此簡單的迴流系統如圖所示，它包含了一個反應器與一個分離器，分離器視系統各成分的相對揮發度可以是兩根蒸餾塔也可以是一根蒸餾塔，首先對於簡單迴流系統中的蒸餾塔，我們可以假設系統的分離為完美分離，所以反應器內的未反應物 A , B (F_A , F_B) 將會迴流到反應器內繼續參與反應，而生成物 C (F_C) 由蒸餾塔直接分離出去。

由以上這些迴流程序分析的結果，我們可以清楚的發現發現一些 $A+B \rightarrow 2C$ 的三成分系統的特性：

1. 由迴流程序動態響應圖的結果可以發現，不管系統如何設計，例如改變反應器的 C 成分莫耳分率 z_c ，或者反應物 A , B 的莫耳分率分佈 λ ，只要系統為完美液位控制，且沒有分離器的分離動態，出口的產品便是完美變化，即產品的流率變化與進料變化一樣且立即，外部流（出口的動態）轉移函數等於 1 即可輕易明白此系統特性。
2. 四條內部（迴流股）流轉移函數可以發現，此四條轉移函數都有 $1/s$ 存在，即有一個極點在原點上，對於這樣的系統，我們可以說它具有不穩定的特性。但對於一個多變數系統，單看一個轉移函數是不客觀的，所以我們假設兩股新鮮進料變化 $F_{A0}(s)$, $F_{B0}(s)$ 具有一個 ε 的差值，即 $F_{A0}(s) - F_{B0}(s) = \varepsilon$ ，我們將此關係式代入轉移函數矩陣並展開，我們可以理解只要展開後的轉移函數分子的常數項能夠消失，分子分母將可同時除以 s ，那麼將會降階成一個一階的轉移函數，也就不會有位於原點的不穩定極點，經過觀察，我們發現到只要此差值 ε 等於零，也就是 $F_{A0}(s)$ 等於 $F_{B0}(s)$ ，內部流的不穩定根會自動消失，系統變為穩定的系統。假如 ε 不等於零時，我們可以得到如系統動態響應圖，圖中的兩股內部流 F_A , F_B 均為發散。

- 對於一個系統的動態響應來說，我們所在意的是此系統在穩定下的情形，所以我們由 $F_{A0}(s)$ 等於 $F_{B0}(s)$ 為條件展開轉移函數矩陣，可得到三條一階的轉移函數。對於系統的內部流來說，當反應物 A、B 分佈 (λ) 改變時，極點都固定在 $-k(1-z_c)$ 的位置，與 λ 無關，這是因為迴流系統的動態快慢，主要取決在迴流量的多寡，而 λ 的變化只是決定迴流中反應物 A、B 的分配而已，所以與系統動態快慢無關。
- 相反的，改變反應器產品 C 莫耳分率 z_c ，極點位置隨之變動，當 z_c 接近 1 時，極點接近原點， z_c 接近零時，極點落在 $-k$ 的位置，由根軌跡圖可以發現， z_c 小時即代表小反應器大蒸餾塔，會得到較快的動態響應， z_c 大的大反應器小蒸餾塔得到較慢的動態響應。

3.3 控制結構分析

當系統的反應器為完美液位控制，且分離系統為完美離並不具分離動態時，我們可以得到以上的分析結果，在特性一中，我們再度驗證了 Luyben 所提出的要點：迴流程序的穩態設計變化時，程序的動態行為很類似，在迴流程序中，對於所有的穩態設計，系統的外部流行為都很一致，也就是說此系統可以達到完美控制。在特性二中，我們看到了這個迴流系統存在著內部流不穩定的特性，但我們可由程序本身的設計將其穩定下來，也就是只要 $F_{A0}(s)$ 等於 $F_{B0}(s)$ ，這個系統就能夠穩定，也就是說只要反應物的新鮮進料能夠符合反應的化學計量係數，系統就能夠穩定。Sagar et al. (2002) 13 使用一個有系統的方法對複雜工廠的質量平衡所做了研究，我們現在根據其方法來分析 $A+B \rightarrow 2C$ 的系統，如圖所示，反應器、分離器可以視作一個完整的系統，所以此系統有兩股進料 (F_{A0} 、 F_{B0})、一股出料 (F_C)，也就是有三個流量可以調，經由其分析方法，得到系統必須遵守質量平衡式如下：

$$F_{A0} = F_{B0} = \frac{1}{2} F_C \quad (5)$$

所以此系統的自由度只剩下 1，即給定其中一股流，其他兩股流也就被決定了，所以 $F_{A0}(s)$ 必須等於 $F_{B0}(s)$ ，此與我們的理論相符合。

有了上述的理論，我們可以瞭解 $F_{A0}(s)$ 、 $F_{B0}(s)$ 不可以同時被指定，也就是說假如兩個都使用流量控制來操作的話，只要其中一股流量有偏差，如特點二中的證明，只要此偏差量不等於零，那麼內部流轉移函數中的分母的 s 將無法消去，系統中的其中一個反應物會一直累積，迴流量也一直增加，而另一個反應物則逐漸減少，迴流量也減低，系統將無法穩定下來。這告訴我們，在此三分系統中，前饋控制結構是不可行的，因為只要 F_{A0} 、 F_{B0} 的比例出了偏差，那麼系統將會不穩定。

所以我們認定要對此系統作控制，那麼就一定需要採用由系統內部狀態來控制其中一股新鮮進料的回饋控制，如圖 3。回饋控制所式的，此回饋控制結構的產能調節變數為 F_{B0} ，另一股新鮮進料 F_{A0} 由迴流股 F_A 來控制，可以寫成 $F_{A0} = F_{Ain} - F_A$ ，將此式代入轉移函數矩陣中，能夠得到 F_A 的展開式如下所示

$$F_A = G_{p11}(F_{Ain} - F_A) + G_{p12}F_{B0} \quad (6)$$

整理後可得到此控制結構下的 F_A 對 F_{Ain} 及 F_{B0} 的轉移函數

$$F_A = \frac{G_{p11}}{1+G_{p11}} F_{Ain} + \frac{G_{p12}}{1+G_{p11}} F_{B0} \quad (7)$$

所以此轉移函數的分母將不包含不穩定的 s ，取而代之的是一個兩階的式子，我們求出在不同穩態值下的極點，可發現這樣的回饋控制結構在某些設計區域是能穩定操

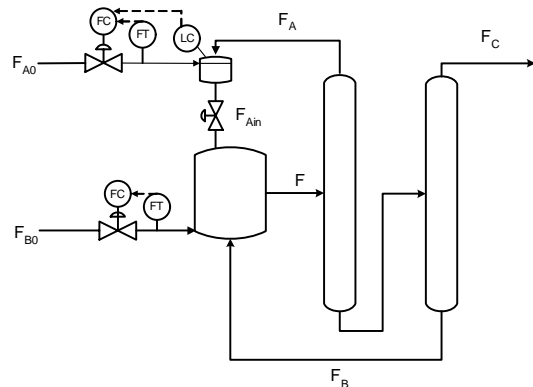


圖 3. 回饋控制結構示意圖

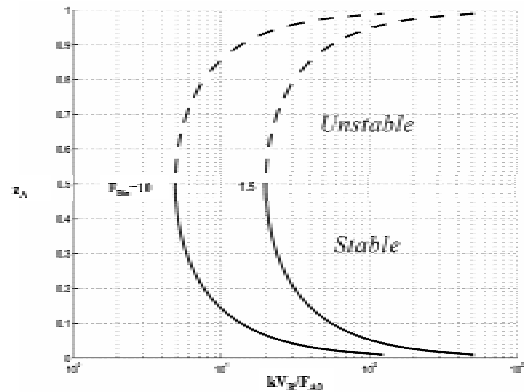


圖 4. CS2A 結構非線性分歧圖

作的，關於此部分在下一章節中會有更詳細的敘述，在此只證明回饋控制結構是能夠使用的。

4. 控制結構的選擇

控制結構的系統穩定度及產能可操作度將利用非線性分析來討論 CS2(A) 的控制結構，我們能夠得到以由反應器及蒸餾塔質量平衡方程式以及控制結構限制式，以上方程式共有 12 個變數、6 條方程式，所以還需 6 個已知才能求得所有變數值，這邊給定系統規格 ($x_{D1,A}$ 、 $x_{B2,B}$) 兩個已知，再給反應速率常數 (K) 以及進料 (F_{A0})，給不同的 z_A 及 F_{Bin} ，所以另外的個變數可透過 6 條方程式來求得，可得圖 4 的分歧圖 (bifurcation diagram)。

由圖可知，此系統具有多重穩態的特性，一個橫軸可得到兩個縱軸的點，為一個對稱型的曲線，對稱於 $z_A = 0.5$ 的位置，由此圖我們可以得到兩個重要的發現：

- 在圖形的上半部，即 z_A 大於 0.5 的部分經過特徵值的分析可知此區域是不穩定的，在此區域是無法操作的，只要有一點點的擾動，系統就會發散掉，而下半部為穩定的區域，在此區域是可操作的。我們將此結果轉到組成三角形圖 (圖 6) 上來看，我們能夠界定出來 CS2(A) 結構能夠正常操作的區域，圖上的灰影部分為 z_A 大於 0.5 的區域，CS2(A) 在此區是無法操作的。

- 我們試著用 z_A 對原本橫座標的倒數作圖，此圖的縱座標為 F_{A0}/kV_R ，橫座標為 z_A ，在固定的反應器體積 (V_R) 及反應速率常數 (k) 下，此圖讓我們看到了在不同的穩態點 z_A 下，系統的產能可操作度，舉例來說，如果系統的穩態設計在圖上的 A 點，當產能要增加時，下一個穩態點將沿著曲線往 $z_A = 0.5$ 操作邊界移動，由圖可知當操作在 A 點時，最大的產能變化為大約兩倍。

由以上的分析，我們可以對 CS2(A) 的結構作一個結論，CS2(A) 的結構在 z_A 大於 0.5 的區域是無法操作的，在小於 0.5 的區域是可操作的。非線性的分析方式提供了我們一個全面性的視野來看系統的穩定性及可操作度，但對於系統動態的描述卻無能為力，線性轉移函數的分

析方式正好可以彌補此缺點，在上一章的最後段中得到了回饋控制結構的新轉移函數。

將函數展開後可得到分母為兩階的轉移函數，所以能夠得到兩個極點，現在分別在 $z_c=0.2$ 、 $z_c=0.5$ 、 $z_c=0.8$ 的條件下改變由 20 到 1/20 做出其根軌跡圖(如圖 5)。

有一個極點在由 20 往 1/20 移動時會往正的方向移動，在 $\lambda=1.667$ 時會落在零點，繼續變小時便會得到一個正值的極點，由三角圖中我們可以發現，在 $z_c=0.2$ ， $\lambda=1.667$ 時，也就是代表 $z_A=0.5$ 的位置，所以我們能清楚的發現這個線性轉移函數的方法也能界定出穩定及不穩定的分界。同理 CS2(B)也可找出其操作範圍及動態根軌跡圖。

現在我們將此兩結構放在一起討論，我們先將 CS2(A) 及 CS2(B)重疊起來，在圖我們發現中間的正方形區域是兩個控制結構都能夠穩定操作的區域，在定性上的穩定度分析兩個控制結構都可以適用，在定量上由系統的動態快慢來決定，比較以上的根軌跡圖，選擇動態較快的控制結構，我們得到了圖的控制結構適用區域圖，圖上所示中線的上半部適用於以 F_{A0} 為產能調節變數的 CS2(A)結構，下半部適用於以 F_{B0} 為產能調節變數的 CS2(B)結構，此與 Cheng 與 Yu(2002,2003)提出的固定大股迴流的結論相同。

在以上一連串的非線性分析之後，我們瞭解此迴流系統在對於不同控制結構在全區域的穩定度及產能可操作度，現在我們將把焦點移到特定穩態設計下的動態結果，所以我們使用第二章所得到之線性模式轉移函數，這些轉移函數能夠幫助我們以微觀的方式瞭解這個系統。我們在圖中取四個點，此四個點分別落在圖中不同的四個區域中，我們將以此四個穩態設計點分別對 CS2(A) 及 CS2(B)作模擬，已驗證以上的結論。

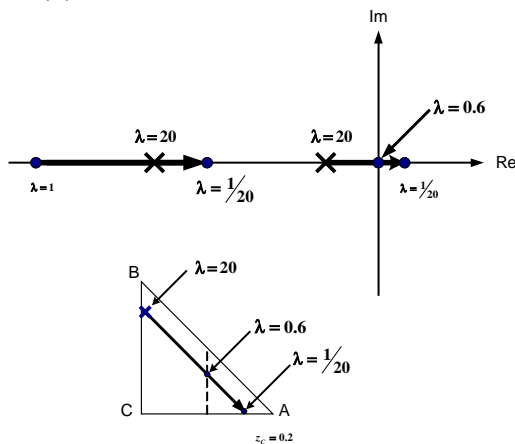


圖 5. $z_c=0.2$, CS2A 結構的根軌跡圖

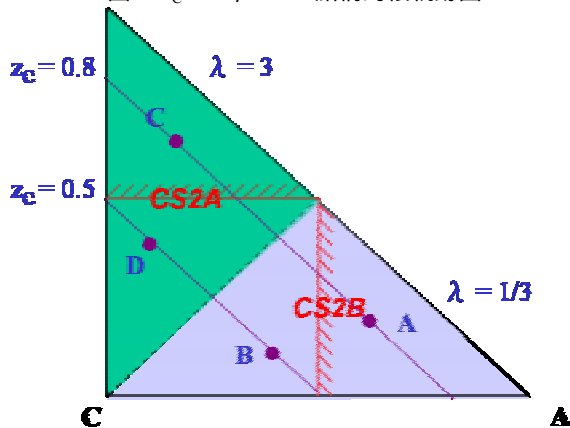


圖 6. CS2(A)、CS2(B)控制結構適用區域圖

5. 結論

在本論文中，我們利用簡單的正向回饋系統的探討，進

而建立三成分迴流系統的簡單線性模式，根據這些轉移函數的分析，我們可以很清楚的瞭解設計參數對系統動態的影響，也得到了兩個結論：第一、這個三成分迴流系統存在著內部流不穩定的特性，只有在兩股新鮮進料遵守化學計量平衡時才會穩定下來，所以我們在控制結構的選擇上需要選擇由內部狀態調整新鮮進料的回饋控制結構；第二、此迴流系統在任何穩態設計下都具備著產能完美控制的特性。

接下來根據產能調節變數的選擇建立了幾個控制結構(CS1、CS2(A)、CS2(B)、CS3)，其中的 CS1 前饋控制因為自由度不足的因素並不適用，另外的三個結構使用非線性分析來選擇，非線性分析方式提供了我們一個全面的視野來探討不同穩態設計下的系統穩定度及產能可操作度，也讓我們選擇了各控制結構的適用區域，之後利用線性分析分式針對某一特定穩態設計來探討其動態行為作為非線性分析的驗證。最後為求得完美產能控制，將線性分析的轉移函數導入控制結構參數中，始控制結構更加完善。

6. 參考文獻

- Bildea, C. S.; Dimian, A. C.; Iedema, P. D. Nonlinear Behavior of Reactor-Separator-Recycle Systems. *Comput. Chem. Eng.* 2000, 23, 209.
- Chen, Y. H.; Yu, C. C. Interaction between Thermodynamic Efficiency and Dynamic Controllability: Heat-Integrated Reactor. *Comput. Chem. Eng.* 2000, 23, 1077.
- Cheng, Y. C.; Wu, K. L.; Yu, C. C. Arrangement of Throughput/Inventory Control in Plantwide Control. *J. Chin. Inst. Chem. Eng.* 2002, 33, 283.
- Cheng, Y. C.; Yu, C. C. "Optimal Region for Design and Control of Ternary Systems with Two Recycle Systems", *AIChE J.* 2003, 49, 682
- Douglas, J. M. *Conceptual Design of Chemical Processes*; McGraw-Hill: New York, 1988.
- Gilliland, E. R.; Gould, L. A.; Boyle, T. J. Dynamic Effects of Material Recycle. Proc. Joint Automatic Control Conference; 1964, 140.
- Kapoor, N.; McAvoy, T. J.; Marlin, T. E. Effect of Recycle Structure on Distillation Tower Time Constants. *AIChE J.* 1986, 32, 411.
- Lakshminarayanan, S.; Takada, H. Empirical Modelling of Processes with Recycle: Some Insights via Case Studies. *Chem. Eng. Sci.* 2001, 56, 3327.
- Luyben, W. L. Dynamics and Control of Recycle Systems. 1. Simple Open-Loop and Closed-Loop Systems. *Ind. Eng. Chem. Res.* 1993a, 32, 466.
- Luyben, W. L. Dynamics and Control of Recycle Systems. 2. Comparison of Alternative Process Designs. *Ind. Eng. Chem. Res.* 1993b, 32, 476.
- Luyben, W. L. Trade-offs between Design and Control in Chemical Reactor Systems. *J. Process Control* 1993c, 3, 17.
- Papadourakis, A.; Doherty, M. F.; Douglas, J. M. Relative Gain Array for Units in Plants with Recycle. *Ind. Eng. Chem. Res.* 1987, 26, 1259.
- Sager, B.; Gadewar, Michael F.; Doherty, Michael F.; Malone, Michael F. "Reaction Invariants and Balances for Plant Complexes", *Ind. Eng. Chem. Res.* 2002, 41, 3771.
- Wu, K. L.; Yu, C. C. "Reactor/Separator Processes with Recycle-1. Candidate Control Structure for Operability", *Computers Chem. Engng.*, 1996, 20, 1291.