



Modèles de connaissance de la cristallisation de troisième jet en sucrerie de cannes Expérimentations et simulations

Teddy Jeannick Libelle

► To cite this version:

Teddy Jeannick Libelle. Modèles de connaissance de la cristallisation de troisième jet en sucrerie de cannes Expérimentations et simulations. Génie des procédés. Université de la Réunion, 2007. Français. NNT: . tel-00462334

HAL Id: tel-00462334

<https://theses.hal.science/tel-00462334>

Submitted on 9 Mar 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE DOCTORAT

présentée

À L'UNIVERSITÉ DE LA RÉUNION

U.F.R de Sciences et Technologies

Année 2007

Par

Teddy Jeannick LIBELLE

Pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR

Spécialité : Génie des Procédés

Modèles de connaissance de la cristallisation de troisième jet en sucrerie de cannes Expérimentations et simulations

Soutenue le 28 septembre 2007 devant la commission d'examen composée de :

Président et rapporteur :	M. A. COLLIGNAN	Professeur
Rapporteurs :	M^{me} M. DECLOUX	Professeur
	M. G. DEFAYE	Professeur
Directeur de thèse :	M. J-P. CHABRIAT	Professeur
Examineurs :	M^{me} B. GRONDIN-PEREZ	Maître de Conférences H.D.R
	M. M. BENNE	Maître de Conférences
Invité :	M. J-C. PONY	Directeur de l'usine sucrière de Bois Rouge

Remerciements

Cette thèse s'est déroulée au **Laboratoire d'Energétique, d'Electronique et Procédés (LE²P)** de la Faculté des Sciences de l'Université de La Réunion, dirigée par Monsieur le Professeur J-P. CHABRIAT. Je tiens à lui exprimer très chaleureusement ma reconnaissance pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail, pour m'avoir permis de suivre une formation scientifique de qualité et pour ses encouragements.

Je suis également reconnaissant envers tous ceux qui ont contribué à la réussite de ce travail, et plus particulièrement :

à Madame B. GRONDIN-PEREZ, Maître de Conférences H.D.R, et Monsieur M. BENNE, Maître de Conférences, pour leurs conseils et commentaires si précieux pour mes recherches.

à Madame le Professeur M. DECLoux et Monsieur le Professeur G. DEFAYE, rapporteurs, et à Monsieur le Professeur A. COLLIGNAN, examinateur, qui ont accepté d'évaluer ce travail et qui vont m'apporter des remarques et suggestions utiles et pertinentes.

à Monsieur J.D. LAN-SUN-LUK, Professeur, Monsieur R. LORION, Maître de Conférences, Monsieur F. ALICALAPA, Maître de Conférences, Monsieur L. CHANE-KUANG-SANG, Maître de Conférences, Monsieur A. CELESTE, Maître de Conférences, pour leurs aides et conseils.

à Monsieur P. JEANTY, ingénieur de recherche, et Monsieur Y. HOARAU, technicien de laboratoire, sans qui les réalisations techniques auraient été difficiles.

Je ne peux oublier les thésards, stagiaires et amis du laboratoire avec qui j'ai partagé une tranche de vie et auprès de qui j'ai appris et partagé.

Cette thèse est le fruit d'une collaboration entre l'usine sucrière de Bois Rouge et le LE²P de l'Université de La Réunion. Je tiens à exprimer mes remerciements à Monsieur J.C. PONY pour sa confiance, ses encouragements et l'intérêt constant qu'il porte aux travaux effectués au sein du LE²P.

Je tiens à remercier aussi Monsieur C. BERNARD et Monsieur J. JAURES pour leurs compétences et leurs gentillesse.

Je tiens à remercier Madame L. LUCILLY, responsable du laboratoire d'analyses à l'usine de Bois Rouge, pour ses compétences et sa gentillesse.

Je tiens à remercier aussi les cuiseurs, BABOUM, RAYMOND, J. MARC et TI COQ, pour leurs disponibilités et leurs gentillesse.

Je tiens à remercier toute l'équipe du C.E.R.F avec laquelle j'ai travaillé, L. CORCODEL, S. HOAREAU, J.L. ZOÏDE et J.P. DIJOUX, et qui m'a si gentiment accueilli au sein de leur laboratoire et me permettant ainsi de faire mes analyses.

A tous ceux non cités, de l'Université de La Réunion et de l'Usine de Bois Rouge, qui ont suivi de près ou de loin ce travail, j'aimerais leur dire un grand merci.

Cette thèse n'aurait pu être possible sans les financements de la Région Réunion et de l'Europe. Ici se trouve l'expression de mes remerciements les plus sincères.

Enfin, je ne pourrais pas oublier toute ma famille, et mes amis Patrick, Sandrine et la petite Noémie. Je les remercie pour leurs compréhensions et leurs encouragements, qui m'ont été d'un grand soutien.

Résumé

Cette étude concerne la modélisation d'un procédé de cristallisation de troisième jet, dite cristallisation C, en sucrerie de cannes. De par la complexité des phénomènes physico-chimiques mis en jeu lors d'une cristallisation industrielle, il est nécessaire de développer plusieurs approches de modélisation. Cette multiplicité de modèles permet de comparer ainsi les diverses approches proposées. Nous avons pour cela axé notre étude sur la modélisation des diverses cinétiques des phénomènes physiques qui interviennent lors d'une cristallisation C, par le biais de plusieurs modèles mathématiques. En effet, nous avons considéré trois types de cinétiques pouvant exister au sein de la solution : la cinétique de nucléation, la cinétique de croissance et la cinétique d'agglomération.

Nous avons aussi mis en place plusieurs stratégies de modélisation dites « hybrides », qui sont en fait les combinaisons de réseaux de neurones et de modèles de connaissances. Les phases d'apprentissage des réseaux de neurones sont basées sur des mesures, et la modélisation globale du procédé de cristallisation combine cette approche systémique aux différents modèles de connaissance choisis.

Ces diverses approches utilisées n'occultent pas les démarches classiques de modélisation en génie de la cristallisation. De ce fait, si nous souhaitons contrôler le procédé, plusieurs modèles mathématiques s'articulant autour de différents bilans de population sont proposés.

Ce travail est original, d'une part, car il décrit la cristallisation de troisième jet, et d'autre part, du fait que les divers modèles de cinétiques soient identifiés avec des données industrielles. En effet, il faut souligner qu'il n'existe quasiment pas de travaux relatifs à la cristallisation C, donc peu de références bibliographiques sur cette cristallisation de bas produit en milieu industriel sucrier.

Summary

This study deals with modeling the boiling third crystallization process, boiling C crystallization in cane sugar mill. Due to the complexity of physicochemical phenomena involved in the industrial boiling crystallization, it is necessary to develop several modelling approaches. By this way, the variability of these models leads to compare the various modeling suggested. We have focused our research on modeling various kinetics of physical phenomena contributing to the boiling C crystallization, through mathematical models. We have considered three kinetics that exist in solution: the nucleation rate, the growth rate and the agglomeration rate.

We are proposing several boiling modeling, called “hybrid modeling strategies”, which are the combinations of neural networks and the prior knowledge.

The neural networks’ training is based on some industrial data, and the boiling C crystallization process modelling associates this systemic model to the prior knowledge. The various approaches presented do not exclude the classical modelling in boiling crystallization. For this reason, if we want to supervise the boiling crystallization process, several mathematical models are suggested through the population balances.

This study is original, on one hand, by describing the boiling C crystallization, and on the other hand, by the identification of several modeling with industrial data.

It is necessary to underline that there is a lack of literature data regarding the boiling C crystallization, and thus there are only few bibliographical references on the boiling C crystallization in cane sugar mill.

Nomenclature

a	Coefficient dépendant de la qualité des non-sucres	
a	Activité thermodynamique du soluté	
a^*	Activité thermodynamique du soluté à l'équilibre	
A	Surface d'échange	$[m^2]$
A_T	Surface totale offerte par les cristaux	$[m^2]$
b	Coefficient dépendant de la qualité des non-sucres	
$\tilde{B}(v)$	Fonction de taux d'apparition des cristaux	$[m^{-3}.s^{-1}]$
$\tilde{B}_0$	Vitesse d'agglomération	$[(nb).m^{-3}.s^{-1}]$
Bx_f	brix du produit d'alimentation	$[\%]$
Bx_{LM}	Taux de matière sèche contenu dans la liqueur mère	
$Bx_{LM}^{\%}$	Brix de la liqueur mère	$[\%]$
Bx_{MC}	Taux de matière sèche contenu dans la masse cuite	
$Bx_{MC}^{\%}$	Brix de la masse cuite	$[\%]$
$Bx_{y_{max}^T}$	Brix pour une température et pureté données	$[\%]$
C	Masse des cristaux	$[kg]$
C	Concentration	$[mol.L^{-1}]$ ou $[kg.m^{-3}]$
C^*	concentration à saturation	$[kg.m^{-3}]$
c	Coefficient dépendant de la qualité des non-sucres	
c, C	Concentration du soluté	$[mol.L^{-1}]$ ou $[kg.m^{-3}]$
c^*	Concentration du soluté à l'équilibre	$[mol.L^{-1}]$ ou $[kg.m^{-3}]$
CC	Taux de cristaux	
$CC^{\%}$	Teneur en cristaux ou pourcentage de cristaux	$[\%]$
Cp_c	Capacité calorifique des cristaux dans la solution	$[J.(kg.^{\circ}C)^{-1}]$
Cp_{lm}	Capacité calorifique de la liqueur mère	$[J.(kg.^{\circ}C)^{-1}]$
Cp_{mc}	Capacité calorifique de la masse cuite	$[J.(kg.^{\circ}C)^{-1}]$
CS	Coefficient de saturation	
$\tilde{D}(v)$	Fonction de taux de disparition des cristaux	
E	Masse eau	$[kg]$
E_g	Energie d'activation	$[J. mol^{-1}]$
e	Charge électrique élémentaire	$[C]$
E	Champ électrique	$[V.m^{-1}]$
F	Facteur de forme	
F_f	Débit du produit d'alimentation	$[m^3.s^{-1}]$
$F_{cw \leftarrow hs}$ ou F_{hs}	Débit d'eau condensée	$[m^3.s^{-1}]$
F_w	Débit d'alimentation en eau	$[m^3.s^{-1}]$
$f(\alpha)$	Facteur de germination primaire hétérogène	$0 < f(\alpha) < 1$
G	Vitesse de croissance linéaire globale	$[m.s^{-1}]$
$\dot{G}$	Génération d'entités	
g	Ordre cinétique global	

G_v	Vitesse de croissance en volume	$[m^3.s^{-1}]$
h_c	Enthalpie spécifique des cristaux	$[J.kg^{-1}]$
h_f	Enthalpie spécifique du produit d'alimentation	$[J.kg^{-1}]$
h_{lm}	Enthalpie spécifique de la liqueur mère	$[J.kg^{-1}]$
h_{mc}	Enthalpie spécifique de la masse cuite	$[J.kg^{-1}]$
h_{vap}	Enthalpie spécifique de la vapeur de chauffe	$[J.kg^{-1}]$
h_w	Enthalpie spécifique de l'eau d'alimentation	$[J.kg^{-1}]$
I	Concentration massique en impuretés	$[kg.kg^{-1}]$
I_{agit}	Intensité du courant électrique	$[A]$
J	Vitesse de nucléation	$[nb.m^{-3}.s^{-1}]$
k	Constante de Boltzmann	$[1,38 \cdot 10^{-23} J.K^{-1}]$
K	Coefficient cinétique	$[m^{-3}.s^{-1}]$
k_d	Coefficient de transfert	$[m.s^{-1}]$
k_G	Constante cinétique globale (lié à G)	$[kg^{-g}.m^{3g+1}.s^{-1}]$
k_G	Constante cinétique globale (lié à R_G)	$[kg^{1-g}.m^{3g-2}.s^{-1}]$
k_r	Constante cinétique d'intégration	$[kg^{-r+1}.m^{3r-2}.s^{-1}]$
k_{vap}	Paramètre de la vitesse d'évaporation de l'eau	$[kg.s^{-1}.(^{\circ}C)^{-1}]$
l_{lv}^w	Chaleur latente spécifique de condensation de l'eau	$[J.kg^{-1}]$
L	Dimension caractéristique du cristal	$[m]$
L	Taille des cristaux	$[m]$
$\bar{L}$	Taille moyenne des cristaux	$[m]$
L^*	Taille des germes	$[m]$
m_c	Masse des cristaux	$[kg]$
m_i	Masse des non-sucres (impuretés)	$[kg]$
m_{mc}	Masse de la masse cuite	$[kg]$
m_s	Masse de saccharose en solution	$[kg]$
m_w	Masse de l'eau	$[kg]$
MS	Teneur en matières sèches	$[%]$
M_T	Masse totale de la solution	$[kg]$
n	Nombre de molécules contenues dans le germe	
n	Fonction de distribution en nombre	$[(nb).m^{-3}.m^{-1}]$
n, C	Constantes	
N	Vitesse d'agitation	$[s^{-1}]$
NS	Masse des non-sucres	$[kg]$
N_T	Nombre total d'entités	
Pte_f	Pureté du produit d'alimentation	$[%]$
Pte_{LM}	Taux de saccharose contenu dans la liqueur mère	
$Pte_{LM}^{\%}$	Pureté de la liqueur mère	$[%]$
Pte_{MC}	Taux de saccharose contenu dans la masse cuite	
$Pte_{MC}^{\%}$	Pureté de la masse cuite	$[%]$
Q	Puissance de chauffe apportée par la vapeur	$[J.s^{-1}]$

q_{cris}	Taux de production locale de cristaux	[kg.s ⁻¹]
q_{vap}	vitesse d'évaporation de l'eau	[kg.s ⁻¹]
r	Rayon d'un ion	[m]
r	Rayon du germe	[m]
r_A	Vitesse d'agglomération	[(nb).m ⁻³ .s ⁻¹]
r_B	Vitesse de brisure	[(nb).m ⁻³ .m ⁻¹ .s ⁻¹]
r_N	Vitesse de nucléation	[(nb).m ⁻³ .s ⁻¹]
R	Constante molaire des gaz parfaits	[J.mol ⁻¹ .K ⁻¹]
R_G	Vitesse globale de croissance	[kg.m ⁻² .s ⁻¹]
s	Sursaturation thermodynamique	
S	Sursaturation	
S	Masse de saccharose en solution	[kg]
S_p	Aire réelle du cristal	[m ²]
t	Temps	[s]
T	Température	[°C] ou [°K]
T_{hs}	Température de la vapeur de chauffe	[°C]
T_{mc}	Température de la masse cuite	[°C]
$T_{w(vac)}$	Valeur de la température d'ébullition de l'eau à la pression réduite régnant dans la calandre	[°C]
U	Coefficient d'échange global	[W.m ⁻² .(°C) ⁻¹]
V	Volume d'une molécule dans le germe	[m ³]
V	Vitesse de déplacement d'un ion dans une solution	[m.s ⁻¹]
V_i	Vitesse limite atteint par un ion i dans une solution	[m.s ⁻¹]
V_p	Volume réel du cristal	[m ³]
V_{mc}	Volume de la masse cuite	[m ³]
W	Puissance d'agitation (puissance mécanique)	[J.s ⁻¹]
y	Conductivité électrique d'une solution	[mS.cm ⁻¹]
z_i	Valence d'un ion i	

Caractères grecs

α	Angle de contact du germe avec le substrat	[°]
α_Q	Paramètre de la puissance de chauffe	
α_{vap}	Paramètre de la vitesse d'évaporation de l'eau	
β	Sursaturation de la masse cuite	
β'	Vitesse de nucléation	[(nb).m ⁻³ .s ⁻¹]
γ	Energie libre de surface (ou interfaciale)	[J.mol ⁻¹ .m ⁻²]
γ	Coefficient d'activité du soluté	
γ^*	Coefficient d'activité du soluté à l'équilibre	
Γ	Hypersurface	
δ	Distribution de Dirac	
ΔC	Différence de concentration	[mol.L ⁻¹]

ΔG	Energie libre d'activation de germination	[J.mol ⁻¹]
ΔT_{eb}	Valeur de l'élévation du point d'ébullition	[°C]
$\Delta\mu$	Force motrice thermodynamique de la cristallisation	[J.mol ⁻¹]
ε	Fraction en solide	
ε	Energie transmise par l'agitateur	[W.kg ⁻¹]
η	Viscosité dynamique d'une solution	[Pa.s]
$\lambda_{w(vac)}$	Chaleur latente d'évaporation de l'eau	[J.kg ⁻¹]
μ_0	Potentiel chimique standard	[J.mol ⁻¹]
μ_0	Moment d'ordre 0, représente le nombre de cristaux dans la solution	
μ_1	Moment d'ordre 1, représente la taille des cristaux	[m]
μ_2	Moment d'ordre 2, représente la surface des cristaux	[m ²]
μ_3	Moment d'ordre 3, représente le volume des cristaux	[m ³]
ξ_M	Grandeurs quantifiant les propriétés M	
ρ_c	Masse de cristaux par unité de volume	[kg.m ⁻³]
ρ_f	Densité du produit d'alimentation	[kg.m ⁻³]
ρ_{hs}	Densité de l'eau condensée	[kg.m ⁻³]
ρ_{vap}	Densité de l'eau condensée	[kg.m ⁻³]
ρ_w	densité de l'eau	[kg.m ⁻³]
σ	Sursaturation absolue ou relative	
Σ	Hypervolume	
Φ_i	Flux massique d'intégration	[kg.m ⁻² .s ⁻¹]
Φ_s	Facteur de forme surfacique du cristal	
Φ_t	Flux massique de transfert	[kg.m ⁻² .s ⁻¹]
Φ_v	Facteur de forme volumique du cristal	

Indices, exposants

<i>cris</i> , c	Cristaux dans la masse cuite
<i>cw</i>	eau condensée (de <i>hs</i>)
<i>f</i>	Solution d'alimentation (liqueur-standard, sirop, EA, EB)
<i>hs</i>	vapeur de chauffe
<i>hyb</i>	Relatif à la réponse au modèle hybride
<i>i, I</i>	Impuretés dans la masse cuite
<i>l</i>	phase liquide
<i>lm</i> , <i>LM</i>	Liqueur-mère
<i>mc</i> , <i>MC</i>	masse cuite (ou magma)
<i>Mod</i> , <i>Mcon</i>	Relatif à la réponse au modèle de connaissance
<i>NN</i>	Relatif à la réponse au modèle neuronal
<i>Obs</i>	Relatif aux données expérimentales
<i>s</i>	Saccharose dissous dans la masse cuite

<i>vap</i>	Phase vapeur
<i>w</i>	Eau dans la masse cuite
*	Grandeur à l'équilibre
~	Grandeur basée sur le volume total
%	Grandeur en pourcentage

Abréviations

<i>BPE</i>	Elévation du point d'ébullition	[°C]
BR	Usine de Bois Rouge	
C.A.P	Coupleurs d'Automates Programmables	
C540	Appareil à cuire discontinu C540	
D.D.E	Dynamic Data Exchange	
EA	Egout A	
EB	Egout B	
EDO	Equations Différentielles Ordinaires	
GRD	Growth Rate Dispersion	
I.C.U.M.S.A	International Commission for Uniform Methods for Sugar Analysis	
I-MEDIA	Interface under Multitask Environment for Digital Industrial Applications	
LE ² P	Laboratoire d'Energétique, d'Electronique et procédés	
LS	Liqueur Standard	
S.C.S	Système de Conduite et de Supervision	

Lexique des termes industriels sucriers

Appareil à cuire	Cristalliseur
Brix	Pourcentage massique de matières sèches
Brix liqueur-mère	Pourcentage massique de matières sèches dans la solution
Brix massecuite	Pourcentage massique de matières sèches dans la massecuite
Cuite	Nom donné au procédé de la cristallisation en sucrerie de cannes
Ecart technique	Différence entre la quantité de sucre estimée à partir d'un échantillon de canne à sucre et la quantité de sucre cristallisé effectivement retiré de cette canne
Egout	Liqueur-mère séparée de la massecuite au turbinage
Faux grains ou fines	Germes créés par nucléation
Grainage	Ensemencement de la solution
Lavée	Ajout d'eau dans la solution
Liqueur-mère	Sirop entourant les cristaux
Magma	Sucre mélangé avec une liqueur-mère ou du sirop (réempatage)
Massecuite	Suspension de cristaux dans la liqueur-mère
Mélasse	Egout qui ne peut plus être retraité. Elle est destinée à la distillerie
Montée	A partir d'un pied de cuite, alimentation en sirop ou en égout (phase de croissance des cristaux)
Pied de cuite	Volume de départ dans l'appareil à cuire
Pureté	Pourcentage massique de saccharose dans les matières sèches
Ralliage	Phase de stabilisation, permet le développement des germes
Refonte	Consiste à refondre du sucre qui n'est pas commercialisable (retour dans le circuit de fabrication)
Réempatage	Opération qui conduit à l'obtention d'un magma
Sirop	Jus de canne concentré

Teneur en cristaux	Pourcentage de cristaux dans le massecuite
Turbinage	Opération de centrifugation

SOMMAIRE GENERAL

Sommaire général

Sommaire général

INTRODUCTION	p. 5
 CHAPITRE 1 : Les mécanismes de la cristallisation en solution et leurs représentations cinétiques en milieu impur	 p. 11
1.1 Introduction	p. 13
1.2 Etat de l'art	p. 14
1.3 Conclusion	p. 41
 CHAPITRE 2 : Cristallisation du sucre de canne en milieu industriel	 p. 43
2.1 Introduction	p. 45
2.2 Procédé de fabrication	p. 45
2.3 Atelier de cristallisation : Principes généraux	p. 47
2.4 Le procédé de cristallisation C de l'usine de Bois Rouge	P. 51
2.4 Conclusion	p. 82
 CHAPITRE 3 : Les différents modèles de la cuite discontinue C540	 p. 85
3.1 Introduction	p. 87
3.2 Modélisation d'une cristallisation discontinue en milieu industriel	p. 88
3.3 Modèle de connaissance	p. 89
3.4 Evaluation des performances des modèles proposés	p. 122
3.5 Conclusion	p. 124
 CHAPITRE 4 : Modélisation du taux de production locale de cristaux	 p. 125
4.1 Introduction	p. 128
4.2 Nécessité des estimations paramétriques industrielles	p. 128
4.3 Difficultés de modélisation des cinétiques	p. 131
4.4 Démarche suivie pour la mise en place des modèles	p. 133
4.5 Modèle de connaissance paramétrique : modèle M1	p. 150
4.6 Représentation du taux de cristaux q_{cris} par un modèle aux différences finies temporelles : modèle M2	p. 159
4.7 Modélisation du q_{cris} à l'aide de modèles hybrides : modèle M3	p. 162
4.8 Synthèse des résultats de modélisation	p. 181

Sommaire général

4.9 Conclusion	p. 183
CHAPITRE 5 : Identifications des modèles et simulations : résultats expérimentaux	p. 185
5.1 Introduction	p. 187
5.2 Identification des modèles	p. 187
5.3 Identification et simulation du modèle M1	p. 190
5.4 Identification et simulation du modèle M2	p. 202
5.5 Identification et simulation du modèle M3	p. 208
5.6 Synthèse des résultats obtenus lors des différentes modélisations	p. 220
5.7 Conclusion	p. 222
CONCLUSION ET PERSPECTIVES	p. 223
BIBLIOGRAPHIE	p. 227
ANNEXES	p. 243
ANNEXE 1	p. 245
ANNEXE 2	p. 247
ANNEXE 3	p. 249
ANNEXE 4	p. 251
ANNEXE 5	p. 253
ANNEXE 6	p. 257
ANNEXE 7	p. 261

INTRODUCTION

La Réunion, territoire de tradition sucrière, compte deux usines sucrières encore en activité : la sucrerie de Bois Rouge à Saint-André, et la sucrerie du Gol à Saint-Louis. L'agriculture réunionnaise repose encore essentiellement sur la canne à sucre. Cette culture couvre environ 25 600 ha, soit 50 % des terres cultivables. La production annuelle s'élève à environ 200 000 tonnes de sucre pour un tonnage de canne à sucre broyée entre les deux usines d'environ 2 000 000 tonnes.

L'existence de cette activité industrielle à La Réunion dépend :

- du maintien de l'augmentation de la production de sucre (dans la limite du quota réservé de 300 000 tonnes de sucre),
- d'un contexte économique favorable dans le cadre de l'OCM sucre
- de l'amélioration des performances des procédés de transformation (optimisation des procédés, utilisation d'outils performants aidant à la production industrielle).

La Réunion, « laboratoire usine » de procédés sucriers innovants : voilà un défi que pourrait relever à nouveau notre région. C'est dans cette voie que nous inscrivons ce travail de thèse : avec pour objectif le développement et la mise en place d'une conduite optimale du procédé de cristallisation, nous proposons de réaliser la modélisation du Jet C du procédé de cristallisation.

Ce travail **est une contribution à la recherche technologique développée en partenariat avec la sucrerie de Bois Rouge par le LE²P¹**.

Il est original de deux points de vue : tout d'abord par l'expérimentation industrielle associée, intégrant de multiples capteurs de Brix (réfractomètres, micro-ondes, conductivimètre) ; ensuite par le choix du procédé étudié et modélisé (Jet C de la cristallisation).

Ainsi, notre objectif est la recherche de solutions pour améliorer la conduite de la cristallisation C à l'usine de Bois Rouge afin de :

- réduire l'écart technique,
- réduire les dépenses énergétiques,
- améliorer la qualité du produit.

Pour améliorer la conduite du procédé de cristallisation C, l'équipe LE²P étudie la mise en place d'un algorithme de commande avancé.

La principale difficulté réside dans le fait que nous travaillons sur un procédé industriel réel. Ainsi le test préalable hors-ligne de l'algorithme de commande nécessite l'écriture d'un modèle de connaissance utilisé comme simulateur du procédé. De plus, nous travaillons sur une cristallisation de troisième jet (milieu impur), pour laquelle les modèles classiques sont peu précis.

¹ Laboratoire d'Energétique, d'Electronique et Procédés

Introduction

Ainsi, ce travail de recherche s'inscrit dans la démarche scientifique de l'équipe LE²P et dont l'objectif est la mise en place d'un algorithme de commande prédictive pour conduire la cristallisation C.

Le développement d'un tel algorithme sur le site industriel a demandé la construction préalable de quelques éléments comme :

- un serveur de données pouvant se connecter sur le bus industriel (I-MEDIA)
- un modèle prédictif

Si ces éléments ont été validés au cours de travaux antérieurs, le test hors ligne de l'algorithme avant sa mise en place sur le site industriel nécessite l'identification d'un modèle de connaissance pouvant simuler le comportement dynamique du procédé.

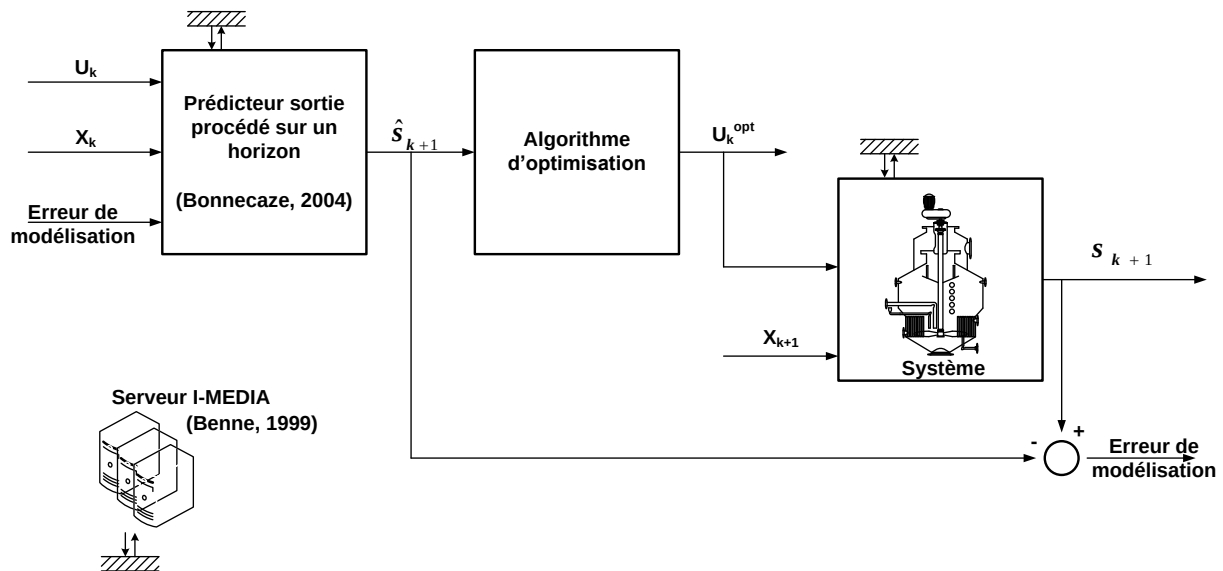


Schéma fonctionnel de la conduite du procédé en ligne.

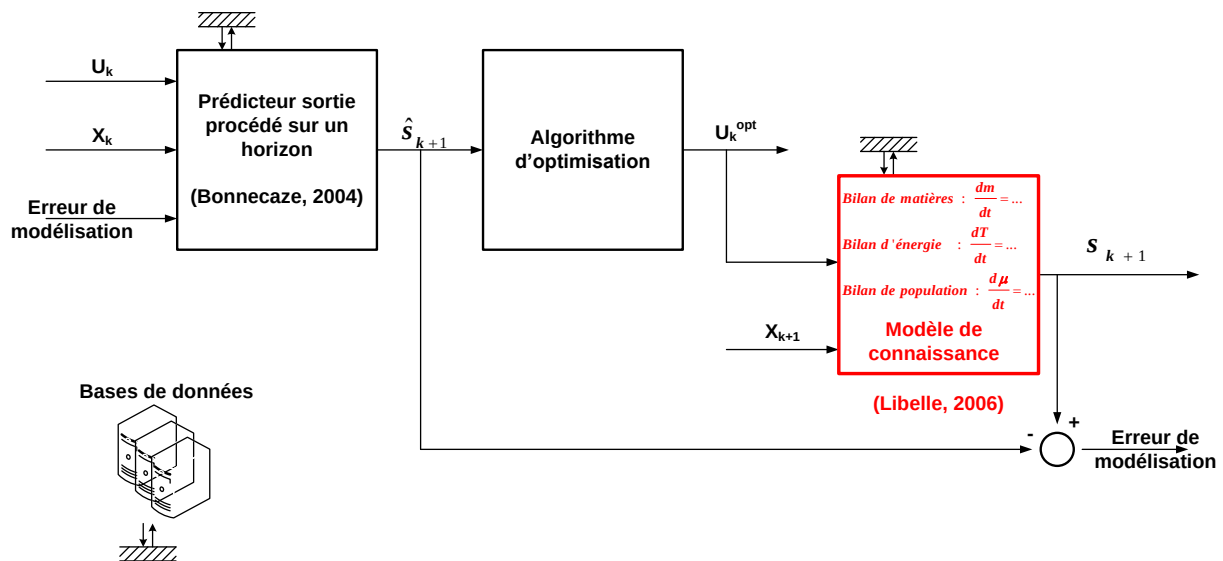


Schéma fonctionnel de la conduite du procédé hors ligne.

Le modèle de connaissance développé est un modèle d'Etat à paramètres localisés construit sur la base des équations de bilan de population, de bilans de matière et d'énergie.

Plusieurs fonctionnelles (paramètres cinétiques et énergétiques) caractérisent le modèle. Lors de l'étape d'identification du modèle, la structure de base étant identique, nous avons estimé plusieurs fonctionnelles cinétiques et énergétiques.

Ainsi, plusieurs modèles, dont la structure fondamentale est identique, ont été identifiés. Nous avons alors procédé à une comparaison intermodèle.

Ce travail s'articule autour de cinq chapitres :

Le **chapitre 1** présente les notions fondamentales de la cristallisation en solution. Après quelques rappels sur la notion de sursaturation et les informations générales sur les cristaux de saccharose, les propriétés physico-chimiques des solutions sucrées sont abordées. Les cinétiques de cristallisation y sont décrites : cinétique de nucléation, cinétique de croissance cristalline et cinétique d'agglomération. La cristallisation est un processus de transfert de matière entre l'état liquide et l'état solide. Elle s'effectue en plusieurs étapes successives. La cristallisation débute par l'apparition de germes au sein de la solution de façon spontanée ou non. Ces germes grossissent durant la phase de croissance. Les cristaux peuvent subir d'autres phénomènes tels que l'agglomération, l'attrition ou le mûrissement d'Ostwald.

Le **chapitre 2** fait une description de l'atelier de cristallisation en sucrerie de cannes. De ce fait, il décrit l'environnement expérimental de notre étude. Il décrit l'instrumentation de l'appareil à cuite C540 sur lequel, ont été développées les différentes modélisations de la cristallisation C. Ceci a été possible grâce aux bases de données de mesures expérimentales. La dernière partie de ce chapitre fait une description du dispositif d'acquisition de données en ligne.

Le **chapitre 3** propose une description de la cristallisation discontinue C à la sucrerie de Bois Rouge. Cette description fait intervenir l'ensemble des bilans (de matières, d'énergie et de population) et des phénomènes associés à la cristallisation C. Le bilan de population est l'élément clé de la modélisation. Des variantes de ce bilan sont proposées afin de prendre en compte de manière progressive les divers processus qui interviennent au cours d'une cristallisation (nucléation, croissance cristalline et agglomération). Nous modélisons aussi le taux de production locale des cristaux, en utilisant un modèle aux différences finies temporelles.

Le **chapitre 4** présente les trois voies que nous avons explorées pour l'identification des paramètres cinétiques. La détermination de ces paramètres est utile en amont de toute

simulation liée à des modélisations de cuites. La première approche est classique et utilise les techniques de programmation non linéaire pour identifier les paramètres des modèles cinétiques les plus couramment utilisés. La deuxième approche propose un calcul du taux de variation de la masse des cristaux par une méthode aux différences finies temporelles. La troisième approche propose une stratégie de modélisation hybride, qui combine un réseau de neurones à un bilan de matières pour identifier les différentes cinétiques.

Le **chapitre 5** présente l'étude que nous avons menée sur l'identification des paramètres énergétiques selon les trois types d'approches. Comme pour le **chapitre 4**, nous présentons les divers résultats obtenus. Ainsi, pour chaque approche nous aurons des valeurs de paramètres énergétiques différentes, mais proches d'une valeur moyenne. Nous comparons les résultats de la modélisation hybride aux résultats de la modélisation classique, en utilisant une valeur moyenne pour les paramètres énergétiques. Nous avons comparé ces deux types de modélisations car elles nécessitent l'utilisation du bilan de population.

*« C'est avec la logique que nous prouvons
et avec l'intuition que nous trouvons ».*

H. POINCARÉ

CHAPITRE 1

*Les mécanismes de la cristallisation
en solution et leurs représentations
cinétiques en milieu impur.*

1	LES MECANISMES DE LA CRISTALLISATION EN SOLUTION ET LEURS REPRESENTATIONS CINETIQUES EN MILIEU IMPUR.....	13
1.1	Introduction.....	13
1.2	État de l'art.....	14
1.2.1	La sursaturation, base de la force motrice de la cristallisation.	14
1.2.1.1	Solubilité et sursaturation.	14
1.2.1.2	Sursaturation.	21
1.2.1.3	Facteurs de forme.	23
1.2.2	Nucléations.....	24
1.2.2.1	Zones métastables.....	25
1.2.2.2	Approche théorique.	26
1.2.2.2.1	Barrière d'énergie.	26
1.2.2.2.2	Cinétique de nucléation.....	31
1.2.2.3	Approche expérimentale.	31
1.2.2.3.1	Modèle simplifié de nucléation primaire.	32
1.2.2.3.2	Modèle simplifié de nucléation secondaire.....	32
1.2.3	Croissance cristalline.....	33
1.2.3.1	Équation générale.	36
1.2.3.2	Paramètres cinétiques de croissance cristalline dans la littérature.....	37
1.2.4	Evolution des systèmes.	38
1.2.4.1	Agglomération.	38
1.2.4.2	Brisure.	39
1.2.4.3	Inclusion.	40
1.2.4.4	Mûrissement d'Ostwald.....	40
1.3	Conclusion.....	41

1 Les mécanismes de la cristallisation en solution et leurs représentations cinétiques en milieu impur.

1.1 Introduction.

L'objectif de ce chapitre est de décrire les mécanismes physiques qui interviennent lors d'une cristallisation et d'exposer les principales lois proposées pour représenter les cinétiques de ces mécanismes.

Dans cette analyse bibliographique, on notera que la quasi-totalité des publications citées utilise l'approche globale macroscopique des phénomènes. Nous avons choisi cette approche pour notre étude. Ce choix s'explique non par un désintérêt pour l'aspect microscopique de la cristallisation, il est dicté par une démarche industrielle « du macroscopique au microscopique » graduant la complexité de l'approche selon les objectifs à atteindre.

L'approche microscopique, qui sépare rigoureusement les différents processus les uns des autres, mène en effet à un grand nombre d'équations cinétiques complexes dont l'intégration dans un modèle complet est difficilement réalisable.

Elle introduit de plus un nombre important de paramètres cinétiques indéterminés, dont l'estimation est difficilement réalisable surtout en milieu impur.

Notre étude est limitée à la cristallisation en solution par évaporation. Toutefois, notre démarche est généralisable aux autres types de cristallisation en solution **[Franck, 1985]**, **[Klein et al, 1991]**.

La cristallisation est une opération unitaire de génie chimique. C'est un changement d'état qui conduit, une phase gazeuse ou liquide, à une phase solide appelée cristal, de structure régulière et organisée.

On ne distingue généralement que trois types de cristallisation selon que celles-ci aient lieu en phase gazeuse, en bain fondu et en solution. Les mécanismes fondamentaux de ces trois cristallisations sont cependant similaires, à savoir deux étapes essentielles dans l'apparition du solide. La première étape, la nucléation est celle, au cours de laquelle les cristaux vont apparaître et la seconde étape est celle de leur croissance, les cristaux vont alors se développer dans la solution.

Par rapport aux autres types de cristallisation, la cristallisation en solution présente quelques particularités. En effet, la nucléation secondaire, quasi inconnue en phase vapeur et en bain fondu, peut avoir un rôle très important dans les cristallisoirs industriels, tant au niveau des phénomènes d'hydrodynamique dans la solution. Par ailleurs, la notion de bilan de population

et l'analyse de la distribution de taille des cristaux ont permis d'améliorer ces dernières années la conduite et la maîtrise des cristallisoirs, [Klein et al, 1991].

Les cristaux produits à l'échelle industrielle doivent répondre à des spécifications bien déterminées comme la pureté, la taille, la solidité, le faciès, etc. Il est donc nécessaire d'avoir de bonnes bases théoriques sur les processus de nucléation et de croissance pour améliorer le produit final. Les paramètres de base sont la concentration et la sursaturation.

La cristallisation est avant tout un équilibre liquide solide. Nous commencerons donc par des rappels concernant l'état thermodynamique des solutions.

1.2 État de l'art.

1.2.1 La sursaturation, base de la force motrice de la cristallisation.

1.2.1.1 Solubilité et sursaturation.

Une solution est un mélange homogène constitué d'une seule phase, de deux ou plusieurs substances. Ces constituants sont usuellement appelés solvants et solutés. Le composant généralement en excès est appelé solvant. Une solution en équilibre avec la phase solide d'un soluté est dite saturée en phase solide. Ainsi, la concentration du soluté dans la solution au point de saturation est la solubilité du soluté.

Une solution ayant une concentration en soluté inférieure à sa solubilité (dans la solution) pourra dissoudre ce soluté à l'état solide. Une solution de concentration en soluté supérieure à sa solubilité n'est pas à l'équilibre et aura tendance à évacuer l'excédent de soluté sous forme solide. Nous pouvons ainsi constater que dans le cas d'une cinétique infiniment lente d'évacuation du soluté en excès, l'expérimentateur aura l'impression d'observer une solution à l'équilibre, une telle solution est dite métastable. L'ajout d'un cristal dans la solution métastable déclenche l'évacuation du soluté qui s'y trouve en excès. Cet apport de germe cristallin aura pour conséquence de faire tendre la concentration de ce soluté dans la solution métastable vers sa solubilité. La solubilité est souvent une fonction croissante de la température, et c'est le cas pour le système eau - saccharose [Mathlouthi et Reiser, 1995], (*figure 1.1*).



Figure 1.1 : solubilité du système eau – saccharose.

Cette courbe de solubilité du mélange de saccharose dans l'eau délimite la zone sous-saturée et la zone sursaturée.

La formation de cristaux de soluté dans la solution sursaturée résulte d'un retour nécessaire à l'état d'équilibre. Cet état d'équilibre se situe à la frontière des deux zones sur la courbe de solubilité. La cristallisation d'un soluté requiert l'état de sursaturation de la solution, **[Lieto, 1998]**. De ce fait, l'estimation de la solubilité du soluté est une étape nécessaire mais non suffisante à la réalisation d'une cristallisation contrôlée.

Dans notre cas, c'est-à-dire dans une solution sucrée impure, l'estimation de la solubilité du saccharose est complexe. Elle dépend de plusieurs facteurs :

- la nature du solvant (eau),
- la nature du soluté (saccharose dissous),
- la composition en impuretés de la solution,
- la température

[Bubnik et Kadlec, 1995], [Vaccari et Mantovani, 1995], [Mathlouthi et Reiser, 1995].

En milieu industriel, la cristallisation est réalisée suivant le procédé des 3 massecuites : le sirop est épuisé en 3 étapes appelées A, B et C¹, au cours desquelles la pureté des produits sucrés diminue.

¹ Définition à la **section 2.3.2**

En cristallisation C, la présence d'impuretés en concentration élevée rend l'estimation de la solubilité du saccharose dissous difficile.

Dans une solution pure, il est facile de déterminer diverses relations empiriques permettant de tracer la courbe de saturation du soluté en fonction de la température.

Pour représenter la solubilité du saccharose dans l'eau, Vavrinecz, [Vavrinecz, 1962], a procédé à une comparaison critique de plusieurs équations fonctionnelles (25 auteurs différents) et a montré que l'équation en série de puissances développée au quatrième degré donnait les meilleurs résultats :

$$MS = 64,447 + 0,08222 \times T + 1,6169 \times 10^{-3} \times T^2 - 1,558 \times 10^{-6} \times T^3 - 4,63 \times 10^{-8} \times T^4 \quad (1.1)$$

où T représente la température (en °C), et MS la teneur en matières sèches (pour les solutions aqueuses pures de saccharose, MS est égal à la teneur en saccharose S (%)).

L'erreur moyenne pour les résultats issus de cette équation est seulement de 0,05%. Cette équation est valide pour des températures comprises entre -13 et +100°C, elle a été adoptée lors de la quinzième session de l'ICUMSA² en 1974, [Bubnik et Kadlec, 1995], *figure 1.2*.

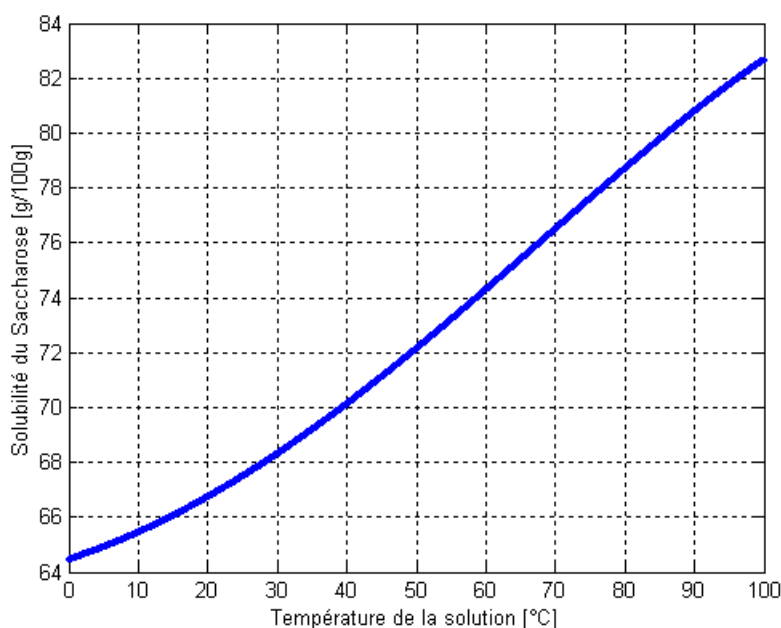


Figure 1.2 : solubilité du saccharose dans l'eau.

Grâce à la relation précédente, nous pouvons constater que dans le cas d'un mélange de saccharose et d'eau, la seule mesure de la température de la solution permet une estimation de la solubilité du saccharose dans le mélange.

Lorsque dans une solution, il y a plusieurs constituants (en plus du soluté et du solvant), l'estimation de la solubilité du soluté, en l'occurrence ici le saccharose, devient quasi impossible. La cristallisation du troisième jet qui fait l'objet de notre étude, est réalisée à

² ICUMSA : International Commission for Uniform Methods of Sugar Analysis.

partir de produits dits « bas produits », dont la pureté³ en saccharose dissous est « faible », **figures 2.6 et 2.7**. Cela rend la détermination de la solubilité du saccharose dans la solution difficile, [Bubnik et Kadlec, 1995]. Malgré les multiples travaux sur ce sujet, aucune des recherches ne permet d'établir une relation empirique « universelle » de la solubilité du saccharose dans les solutions techniques industrielles. Ceci est dû à la nature (canne à sucre ou betterave) et à la composition (impuretés) de la matière première, à la diversité des procédés de fabrication, etc. [Van der Poel et al, 1998]. Par contre, des études faites sur des solutions techniques industrielles ont pu permettre de préciser les différentes influences des impuretés sur la solubilité du saccharose dans la solution, [Mathlouthi et Reiser, 1995], [Van der Poel et al, 1998]. Ces travaux montrent qu'il n'est pas impossible de déterminer la nature et les propriétés des impuretés des solutions techniques industrielles, et d'en déduire la solubilité du saccharose dans ces solutions. Cependant, ces approches, coûteuses en temps et en moyens d'analyse, sont peu adaptées au contexte industriel.

Pour éviter ces méthodes, on utilise un coefficient de saturation CS de la solution qui permet de déterminer l'influence des impuretés sur la solubilité du saccharose. CS caractérise donc l'effet global des impuretés en présence dans la solution sur la solubilité du saccharose.

Le coefficient de saturation de la solution est défini par :

$$CS = \frac{\left(\frac{S}{E}\right)_{sat, impure}}{\left(\frac{S}{E}\right)_{sat, pure}} \quad (1.2)$$

Les termes S et E sont définis à la **section 2.3.1** et ils représentent respectivement la masse de saccharose et la masse d'eau contenues dans la solution. Le rapport massique du saccharose sur l'eau, en solution saturée impure, noté $\left(\frac{S}{E}\right)_{sat, impure}$ est égal au rapport

massique du saccharose sur l'eau en solution saturée pure, noté $\left(\frac{S}{E}\right)_{sat, pure}$ multiplié par le

coefficient de saturation CS . Cela signifie que la solubilité du saccharose en milieu impur est égale à la solubilité du saccharose dans l'eau pondérée d'un facteur multiplicatif. Ce facteur est généralement inférieur à l'unité pour des solutions de saccharose provenant de la canne à sucre. La présence d'impuretés diminue ainsi la solubilité des solutions techniques industrielles, [Hugot, 1950 et 1987], [Tabouret, 1978] et [Mathlouthi et Reiser, 1995].

L'étude de ce coefficient de saturation a suscité un très grand intérêt pour les chercheurs comme pour les industriels depuis la moitié du siècle dernier. Il existe aujourd'hui plusieurs

³ Définie à la **section 2.3.1**.

relations car aucune d'entre elles ne présente une formulation universelle du coefficient de solubilité.

La relation de Vavrinecz [**Vavrinecz, 1978 et 1979**], issue de la synthèse de plusieurs travaux est l'une des plus générales et des plus citées dans la littérature, [**Bubnik et Kadlec, 1995**], [**Georgieva et al, 2003**]. Cette relation s'appuie sur le rapport massique des non-sucres⁴ sur l'eau de la solution. Ce rapport peut s'exprimer en fonction de la pureté et du Brix de la liqueur mère. Le lecteur trouvera de plus amples explications des termes pureté, Brix, etc. à la **section 2.3.1**.

$$CS = a \frac{NS}{E} + b + (1-b)e^{-c \frac{NS}{E}} \quad (1.3)$$

$$\text{avec } \frac{NS}{E} = \frac{Bx_{LM}(1 - Pte_{LM})}{1 - Bx_{LM}} \quad (1.4)$$

Les coefficients a , b et c dépendent de la nature des non-sucres et de la température de la solution, [**Mathlouthi et Reiser, 1995**].

A la fin des années 1960 début 1970, Wright et White [**Wright et White, 1968 et 1974**] et Frew [**Frew, 1973**], travaillent sur la conduite optimale d'une cristallisation discontinue de sucre roux de la canne à sucre au moyen d'un contrôle de la sursaturation. Pour cela, ils déterminent de façon empirique les coefficients de saturation et de sursaturation.

Là encore, la relation s'appuie sur le rapport massique des non-sucres sur l'eau de la solution, suivant l'équation :

$$CS = 1 - 0,088 \frac{NS}{E} \quad (1.5)$$

Vavrinecz [**Vavrinecz, 1978 et 1979**] a rassemblé dans une revue les principaux résultats obtenus sur la solubilité du saccharose en solutions impures de jus de betterave, ainsi que les valeurs calculées des coefficients a , b et c pour chacune des séries de données examinées. Les valeurs des coefficients varient dans une très large gamme, **tableau 1.1**.

Coefficient	Gamme de variation	Valeurs moyennes
a	0,20 – 0,43	0,292
b	0,43 – 0,83	0,691
c	1,36 – 2,85	1,800

Tableau 1.1 : valeurs des constantes du coefficient de saturation.

La courbe calculée en fonction des valeurs moyennes a , b et c est présentée à la **figure 1.3**.

⁴ Terme développé à la section 2.3.1

En 1996, Schneider [Schneider, 1996] utilise la même relation que Vavrinecz, mais avec une variante des coefficients a , b et c . En effet, il les fait varier en fonction de la température (T en °C) de la solution, **tableau 1.2**.

En 2003, Georgieva [Georgieva et al, 2003] utilise la relation de Vavrinecz avec une modification des paramètres a , b et c , **tableau 1.2**.

Coefficient	Georgieva (2003)	Schneider (1996)
a	0,10	$0,011 + 0,00046 T$
b	0,40	$0,67 + 0,0021 T - 0,07 \text{ SR/MS}^{(5)}$
c	0,24	$0,54 + 0,0049 T$

Tableau 1.2 : Modifications des valeurs des constantes du coefficient de saturation.

Une représentation des différents coefficients de saturation en fonction du rapport $\frac{NS}{E}$ est représentée à la **figure 1.3**. Pour la relation de Schneider, nous avons fixé une température de 65°C, cette valeur représente une température moyenne lors d'une cristallisation C à l'usine de Bois Rouge.

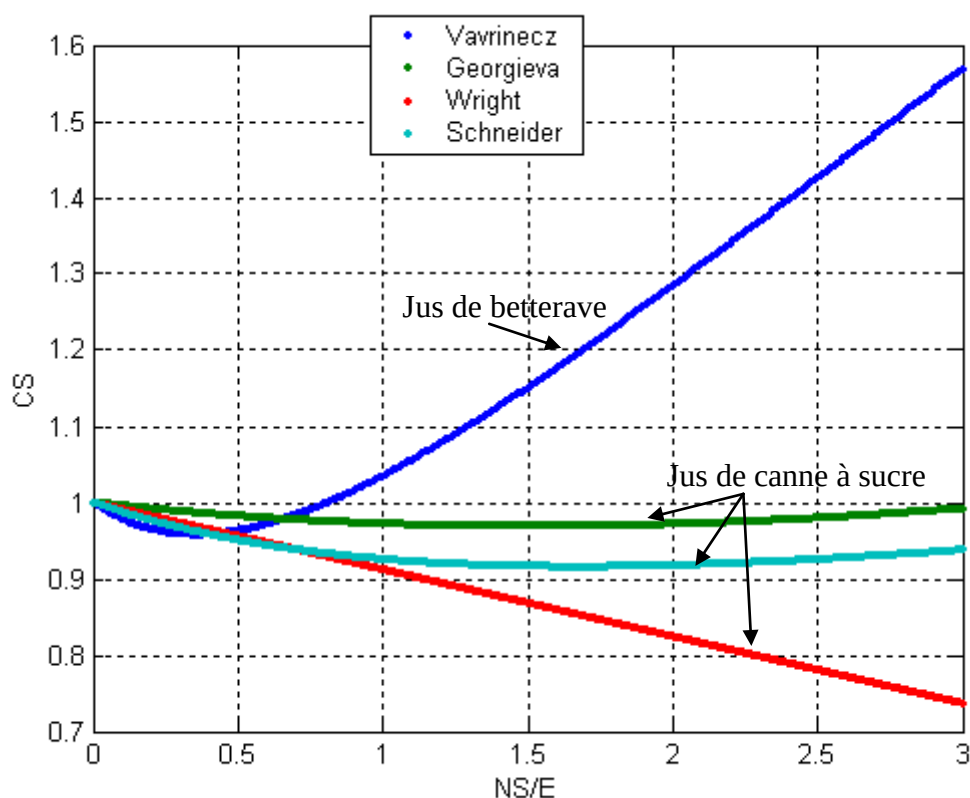


Figure 1.3 : dépendance du coefficient de saturation au rapport non-sucre sur eau.

⁵ SR/MS : représente le rapport de sucre réducteur sur la teneur en matière sèche du produit d'alimentation lors de la cristallisation.

Les différences entre les courbes montrent d'une part que la représentation de la solubilité d'une solution impure de saccharose au moyen du coefficient de saturation donné par l'équation 1.3 est approximative. D'autre part, ces courbes illustrent les différences de solubilité du saccharose dans le jus de canne à sucre et dans le jus de betterave. En effet, nous pouvons constater que l'augmentation du rapport non-sucre sur eau n'aura pas le même effet dans les deux solutions sucrées. Pour le jus de canne à sucre la solubilité du saccharose diminue en fonction de l'augmentation du rapport non-sucre sur eau et l'effet inverse se produit dans le jus de betterave. Ces constatations sont en accord avec les travaux de Tabouret, [Tabouret, 1978].

Ces observations montrent que pour avoir une bonne représentation du coefficient de saturation de la solution technique industrielle de saccharose étudiée, il faut déterminer à l'aide d'analyses rigoureuses la composition chimique de la solution sucrée. Rappelons que la teneur en impuretés des solutions utilisées en cristallisation C à Bois Rouge est très élevée. Par conséquent les valeurs de puretés sont relativement faibles, ce qui rend difficile l'estimation de la solubilité du saccharose dans ces solutions techniques. La **figure 1.4** représente des mesures de pureté de la liqueur mère réalisées le 22 septembre 2004 en phase de montée 2. Elle donne la gamme de variation de la pureté considérée. Nous représentons la pureté mesurée en laboratoire ($Pte_{LM_{labo}}$) et une régression polynomiale ($Pte_{LM_{reg}}$) de celle-ci.

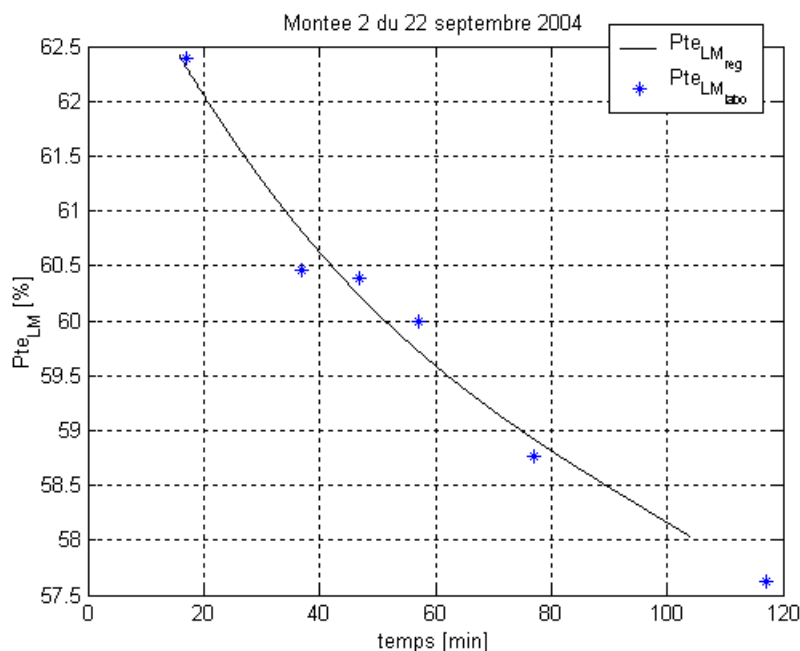


Figure 1.4 : exemple de l'évolution de la valeur de la pureté d'une solution technique industrielle au cours d'une cristallisation C.

Les difficultés d'établir une courbe de solubilité pour une solution industrielle de saccharose rendent complexe la détermination de la sursaturation. En effet, s'il n'existe qu'une seule courbe de solubilité pour une solution donnée à une température donnée, il existe en revanche

dans les mêmes conditions plusieurs courbes de sursaturation. La définition thermodynamique de la sursaturation, donnée dans la section suivante conduit à définir les différentes courbes de sursaturation et les techniques permettant leur estimation.

1.2.1.2 Sursaturation.

Une solution qui est en équilibre avec la phase solide est dite « saturée en solide » ou « saturée ». Dans le cas de la cristallisation du saccharose, la solution est dite saturée lorsque la solution contient la quantité totale de sucre qu'elle est susceptible de dissoudre. Toutefois, il est facile de préparer une solution contenant une masse de solides dissous supérieure à celle imposée par la condition de saturation. Une telle solution est dite sursaturée en soluté dissous.

Bien que la force motrice fondamentale de la cristallisation soit la différence de potentiel chimique entre la substance cristallisée et la substance en solution (en phase soluble), il est courant d'utiliser la sursaturation comme la force motrice du procédé de cristallisation. L'état de sursaturation est un état initial nécessaire pour tous les procédés de cristallisation, [Chouaib et al, 1994].

La force motrice thermodynamique de la cristallisation est la différence de potentiel chimique ($\Delta\mu$) entre la solution et le cristal. La matière a tendance à « passer » spontanément de la phase où son potentiel chimique est plus élevé vers la phase où il est plus faible :

$$\Delta\mu = \mu_{\text{solution}} - \mu_{\text{cristaux}} \quad (1.6)$$

μ , le potentiel chimique [J.mol^{-1}], est défini par :

$$\mu = \mu_0 + R.T.\ln a \quad (1.7)$$

avec :

μ_0 : le potentiel chimique standard [J.mol^{-1}]

R : la constante des gaz ($8,314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

T : la température absolue [$^{\circ}\text{K}$]

a : l'activité thermodynamique du soluté

En combinant les **équations 1.6 et 1.7**, l'expression de la force motrice de cristallisation définit la sursaturation thermodynamique :

$$\frac{\Delta\mu}{R.T} = \ln\left(\frac{a}{a^*}\right) = \ln s \quad (1.8)$$

avec :

a^* : l'activité thermodynamique du soluté à l'équilibre

s : la sursaturation thermodynamique

Le passage de l'activité à la concentration dans une échelle donnée (mol.L^{-1} , ...) se fait par l'intermédiaire du coefficient d'activité dans cette échelle, [Guignard, 1989]. Ainsi, dans notre cas de cristallisation, nous avons :

$$\ln s = \ln \left(\frac{c \cdot \gamma}{c^* \cdot \gamma^*} \right) \quad (1.9)$$

avec :

c : la concentration du soluté [mol.L^{-1}]

c^* : la concentration du soluté à l'équilibre [mol.L^{-1}]

γ : le coefficient d'activité du soluté

γ^* : le coefficient d'activité du soluté à l'équilibre

Dans la pratique, l'échelle des activités n'est quasiment jamais utilisée. Il faut dire que l'évaluation des coefficients d'activité en solution pose souvent des problèmes. Les cinétiques de cristallisation du saccharose sont souvent données en kilogramme par seconde (kg.s^{-1}). C'est celui que nous conserverons dans la suite de notre exposé.

Expérimentalement, la sursaturation d'un système peut être exprimée de trois façons à une température donnée. Il est absolument essentiel de définir les unités de base de concentration avec leurs conditions. En effet, les mesures de solubilité sont rapportées dans de nombreux systèmes d'unités, et il existe donc diverses échelles de sursaturation [Tavare, 1995], **tableau 1.3**. Comme les relations permettant de changer de système d'unités ne sont pas nécessairement linéaires, ces échelles ne sont pas cohérentes entre elles. Par exemple, l'expression de la sursaturation relative, grandeur adimensionnelle égale à l'écart de concentration divisé par la solubilité, a une valeur qui dépend du système d'unités choisi. La sursaturation est exprimée communément en fonction de la différence de concentration, ΔC , ou en fonction du rapport de la sursaturation, S , et quelquefois en fonction d'une quantité appelée sursaturation absolue ou relative, σ . Si C est la concentration du soluté dans la solution, et C^* sa solubilité à une température donnée, ces grandeurs sont définies par :

$$\Delta C = C - C^* \quad (1.10)$$

$$S = \frac{C}{C^*} \quad (1.11)$$

$$\sigma = \frac{\Delta C}{C^*} = S - 1 \quad (1.12)$$

Et la différence de potentiel chimique est définie par :

$$\Delta\mu = k.T.\ln \frac{C}{C^*} \quad (1.13)$$

avec :

k : constante de Boltzmann [$1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$]

T : température [$^{\circ}\text{K}$]

C^* : concentration à saturation [kg.m^{-3}]

C : concentration [kg.m^{-3}]

Avec des substances très solubles, comme le saccharose, les **équations 1.10, 1.11** et **1.12** de la sursaturation peuvent être modifiées, **tableau 1.3**. Lorsqu'on décrit un état de sursaturation, il est important de prendre en considération d'autres variables telles que la température et la concentration en impuretés du milieu. Ces variables peuvent en effet modifier considérablement le point de saturation de la solution.

Saccharose					
$M = 342 \text{ kg/kmol}, \theta = 20^{\circ}\text{C}, \rho_{\text{sol}}^* = 1330 \text{ kg/m}^3, \rho_{\text{sol}} = 1360 \text{ kg/m}^3$					
Unités	C	C^*	ΔC	S	σ
kg/kg d'eau	2450	2040	410	1,20	0,20
kg/kg de solution	710	671	39	1,06	0,06
kg/m^3 de solution	966	893	73	1,08	0,08
kmol/m^3 de solution	2,82	2,61	0,21	1,08	0,08
Fraction molaire de saccharose	0,114	0,097	0,017	1,18	0,18

Tableau 1.3 : les échelles des valeurs de la sursaturation.

Si, pour des conditions données, la concentration de la solution peut être mesurée et que le point de saturation correspondant est connu alors la sursaturation peut être facilement calculée à partir des **équations 1.10** à **1.12**. Comme vu précédemment, la concentration de la solution peut être obtenue par mesure directe où calculée à partir de mesures de grandeurs caractéristiques de la solution, image de la concentration. Les grandeurs fréquemment choisies sont la masse volumique, la viscosité, l'indice de réfraction et la conductivité électrique de la solution.

1.2.1.3 Facteurs de forme.

Les grandeurs que nous venons de définir précédemment, et qui interviendront dans les lois cinétiques que nous allons présenter, sont des caractéristiques de la solution. Toutefois, certaines lois cinétiques dépendent de certaines caractéristiques des cristaux et en particulier de sa dimension caractéristique L . La définition de cette dimension caractéristique n'est pas simple, elle est étroitement liée à la méthode de mesure. Lorsqu'on fait l'hypothèse que la particule est parfaitement sphérique, la taille L est reliée aux autres caractéristiques

géométriques du cristal (le volume réel V_p et l'aire réelle S_p) par l'intermédiaire du facteur de forme volumique Φ_v et du facteur de forme surfacique Φ_s définis par, [Allen, 1981] :

$$V_p = \Phi_v L^3 \quad (1.14)$$

$$S_p = \Phi_s L^2 \quad (1.15)$$

Notons que ces facteurs de forme des cristaux sont des paramètres importants dans les études des cinétiques de cristallisation. Le couple (Φ_v , Φ_s) ne permet pas *a priori* de connaître la forme de façon absolue, et deux particules peuvent avoir des formes totalement différentes et cependant des mêmes valeurs pour les facteurs de formes.

1.2.2 Nucléations.

La nucléation est une étape déterminante qui définit les caractéristiques du produit final (distribution en taille des cristaux, morphologie, pureté, etc.).

Le processus de nucléation est la formation de nouveaux cristaux dans une solution contenant ou pas des cristaux. L'état de sursaturation est une condition nécessaire mais non suffisante pour que la cristallisation commence au sein de la solution. Les petits cristaux naissants sont appelés germes ou **nuclei** et peuvent croître. Divers mécanismes peuvent amener à la formation de germes, et l'on distingue donc plusieurs types de nucléations. La classification des nucléations que nous proposons est celle que l'on rencontre le plus fréquemment dans les ouvrages de cristallisation industrielle, [Mullin, 1972], [Ohara et Reid, 1973], [Jancic et Grootcholten, 1984], [Nyvlt et al, 1985], **figure 1.5**. Dans la réalité, cette classification est bien plus complexe que cette représentation.

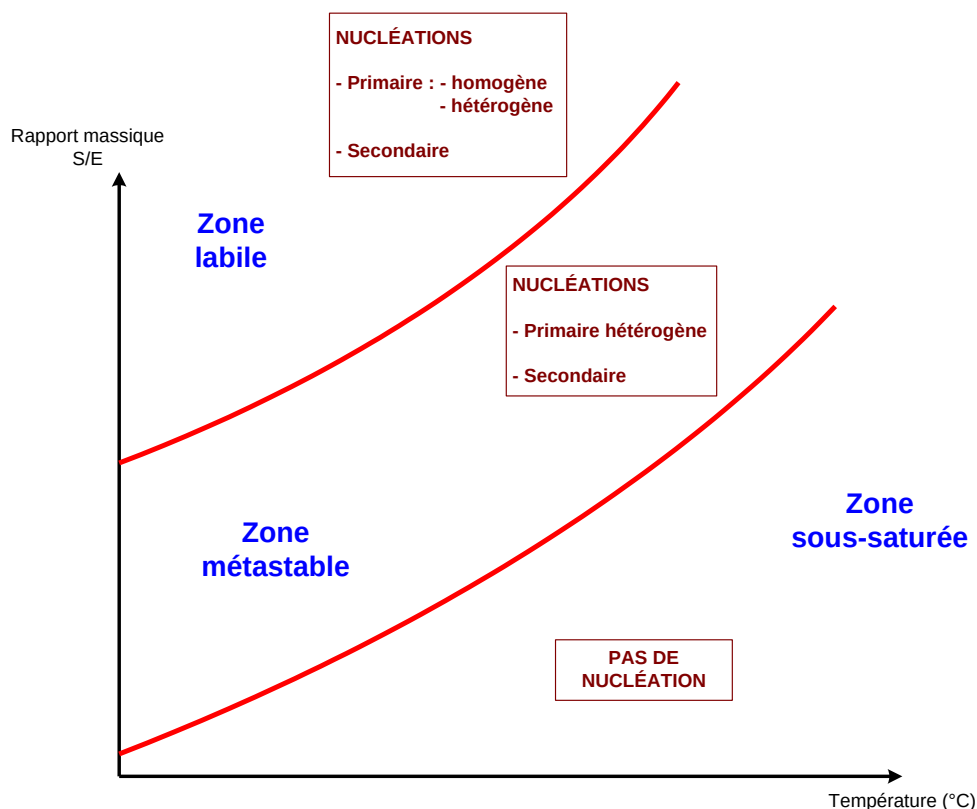


Figure 1.5 : Différentes zones de sursaturation et types de nucléation.

1.2.2.1 Zones métastables.

La zone métastable est présentée comme le lieu des états où la solution est sursaturée et où cependant la nucléation n'apparaît pas spontanément. L'état est thermodynamiquement instable, le système tend à revenir à l'équilibre, mais avec une cinétique très lente. La zone métastable est donc fondamentalement due à un phénomène d'origine cinétique lié à la loi de nucléation primaire. En fait, il existe autant de zones métastables qu'il y a de processus de nucléation, [Garside, 1985]. Pour notre part, nous en avons retenu trois, les nucléations primaires homogène et hétérogène, et la nucléation secondaire.

La zone la plus large correspond à la nucléation primaire homogène. La zone métastable correspondant à la nucléation secondaire existe, mais son étendue dans les conditions habituelles d'étude des cristallisations industrielles est réduite. En effet, l'agitation dans une cuve déclenche assez facilement la nucléation secondaire, et la largeur de la zone métastable correspondant à la nucléation secondaire est, compte tenu des imprécisions, confondue à la valeur de la solubilité du soluté dans le mélange. La largeur de la zone métastable correspondant à la nucléation primaire hétérogène peut être, elle, assez importante. Dans la pratique, on parle de zone métastable au singulier car cette dernière est remarquable et observable couramment. Sa détermination renseigne utilement sur la cinétique de nucléation primaire hétérogène, [Marchal, 1989].

1.2.2.2 Approche théorique.

Le terme cristallisation est réservé à la formation des cristaux par variation de température ou de pH. Lorsque la solution est en état de sursaturation, des germes peuvent apparaître dans un laps de temps plus ou moins long, appelé temps d'induction ou temps de latence, [Ohara et Reid, 1973]. Ce temps est fonction non seulement de la valeur de la sursaturation, mais aussi du type de mécanisme mis en jeu pour former les germes cristallins, c'est-à-dire du type de nucléation.

- *Nucléation primaire homogène et hétérogène.*

Dans le cas de la nucléation primaire, l'apparition des germes se fait dans un milieu où n'existe encore aucun germe et aucun cristal. Si les germes se forment dans le volume de la solution, la nucléation est dite primaire homogène. Si, au contraire, ils se forment sur les parois des cristallisoirs, sur les agitateurs ou sur des particules solides présentes dans la solution, la nucléation est dite primaire hétérogène, [Walton, 1969].

- *Nucléation secondaire.*

Deux phénomènes peuvent entraîner une nucléation secondaire :

- l'introduction de germes dans la solution (l'ensemencement) ;
- ou l'attrition de cristaux déjà présents dans la solution.

En effet, lorsque la suspension est dense, les chocs entre cristaux libèrent des particules de taille microscopique qui peuvent se mettre à croître. Il y a alors nucléation secondaire. Ce type de nucléation n'existe pas en phase vapeur mais peut avoir une importance considérable en solution, [Walton, 1969].

1.2.2.2.1 Barrière d'énergie.

Dans une solution, les molécules de soluté se rencontrent d'autant plus facilement que concentration et sursaturation sont élevées. Elles forment en solution des monomères mais aussi des dimères, des trimères, etc. Par addition de monomères, on arrive à des agrégats qui ont une taille telle qu'on peut leur attribuer le qualificatif de germes cristallins. Le processus de formation de tels germes met en jeu une énergie ΔG , appelée énergie libre d'activation de germination. Ce processus de formation impliquant à la fois un développement de surface et un développement de volume, ΔG résulte du bilan de deux formes d'énergie : l'énergie de volume, qui dépend de la sursaturation β de la solution, et l'énergie de surface, liée à la capacité d'adsorption. Si le germe contient n molécules, l'énergie libre d'activation de germination s'écrit :

$$\Delta G = \underbrace{-nkT \ln \beta}_{\text{énergie de volume}} + \underbrace{\sum_i S_i \gamma_i}_{\text{énergie de surface}} \quad (1.16)$$

avec :

$$\beta = \frac{C}{C^*}$$

On reconnaît dans le terme de volume la différence des potentiels chimiques $\Delta\mu$, d'une molécule dans les phases liquides respectivement sursaturée et saturée, **équation 1.13**. Dans l'énergie de surface, la sommation est faite sur toutes les faces d'aires S_i , d'énergie libre de surface γ_i .

- *Nucléation primaire homogène.*

Pour simplifier, on considère que le germe qui se forme est une sphère, ce qui revient à dire qu'il n'y a qu'une seule surface d'aire S d'énergie libre de surface (ou interfaciale) γ .

Si le rayon du germe est r , alors on peut écrire :

$$\Delta G^{\text{homogène}} = \underbrace{-nkT \ln \beta}_{\text{énergie de volume}} + \underbrace{\sum_i S_i \gamma_i}_{\text{énergie de surface}} = - \underbrace{\frac{4}{3}\pi r^3}_{\text{volume du germe}} \underbrace{\frac{1}{V}}_{\text{volume d'une molécule}} kT \ln \beta + \underbrace{4\pi r^2}_{\text{surface du germe}} \gamma \quad (1.17)$$

soit :

$$\Delta G^{\text{homogène}} = -\frac{4}{3} \frac{\pi r^3}{V} kT \ln \beta + 4\pi r^2 \gamma \quad (1.18)$$

où V est le volume d'une molécule dans le germe.

La **figure 1.6** montre la compétition entre les termes de volume et de surface. En effet, nous constatons que ces termes augmentent en valeur absolue au fur et à mesure que la taille du germe s'accroît. L'évolution de l'énergie d'activation de germination est une fonction du rayon du germe. Il existe un rayon critique $r_c^{\text{homogène}}$ qui correspond à un maximum de l'énergie d'activation de germination.

L'expression de ce maximum est donnée au départ de **l'équation 1.18** par :

$$\frac{d(\Delta G^{\text{homogène}})}{dr} = 0 \quad (1.19)$$

Ainsi, le rayon critique $r_c^{\text{homogène}}$ du germe vaut :

$$r_c^{\text{homogène}} = \frac{2V\gamma}{kT \ln \beta} \quad \text{- équation dite de Gibbs-Thomson -} \quad (1.20)$$

A ce rayon critique, correspond une énergie d'activation critique $\Delta G_c^{\text{homogène}}$:

$$\Delta G_c^{\text{homogène}} = \frac{4}{3} \pi r_c^2 \gamma \quad (1.21)$$

On constate que l'énergie nécessaire à la formation du germe est égale au tiers de l'énergie nécessaire pour créer sa surface, [Van Hook, 1961].

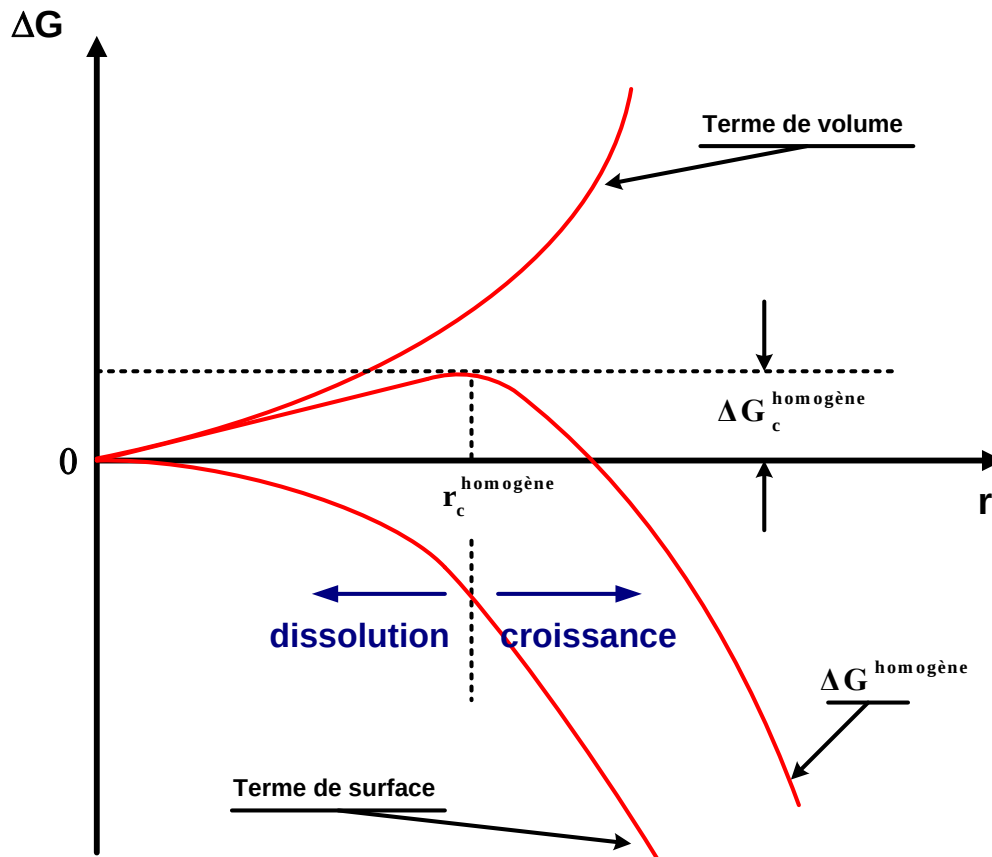


Figure 1.6 : variation de l'énergie libre d'activation lors du processus de nucléation homogène en fonction du rayon du germe.

La **figure 1.6** et l'**équation 1.20** mettent en évidence un point déterminant pour la nucléation du soluté dans la solution. En effet, pour une solution, un soluté et une température donnés (V , γ et T constants), le germe de taille critique r_c n'est stable que pour une valeur de β :

- si on lui ajoute une molécule, le germe croît spontanément,
- si on lui retire une molécule, le germe se dissout spontanément, puisqu'il y a diminution des deux composantes de l'énergie libre du système.

Les **équations 1.20** et **1.21** montrent aussi que $r_c^{\text{homogène}}$ et $\Delta G_c^{\text{homogène}}$ sont d'autant plus faibles que la sursaturation β est élevée, ce qui implique que la nucléation est d'autant plus facile que la sursaturation est plus élevée.

Si on n'est pas obligé de s'en tenir à une température et à un solvant donnés, la nucléation peut aussi être favorisée en travaillant à une température plus élevée et à une énergie de surface plus faible. On peut retenir que γ est d'autant plus faible que le solvant est meilleur. En effet, l'énergie interfaciale cristal - solution dépend de l'affinité qu'a le solvant pour le cristal. Meilleure est cette affinité, plus grande est la solubilité, et plus faible est γ , [Kelly et Mak, 1975].

- Nucléation primaire hétérogène.

Lorsque le germe se forme sur un support, ou substrat, plusieurs énergies interfaciales sont mises en jeu (**figure 1.7**) :

1. γ_1 entre cristal et solution,
2. γ_0 entre substrat et solution,
3. γ_a entre cristal et substrat.

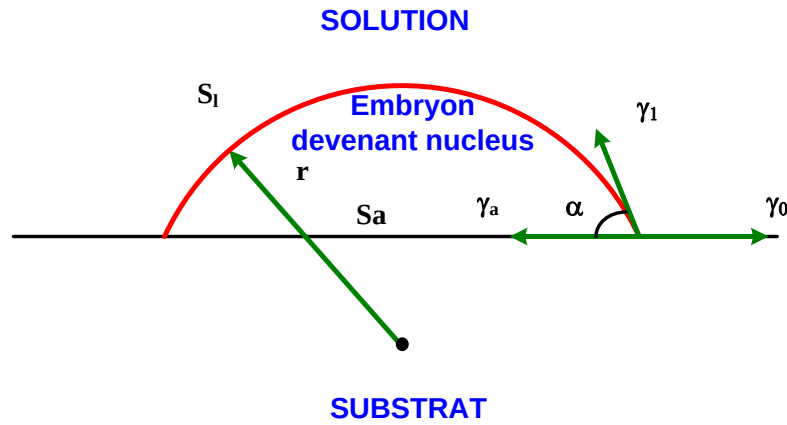


Figure 1.7 : Aires et énergies libres interfaciales mises en jeu lors de la germination hétérogène.

Dans le cas d'une nucléation hétérogène, on fait l'hypothèse que le germe a la forme d'une calotte sphérique de surface S_l , et de surface de contact S_a avec le substrat. L'énergie libre d'activation de nucléation hétérogène résulte alors du bilan du terme de volume et de tous les termes de surface :

$$\Delta G^{\text{hétérogène}} = -nkT \ln \beta + S_l \gamma_1 + S_a (\gamma_a - \gamma_0) \quad (1.22)$$

Les énergies interfaciales étant liées par la relation de Young :

$$\gamma_0 = \gamma_a + \gamma_1 \cos \alpha \quad (1.23)$$

avec α l'angle de contact du germe avec le substrat (**figure 1.7**).

Dans le cas de la nucléation hétérogène, l'expression du rayon du germe critique a la même forme que celle donnée à l'équation 1.20 :

$$r_c^{\text{hétérogène}} = \frac{2V \gamma_1}{kT \ln \beta} \quad (1.24)$$

La présence d'impuretés diminue l'énergie d'activation de la germination critique hétérogène $\Delta G_c^{\text{hétérogène}}$ qui devient plus petite que celle nécessaire à la formation du germe homogène :

$$\Delta G_c^{\text{hétérogène}} = f(\alpha) \Delta G_c^{\text{homogène}} \quad (1.25)$$

avec $f(\alpha) = \frac{1}{4}(2 + \cos \alpha)(1 - \cos \alpha)^3$

$f(\alpha)$ est le facteur de germination primaire hétérogène ($0 < f(\alpha) < 1$).

Le facteur $f(\alpha)$ permet de caractériser l'affinité du germe pour l'impureté, **figure 1.8**.

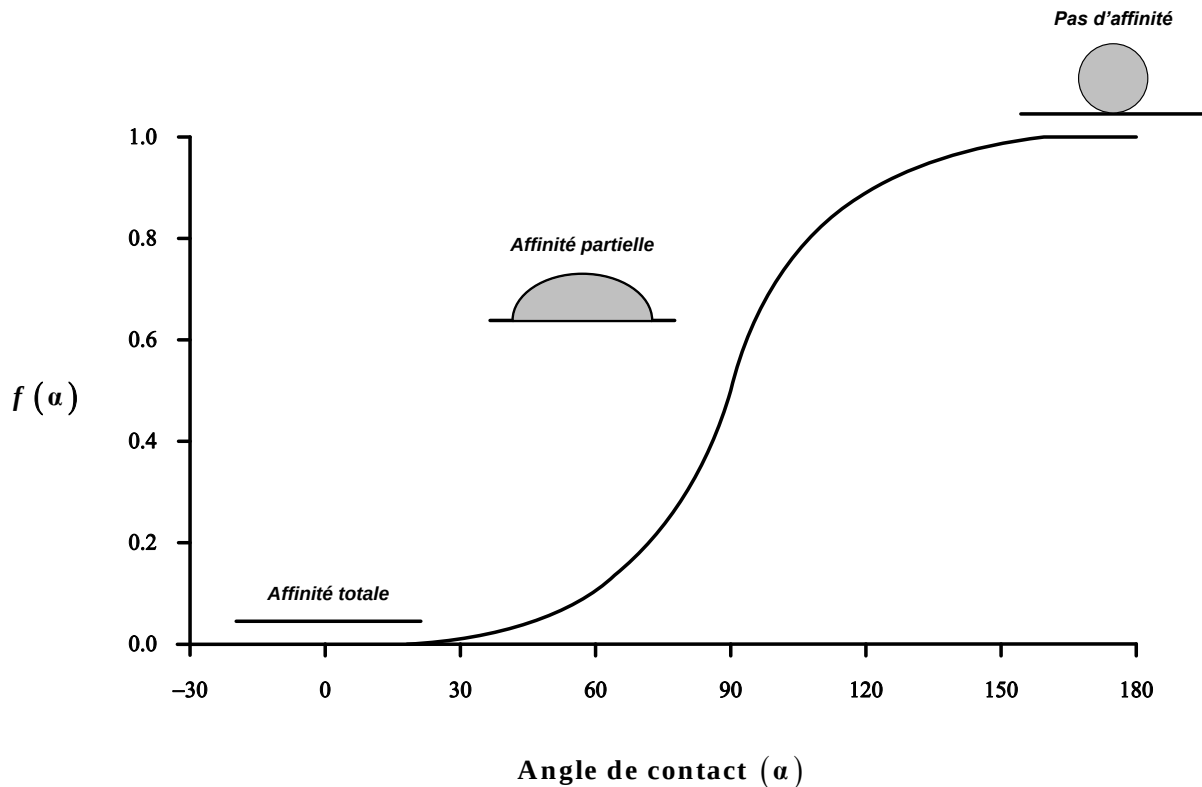


Figure 1.8 : influence de l'angle de contact sur le facteur de germination primaire hétérogène.

L'équation 1.25 définit quelques cas remarquables :

1. Si $\alpha = 180^\circ$, $f(\alpha) = 1$, $\Delta G_c^{\text{hétérogène}} = \Delta G_c^{\text{homogène}}$. Il n'y a qu'un point de contact entre la surface de l'impureté et celle du germe, il n'existe pas d'affinité entre eux. L'énergie d'activation critique pour la germination hétérogène est la même que celle pour la germination homogène.
2. Si $0 < \alpha < 180^\circ$, $0 < f(\alpha) < 1$, $\Delta G_c^{\text{hétérogène}} < \Delta G_c^{\text{homogène}}$. Il existe une affinité partielle entre la surface de l'impureté et celle du germe. Donc, la germination est plus facile à obtenir car l'énergie d'activation critique pour la germination hétérogène est plus petite que celle pour la germination homogène.

3. Si $\alpha = 0^\circ$, $f(\alpha) = 0$, $\Delta G_c^{\text{hétérogène}} = 0$. Le contact entre la surface de l'impureté et celle du germe est complète. Il y a 100% d'affinité entre les deux solides. L'énergie d'activation critique pour la germination hétérogène est égale à 0. C'est le cas de l'ensemencement dans une solution sursaturée.

Si l'énergie nécessaire à la formation des germes est suffisamment faible, ceux-ci vont apparaître plus facilement, même à sursaturation très faible : le substrat agit alors comme un catalyseur de la nucléation. Cela peut être catastrophique si l'on pense à l'encrassement des cristallisoirs, [Briançon et al, 1998]. Pour éviter l'encrassement des cristallisoirs, on peut introduire dans les solutions des particules solides propices à la nucléation primaire hétérogène.

1.2.2.2.2 Cinétique de nucléation.

La vitesse à laquelle apparaissent les germes est représentée par la fréquence de nucléation, qui est le nombre de germes formés par unité de temps et de volume. Cette fréquence J s'écrit dans le cas de la germination homogène :

$$J = N_0 j \exp\left(-\frac{fV^2\gamma^3}{(kT)^3 (\ln \beta)^2}\right) \quad (1.26)$$

J : fréquence à laquelle les germes de taille critique deviennent de taille supercritique ($r > r_c$) [s^{-1}].

N_0 : solubilité exprimée en nombre de molécules par unité de volume [m^{-3}].

On écrit aussi :

$$J = K \cdot \exp\left(-\frac{\Delta G_c}{kT}\right) \quad (1.27)$$

K : coefficient cinétique [$m^{-3} \cdot s^{-1}$]

Dans le cas d'une solution très visqueuse, on peut modifier l'expression de J en ajoutant un terme prenant en considération la viscosité. La fréquence de nucléation augmente avec la nature du solvant et la concentration du soluté.

1.2.2.3 Approche expérimentale.

En cristallisation industrielle et plus spécialement en solution, la nucléation est l'étape générant les germes. Il est important de maîtriser cette étape afin de prévoir et de contrôler la granulométrie finale du produit cristallisé. Il est donc essentiel de bien connaître les différents

types de mécanismes rencontrés, à savoir les nucléations primaires homogènes et hétérogènes et la nucléation secondaire, cette dernière étant la plus fréquemment utilisée dans l'industrie.

En pratique, les phénomènes rencontrés, s'ils obéissent aux lois fondamentales de base vues précédemment, ne peuvent pas être classés de manière stricte selon l'un ou l'autre des mécanismes. Il est donc difficile de tenter une approche fondamentale. De ce fait, on utilise des équations globales décrivant les effets sur un large domaine de conditions expérimentales.

1.2.2.3.1 Modèle simplifié de nucléation primaire.

La nucléation primaire est absente des procédés continus, sauf cas exceptionnels où l'on aurait des augmentations locales importantes de la sursaturation. En procédés discontinus, la nucléation primaire est contrôlée, voire évitée par l'ensemencement.

Néanmoins, l'apparition spontanée des premiers cristaux peut se faire par un processus de nucléation primaire hétérogène. En effet il est difficile d'éviter la présence de poussières ou de particules résiduelles de l'opération de cristallisation précédente et l'agitation elle-même induit ces effets externes par rotation ou par génération de bulles de gaz. Pour un ensemble de conditions données, il existe un domaine de sursaturation au-delà et en-deçà duquel la nucléation est soit homogène, soit hétérogène, [Mullin et Zacek, 1981].

L'expression 1.26 ne peut pas représenter le processus de manière rigoureuse. Elle décrit toutefois correctement l'influence des paramètres essentiels, que sont la sursaturation et la température de la solution. On emploie donc indifféremment cette expression ou une formulation empirique du type :

$$J_p = k_p \cdot \Delta C^n \quad (1.28)$$

avec :

J_p : nombre de germes formés par nucléation primaire [$\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$].

$\Delta C = C - C^*$: différence de concentration [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$].

La constante cinétique k_p et l'exposant n dépendent de la température, n pouvant être très largement supérieur à 1. En outre, la dépendance de n à la température rend l'identification de J_p difficile.

1.2.2.3.2 Modèle simplifié de nucléation secondaire.

La nucléation secondaire, qui n'existe qu'en solution, peut se produire à très faible sursaturation, [Maurandi, 1985], puisque ce sont les germes introduits dans la solution qui vont générer des cristaux. Dans les suspensions à forte densité de cristaux, les chocs peuvent

également entraîner un phénomène de nucléation secondaire (brisure, attrition, etc.). En effet, plusieurs types de nucléation secondaire existent, parmi lesquels la nucléation secondaire apparente qui peut se produire :

- lorsqu'il y a ensemencement : les cristaux introduits peuvent avoir des microcristaux collés à leur surface,
- lorsqu'il y a brisure des cristaux au cours de l'agitation du mélange (macroattrition).

La cinétique de nucléation secondaire est représentée par l'équation empirique, [De Jong, 1984], [Nyvlt et al, 1985], [Klein et al, 1989] :

$$J_s = k_s \cdot \Delta C^i \cdot \varepsilon^h \cdot \rho_c^k \quad (1.29)$$

avec :

J_s : fréquence de nucléation secondaire [$\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$]

k_s : constante cinétique dépendant de la température

ΔC : sursaturation [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$]

ε : énergie transmise par l'agitateur, par unité de masse de suspension [$\text{W} \cdot \text{kg}^{-1}$]

ρ_c : masse de cristaux par unité de volume [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$]

et :

$$0 < h < 1$$

$$0,5 < i < 3$$

$$0,5 < k < 3$$

Les exposants h , i et k dépendent de la nature du soluté et surtout des conditions hydrodynamiques.

1.2.3 Croissance cristalline.

Pour tendre vers l'état de plus grande stabilité, le système thermodynamique constitué par la suspension doit franchir la barrière d'énergie qui correspond à la formation des premiers cristaux, **figure 1.6**. Le soluté en excès va être incorporé aux cristaux qui vont donc voir leur volume augmenter : c'est la croissance cristalline. Trois étapes se produisent successivement lors de la croissance des cristaux dans la solution, [Jancic et Grootscholten, 1984] :

- le soluté est transféré depuis la solution jusqu'à la surface du cristal (étape de transfert),
- le soluté est intégré au réseau cristallin au niveau d'un site de cristallisation (étape d'intégration),
- la chaleur de cristallisation libérée par l'intégration est dissipée.

Ce dernier processus est de moindre importance car il limite rarement le taux de croissance des cristaux, [Garside, 1985]. Par contre, l'une ou l'autre des deux autres étapes est généralement limitante. Dans le cas d'une vitesse de transfert du soluté faible vis-à-vis de la

vitesse d'intégration, on parle de limitation diffusionnelle, la croissance est dite croissance diffusionnelle. Dans le cas contraire, on parle de limitation par l'intégration. On peut remarquer l'analogie avec le génie de la réaction catalytique où le processus global peut être contrôlé par la physique (transfert) ou par la chimie (réaction), [Villermaux, 1982]. On parle de régime chimique dans le cas d'une limitation par l'intégration, bien que le processus de cristallisation ne soit pas rigoureusement un processus chimique. Un régime intermédiaire entre régime diffusionnel et régime chimique peut bien entendu exister, auquel cas aucune vitesse n'impose seule la cinétique. Le concept de facteur d'efficacité viendra caractériser ce régime intermédiaire. L'application de la théorie de Burton, Carbrera et Frank (théorie BCF), permet de quantifier la vitesse de croissance des faces cristallines par intégration du soluté. Nous n'aborderons pas cette description détaillée donnée dans l'ouvrage de Ohara et Reid [Ohara et Reid, 1973] et aux références [Mullin, 1972], [Jancic et Grootcholten 1984], [Garside, 1984 et 1985], et [Nyvlt et al, 1985].

Il est plus pratique d'exprimer la croissance en fonction de l'augmentation de la dimension caractéristique de la particule mesurée par un dispositif granulométrique approprié. Par définition, G est la vitesse globale et mesure l'évolution de la taille caractéristique L du cristal en fonction du temps :

$$G = \frac{dL}{dt} \quad (1.30)$$

avec :

G : vitesse de croissance linéaire globale [m.s^{-1}]

L : dimension caractéristique du cristal [m]

Pour généraliser la démarche, il est nécessaire d'utiliser les facteurs de forme surfacique et volumique (**section 1.2.1.3**) qui ramènent le cristal réel à une sphère de même volume. Il est possible alors de relier le flux massique de transfert R_G à G par la relation :

$$R_G = 3\rho_c \frac{\Phi_v}{\Phi_s} G = 3 \frac{\rho_c}{F} G \quad (1.31)$$

avec :

R_G : flux massique de transfert [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]

ρ_c : masse volumique du cristal [kg.m^{-3}]

$F = \frac{\Phi_s}{\Phi_v}$, facteur de forme.

Ce flux massique de transfert constitue aussi un moyen de quantifier la cinétique de croissance des cristaux. R_G est donc également appelée vitesse globale de croissance.

Le modèle classique du film s'applique aussi en cristallisation. La **figure 1.9** illustre les hypothèses.

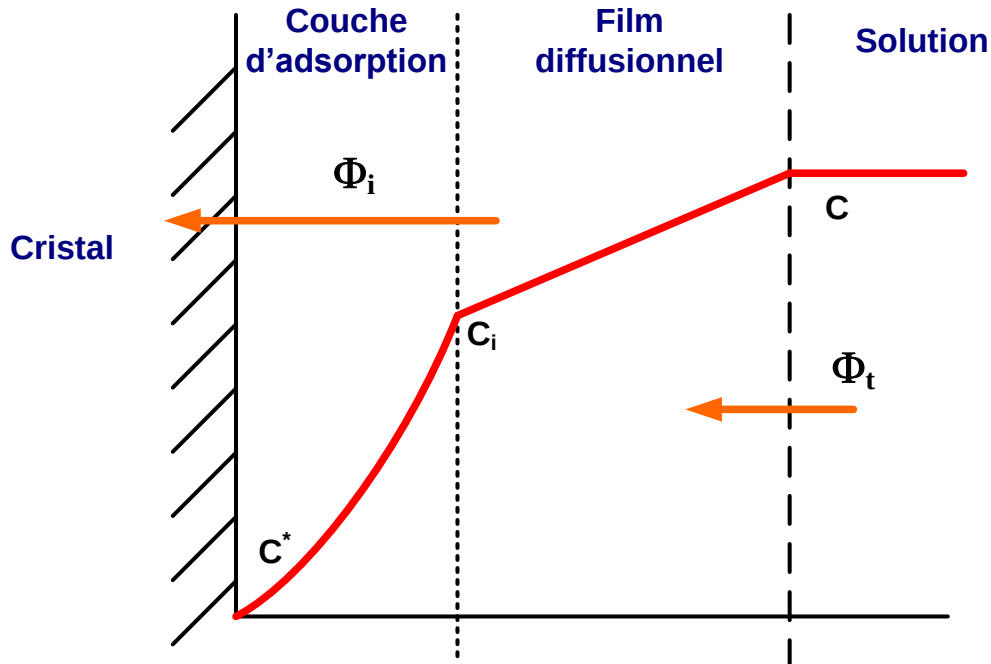


Figure 1.9 : profil de concentration autour d'un cristal dans le modèle du film.

Le soluté qui va cristalliser est en concentration C dans la solution. Autour du cristal, il existe une épaisseur de solution (le film) dans laquelle règne un gradient de concentration. A l'interface cristal-solution, la concentration est notée C_i avec $C_i \leq C$. Le soluté doit tout d'abord être transféré par diffusion à la surface puis intégré au cristal. Le processus de transfert est purement physique et l'équation utilisée dans le modèle du film est :

$$\Phi_t = k_d (C - C_i) \quad (1.32)$$

avec :

Φ_t : flux massique de transfert [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]

k_d : constante cinétique de transfert [m.s^{-1}]

C : concentration en solution [kg.m^{-3}]

C_i : concentration à l'interface [kg.m^{-3}]

k_d est un paramètre qui dépend des conditions hydrodynamiques et de la taille cristalline. Il peut être calculé grâce à diverses corrélations (relatives au transfert de matière) faisant intervenir des nombres sans dimension (nombre de Sherwood en particulier) [Klein et al, 1989], [Marchal, 1989] et [Monnier et al, 1997].

Le processus d'intégration de molécules dans le cristal est fonction de la sursaturation à l'interface. On utilise une loi en puissance pour l'exprimer :

$$\Phi_i = k_r (C_i - C^*)^r \quad (1.33)$$

avec :

Φ_i : flux massique d'intégration [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]

k_r : constante cinétique d'intégration [$\text{kg}^{-r+1}.\text{m}^{3r-2}.\text{s}^{-1}$]

r : ordre de la cinétique d'intégration

C_i : concentration à l'interface [kg.m^{-3}]

C^* : concentration à l'équilibre [kg.m^{-3}]

Il y a compétition entre les processus de diffusion et d'intégration. Le processus global de croissance cristalline résulte d'une combinaison de ces deux processus. C'est l'ordre de grandeur relatif des deux résistances (au transfert de matière) en série qui le détermine.

1.2.3.1 Équation générale.

Le modèle du film permet une description assez détaillée du phénomène de croissance par la description des phénomènes de diffusion et d'intégration. Une loi de cinétique globale souvent utilisée pour exprimer les vitesses de croissance des cristaux regroupe les cinétiques de ces deux processus :

$$G = k_G (C - C^*)^g \quad (1.34)$$

avec :

G : vitesse de croissance linéaire globale [m.s^{-1}]

k_G : constante cinétique globale [$\text{kg}^{-g}.\text{m}^{3g+1}.\text{s}^{-1}$]

g : ordre de la cinétique

C : concentration en solution [kg.m^{-3}]

C^* : concentration à l'équilibre [kg.m^{-3}]

Il est possible aussi d'utiliser une loi en puissance exprimant le débit massique par unité de surface des cristaux, soit :

$$R_G = k_G (C - C^*)^g \quad (1.35)$$

avec :

R_G : vitesse de croissance globale [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]

k_G : constante cinétique globale [$\text{kg}^{1-g}.\text{m}^{3g-2}.\text{s}^{-1}$]

L'ordre g de la cinétique globale est généralement compris entre 1 et 2 [Tavare, 1995], une valeur autour de l'unité étant la plus courante en cristallisation A. La littérature scientifique ne donne aucun ordre de grandeur pour g dans le cadre de la cristallisation de troisième jet (milieu impur). Une loi de ce type est définie aux **chapitres 3** et **4** dans le cadre de l'étude d'une cristallisation industrielle en milieu impur (sucre C).

La constante de cinétique globale dépend en général de la taille du cristal, de la température, des conditions hydrodynamiques et surtout de la présence d'impuretés dans la solution. L'effet de la température pouvant être exprimé par une relation d'Arrhenius, un modèle plus général peut alors être proposé [Palwe et al, 1985] :

$$R_G = aL^f \exp\left(-\frac{E_g}{RT}\right)\left(\frac{\varepsilon}{1-\varepsilon}\right)^e N^m \exp(kI)\Delta C^g \quad (1.36)$$

avec :

L : taille du cristal [m]

E_g : énergie d'activation [J. mol⁻¹]

ε : fraction en solide dans l'appareil

N : vitesse de l'agitateur [s⁻¹]

I : concentration massique en impuretés [kg.kg⁻¹]

R : constante molaire des gaz parfaits [J.mol⁻¹.K⁻¹]

T : température [°K]

a, f, e, m, k et g sont des paramètres à ajuster expérimentalement.

- Hypothèse de Mac Cabe :

L'hypothèse de Mac Cabe stipule que les cristaux d'une même espèce croissent à la même vitesse quelle que soit leur taille. Cette loi est souvent utilisée en première approximation pour les calculs prédictifs. Il est à noter toutefois que le modèle du film induit naturellement une vitesse de croissance fonction de la taille des cristaux. Cependant l'examen de la variation du coefficient de transfert k_d en fonction de la taille L montre que ce coefficient varie fortement avec L jusqu'à une certaine valeur puis il devient constant. Ceci explique pourquoi cette loi est mieux adaptée pour les populations dont la distribution de taille moyenne est élevée.

1.2.3.2 Paramètres cinétiques de croissance cristalline dans la littérature.

Il est intéressant de connaître les plages de variation des divers paramètres cinétiques proposés par la littérature, notamment Tavare [Tavare, 1995], **tableau 1.4**. Ces valeurs sont très utiles en particulier lorsque le processus de modélisation repose sur l'estimation des paramètres cinétiques (initialisation des algorithmes d'optimisation non linéaire).

Chapitre 1 : Les mécanismes de la cristallisation en solution et leurs représentations cinétiques en milieu impur.

Paramètre	Ordre de grandeur	Ordre de grandeur le plus probable	Remarques
Vitesse de nucléation primaire [kg ⁻¹ .solvant.s ⁻¹]	10 ⁶ - 10 ¹⁶	10 ⁸ - 10 ¹³	Nucléation hétérogène généralement
Ordre de la nucléation, n	Jusqu'à 10	3 - 4	
Vitesse de nucléation secondaire [kg ⁻¹ .s ⁻¹]	10 ² - 10 ¹⁰	10 ⁴ - 10 ⁸	
Ordre de la nucléation, i	0 - 5	2	
Exposant lié à la densité de la suspension, j	0 - 1,5	1	
Cinétique de croissance G [μm.s ⁻¹]	0,001 - 1	0,01 - 0,1	
Cinétique de croissance R _G [kg.m ⁻² .s ⁻¹]	10 ⁻⁷ - 10 ⁻³	10 ⁻⁵ - 10 ⁻⁴	
Ordre de la cinétique			
Globale	0,0 - 3,0	1 - 2	
Diffusion	0,8 - 1,2	1	
Intégration	0,0 - 3,0	1 - 2	
Paramètres liés à l'équation (1.36)			
Energie d'activation [kJ. mol ⁻¹]	10 - 80	10 - 40	Diffusion
		40 - 80	Intégration
Exposant m, vitesse d'agitateur	0 - 4	1 - 2	
Exposant f, taille du cristal	0 - 2	0 - 1	
Exposant e du rapport : $\frac{\varepsilon}{1-\varepsilon}$	0 - 3	1 - 2	

Tableau 1.4 : valeurs typiques des paramètres cinétiques estimés.

1.2.4 Evolution des systèmes.

Par système, il faut comprendre ici l'entité formée par la solution et par les cristaux. L'évolution des solutions au cours de la cristallisation est, le plus souvent, caractérisée par une variation de concentration, accompagnée éventuellement d'une variation de température ou de pH, susceptible de faire évoluer les cristaux. En fait, il existe plusieurs types d'évolution des cristaux. Les variations polymorphiques sont des transformations dues à des changements de température ou de concentration. Si le processus de nucléation augmente le nombre de cristaux en solution, l'aggrégation, ou l'agglomération et le mûrissement le diminuent. L'aggrégation a surtout lieu pendant la phase de croissance, quand la sursaturation est encore relativement grande. Le mûrissement, au contraire, a lieu lorsque l'équilibre entre cristaux et solution est globalement atteint.

1.2.4.1 Agglomération.

En cristallisation industrielle, l'agglomération des cristaux constitue un phénomène très important, surtout dans les réactions de précipitation. Il est favorisé par :

- les cinétiques de cristallisations élevées
- les sursaturations importantes

- l'agitation
- le pH
- la présence d'impuretés (surtout organiques)
- la taille des cristaux.

On distingue deux types d'agglomération, classiquement désignés par primaire et secondaire.

Agglomération primaire

Elle concerne les micro particules de taille en général inférieure à 1 μm . Elle est dépendante de trois types d'interactions :

- les forces d'attraction de London - Van der Waals, qui sont dues aux dipôles permanents des particules polaires ou aux dipôles induits des particules polarisables (cette interaction est toujours attractive et dépend de la solution, de la taille des particules et de leur distance),
- les forces coulombiennes de répulsion, qui concernent les particules possédant une double couche électrique,
- les forces d'interaction, dont l'origine est liée à l'existence de couches adsorbées à la surface des particules.

Quatre mécanismes sont invoqués pour expliquer l'agglomération primaire des cristaux :

- le collage des cristaux par rapprochement des deux couches de diffusion autour des cristaux en cours de croissance : ce processus est prédominant à sursaturation élevée,
- la nucléation spontanée sur les faces en croissance,
- la nucléation primaire simultanée de plusieurs germes au même endroit,
- la croissance anormale des cristaux sous forme de dendrites, agrégats ou bien croissance parallèle (superposition de germes).

Agglomération secondaire

Elle est provoquée soit par le mouvement brownien des particules soit par les forces de cisaillement de la suspension dues aux conditions d'agitation. Le premier mécanisme s'adresse à des particules de taille très faible (taille des colloïdes), alors que le second affecte les cristaux de taille plus grande, supérieure à 1 μm .

1.2.4.2 Brisure.

Ce phénomène mécanique concerne essentiellement les cristaux de taille supérieure à 200 μm . Ces derniers se disloquent en petits cristaux suite à des chocs contre les parois du cristalliseur, les pales de l'agitateur ou par cisaillement de la solution.

1.2.4.3 Inclusion.

Si la croissance est trop rapide, le cristal emprisonne des portions de solution qui déposent le soluté dans la cavité du cristal. Le solvant résiduel constitue alors une impureté.

1.2.4.4 Mûrissement d'Ostwald.

Pour mieux comprendre le phénomène de mûrissement, on peut discuter l'évolution de la sursaturation dans une opération de cristallisation où le soluté consommé par les cristaux n'est pas compensé par un apport extérieur.

Pour que la cristallisation ait lieu, il faut d'abord que la sursaturation atteigne un niveau suffisant [Klein et al, 1989], ce qui est réalisé au point A de la **figure 1.10**. Si la nucléation n'est pas trop importante, la sursaturation peut encore augmenter, passer par un maximum, puis chuter très rapidement. La nucléation peut donc se poursuivre jusqu'en B, alors que la croissance qui commence immédiatement après A se poursuit jusqu'en C. Le mûrissement peut débuter en D, avant même que la croissance ne soit entièrement terminée. Sa durée peut aller bien au-delà du point C selon les conditions du milieu.

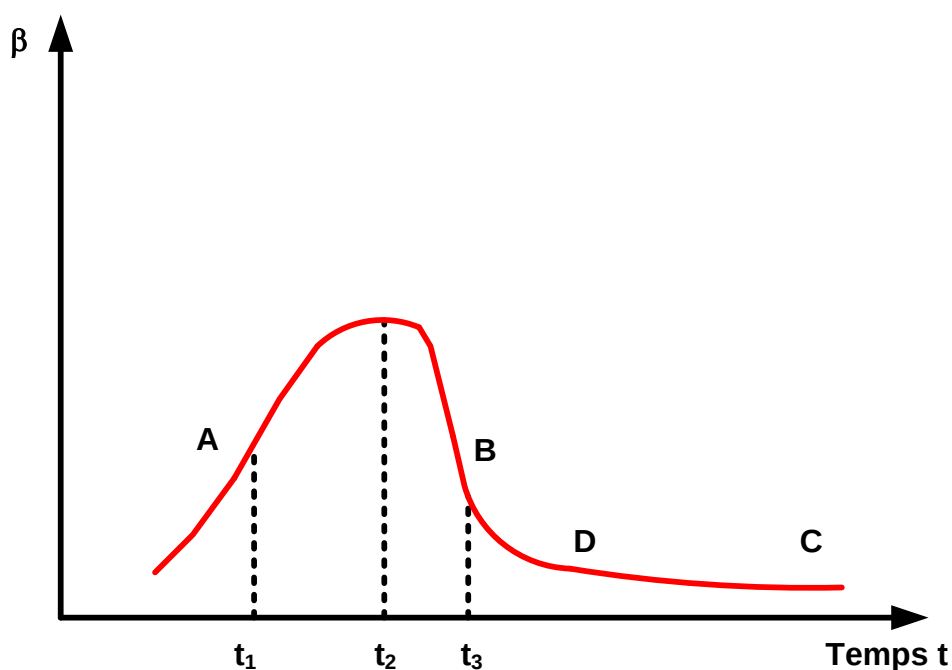


Figure 1.10 : Evolution de la sursaturation au cours d'une opération de cristallisation.

Lorsque la croissance est terminée, du moins en apparence, la concentration de la solution est revenue à C^* c'est-à-dire à la valeur de la solubilité. Mais, dans le système, se trouvent de très nombreux cristaux formés à des moments différents, ayant donc des tailles très différentes. Or, l'équation 1.20 n'est vérifiée que pour une seule taille de cristaux.

Si r_c est le rayon critique du cristal, il faut que la concentration de la solution soit égale à une concentration critique C_c telle que :

$$\ln \beta = \frac{2\gamma}{R.T.r_c} \cdot \frac{M}{\rho} \quad (1.37)$$

avec

R : 8,314 J.mol⁻¹.K⁻¹ constante molaire des gaz parfaits (si l'on calcule par mole au lieu de calculer par molécule) :

$\frac{M}{\rho}$: volume d'une mole de cristal (masse molaire / masse volumique)

On peut encore écrire :

$$\ln \beta = \ln \left(1 + \frac{C_c}{C^*} - 1 \right) = \frac{C_c}{C^*} - 1 = \frac{2\gamma}{R.T.r_c} \cdot \frac{M}{\rho} \quad (1.38)$$

$$\text{et } C_c = C^* \left(1 + \frac{2\gamma}{R.T.r_c} \cdot \frac{M}{\rho} \right) \quad (1.39)$$

On montre ainsi que la solubilité d'un cristal de taille r_c est supérieure à la solubilité d'un cristal de taille infinie. En effet, la valeur C^* de la solubilité correspond à un équilibre entre une solution et des cristaux de très grande taille (dans la pratique, on peut considérer que des cristaux de 0,1 à 1 mm ont une taille infinie). Pour la particule de rayon r_c il y aura donc une concentration $C_c > C^*$ pour laquelle cette particule est stable. Une particule de rayon $r > r_c$ croît puisque, pour elle, la solution est sursaturée. Inversement, si $r < r_c$, la particule va se dissoudre puisqu'elle aurait besoin d'une solution de concentration $C_r > C^*$ pour être stable ou grossir.

Il y a donc une sursolubilité des petits cristaux dans une solution qui est globalement à l'équilibre de concentration C^* . Dans cette même solution, les plus petits cristaux sont condamnés à se dissoudre. Le soluté ainsi généré va être récupéré par les plus gros cristaux qui vont croître. Théoriquement, ce processus ne s'arrête que si tous les cristaux ont rigoureusement la même taille ou s'il ne reste qu'un seul cristal en solution.

Le mûrissement est donc essentiellement différent de l'agglomération où le nombre de cristaux ne diminue qu'en apparence, du fait qu'ils se rassemblent en entités de plusieurs individus.

1.3 Conclusion.

La cristallisation est une opération unitaire de génie chimique complexe qui met en jeu un certain nombre de mécanismes et de processus élémentaires à l'échelle moléculaire. Il ne faudrait pas croire cependant que les différentes étapes de la cristallisation soient entièrement

déconnectées les unes des autres. La nucléation se poursuit tant que la sursaturation se maintient à un niveau suffisant. Pendant ce temps, les cristaux croissent, ce qui contribue à diminuer la sursaturation. Il peut en résulter des changements de phases et des transformations polymorphiques bien avant que la solution ne soit entièrement revenue à l'équilibre. A ce dernier stade, le système peut encore évoluer par mûrissement, processus qui aboutit à une diminution considérable du nombre de cristaux par dissolution des plus petits et par croissance des plus gros.

Cette étude bibliographique révèle que la détermination de la sursaturation d'une solution industrielle est très complexe. Ainsi, dans presque toutes les usines sucrières, la notion de sursaturation est remplacée par une grandeur qui est censée la représenter au mieux. Dans la majeure partie des cas c'est la mesure de la conductivité électrique de la solution qui fait office d'image de la sursaturation. Selon la grandeur choisie pour faire office de sursaturation de la solution, les conduites sont plus ou moins optimales.

Pour mieux cerner les difficultés d'une conduite de cristallisation de troisième jet, nous proposons à présent de faire une analyse de la cristallisation du sucre de canne en milieu industriel, en mode semi-batch, appliquée à l'usine de Bois Rouge.

*« Les idées sont des graines de lotus, elles
ne dorment que pour mieux pousser. ».*

*Fatou Diome.
« Le ventre de l'Atlantique ».*

CHAPITRE 2

Cristallisation du sucre de canne en milieu industriel.

2	CRISTALLISATION DU SUCRE DE CANNE EN MILIEU INDUSTRIEL.	45
2.1	Introduction.....	45
2.2	Procédé de fabrication.	45
2.3	Atelier de cristallisation : Principes généraux.....	47
2.3.1	Définitions propres au domaine sucrier.....	47
2.3.1.1	Brix liqueur mère.....	48
2.3.1.2	Brix masse cuite.....	48
2.3.1.3	Pureté liqueur mère.....	48
2.3.1.4	Pureté masse cuite.....	49
2.3.1.5	Teneur en cristaux.....	49
2.3.1.6	Les fractions massiques	49
2.3.2	Le procédé industriel des trois masses cuites.....	50
2.4	Le procédé de cristallisation C de l'usine de Bois Rouge.....	51
2.4.1	La cuite et l'appareil à cuire discontinu C540.....	52
2.4.2	Les différentes phases d'une cristallisation sur la C540.....	54
2.4.2.1	Introduction de la solution initiale.	56
2.4.2.2	Concentration du mélange.	57
2.4.2.3	Grainage.....	58
2.4.2.4	Lavée.	59
2.4.2.5	Ralliage.....	59
2.4.2.6	Les deux phases de Montée.	59
2.4.2.7	Etape finale de la cristallisation C à la sucrerie de Bois Rouge.	63
2.4.3	Environnement expérimental : les capteurs.....	64
2.4.3.1	Caractéristiques techniques du cristalliseur C540.	64
2.4.3.2	Les capteurs installés.	65
2.4.3.2.1	Positionnement des capteurs sur la C540.....	65
2.4.3.2.2	Réfractomètres (mesure du Brix liqueur mère).....	67
2.4.3.2.3	Densimètre micro-onde (mesure du Brix masse cuite).	67
2.4.3.2.4	Viscosimètre.	67
2.4.3.2.5	Erreurs de mesures sur les données capteurs.	67
2.4.3.3	Chaîne d'acquisition des mesures en ligne.	68
2.4.3.3.1	Le S.C.S.	68
2.4.3.3.2	Le système I-MEDIA.....	70
2.4.4	Les données expérimentales en phase de montée.....	72
2.4.5	Les plages de variation des mesures expérimentales au cours d'une cuite.....	73
2.4.5.1	Synthèse des plages de variation des mesures expérimentales.	78
2.4.5.2	Teneur en cristaux : différents cas de figures	78
2.5	Conclusion.....	82

2 Cristallisation du sucre de canne en milieu industriel.

2.1 Introduction.

Dans la production industrielle du sucre, la cristallisation est l'ultime phase de l'extraction et de la purification donnant un produit semi-fini à l'état solide, facilement stockable et transportable.

Ce chapitre a pour objectif dans un premier temps de présenter succinctement le procédé de transformation de la canne à sucre en sucre cristallisé. Puis dans une deuxième partie, nous nous attacherons à décrire de manière plus détaillée le procédé de cristallisation C à l'usine de Bois Rouge.

2.2 Procédé de fabrication.

Une usine sucrière peut-être globalement considérée comme une unité de transformation d'une matière première : la canne à sucre, en un produit semi-fini : le sucre cristallisé (le saccharose).

La quantité de saccharose contenu dans la canne à sucre est en moyenne de 12 % à 15 %. Pour extraire ce sucre, la canne à sucre doit être soumise à un traitement qui s'est complexifié avec les années. Aujourd'hui, le processus s'est grandement mécanisé et permet d'obtenir un produit d'une grande pureté en 6 étapes principales (*Figure 2.1*) [Hugot, 1987], [Chabriat, 1993], [Cadet, 1997], [Libelle, 2001] :

1) Déchargement de la canne à sucre

Les cannes à sucre, le plus souvent tronçonnées depuis l'extension de la mécanisation de la coupe, sont pesées en amont de la chaîne de fabrication et déposées sur la plate-forme d'alimentation de la sucrerie.

2) Préparation

Après élimination des impuretés physiques les plus importantes (galets, pailles, terre), les cannes à sucre sont déchiquetées mécaniquement afin de faciliter l'extraction du saccharose.

3) Extraction

Le jus de la canne à sucre peut être extrait de la fibre végétale par deux méthodes :

- l'extraction par pression, où la canne préparée est broyée dans des moulins ;
- ou l'extraction par diffusion obtenue par l'imbibition de la canne préparée.

Le résidu de l'atelier d'extraction est la bagasse.

4) Clarification (épuration)

Le jus contient un grand nombre d'impuretés minérales et organiques (acides organiques, amidon). Les matières fibreuses et cellulosiques, ainsi qu'une partie des impuretés, sont éliminées par tamisage, par chauffage et par ajout de chaux (chaulage).

Afin d'éviter les réactions d'inversion du saccharose, le jus de la canne à sucre, naturellement acide (pH = 5,5) [Van der Poel et al, 1998], est neutralisé. Le résidu organique de l'atelier de clarification est le tourteau.

5) Évaporation

L'évaporation est l'avant dernière étape de la fabrication du sucre, avant la cristallisation. Elle est réalisée suivant un procédé en multiple effets : le jus clair est chauffé à différentes températures dans une série d'évaporateurs alimentés en vapeur basse pression. L'eau est évaporée par ébullition du jus et le dernier évaporateur produit le sirop.

6) Cristallisation

Le sirop est chauffé sous pression réduite dans des chaudières alimentées avec de la vapeur basse pression. La cristallisation est la dernière étape de transformation du sirop de canne. Cette opération unitaire consiste en un changement de phase liquide-solide réalisé suivant un protocole défini par l'industriel et dans des conditions thermodynamiques précises.

Une **massecuite** est alors obtenue. Elle est composée d'une phase solide : les cristaux, et d'une phase liquide : la **liqueur mère**.

Quelques étapes supplémentaires sont nécessaires pour produire du sucre cristal commercialisable.

7) Malaxage-Turbinage

La massecuite est malaxée et turbinée dans une centrifugeuse afin de séparer la phase solide : les cristaux, de la phase liquide : l'égout.

8) Séchage et stockage

Le sucre, humide en sortie desessoreuses, est séché à l'air chaud et sec, puis refroidi par de l'air froid et sec. Le sucre est ensuite stocké dans des silos dont l'air est conditionné en température et en humidité afin d'éviter la prise en masse.

La **figure 2.1** résume les différentes étapes de la fabrication du sucre.

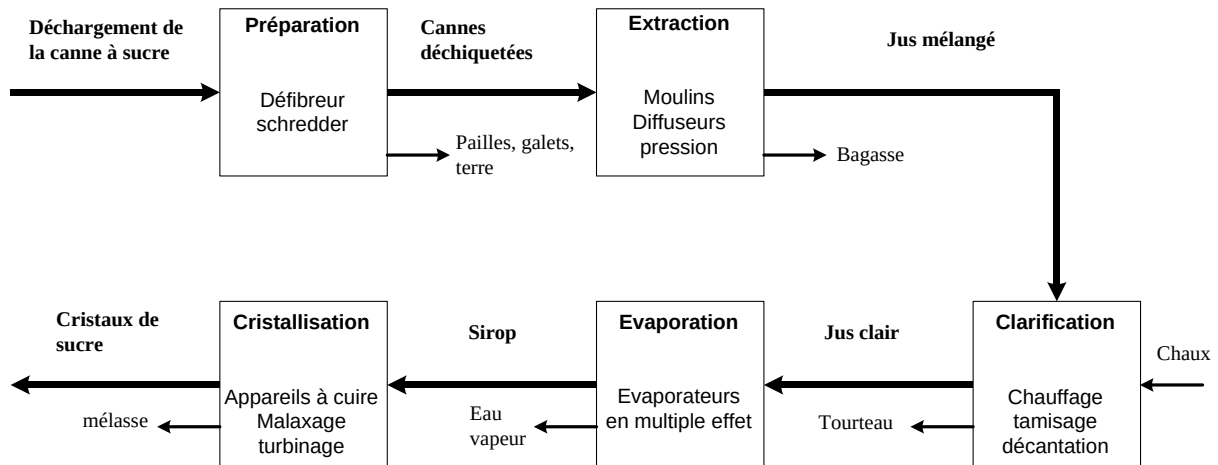


Figure 2.1 : Evolution du saccharose tout au long du procédé de fabrication du sucre.

La bagasse, la mélasse et le tourteau sont utilisés en dehors du processus de fabrication du sucre, et la vapeur d'eau extraite du jus est employée comme énergie secondaire au sein de l'usine.

2.3 Atelier de cristallisation : Principes généraux

L'atelier de cristallisation d'une usine sucrière est généralement constitué de plusieurs cristallisoirs montés en cascade pour assurer un épuisement optimal en saccharose du sirop de sucre issu de l'atelier d'évaporation [Burzawa et Heitz, 1995], [Févote, 1995], [Klein et Févote, 1995], [Nyvlt, 1996]. Le sirop est une solution impure dont les composantes sont l'eau, le saccharose et les impuretés appelées aussi non-sucre. L'objectif de la cristallisation consiste à extraire le maximum de saccharose de ce sirop qui contient environ 70 % de matières sèches (saccharose et impuretés).

Plus le milieu est impur et visqueux, plus il est difficile d'obtenir un cristal pur. En croissant dans un milieu impur, le cristal se charge en impuretés présentes dans le sirop. Il convient d'arrêter la cristallisation avant que le milieu ne devienne trop impur et visqueux. En pratique, pour épuiser au maximum une solution de son sucre, il faut procéder à une cristallisation fractionnée. Généralement, on admet une configuration en trois phases ou trois jets.

2.3.1 Définitions propres au domaine sucrier.

Dans la suite, nous adoptons la convention d'écriture suivante :

- S : masse de saccharose à l'état liquide dans la masse totale ;
- E : masse d'eau dans la masse totale ;
- NS : masse des non-sucre dans la masse totale ;

- C : masse des cristaux dans la masse totale ;
- MS : masse totale de matières sèches ($S + NS$) présentes dans la solution.

Les quelques définitions qui suivent permettent, dans le domaine sucrier, de caractériser les deux types de solutions : la liqueur mère et la masse cuite.

2.3.1.1 Brix liqueur mère

Le Brix liqueur mère est la mesure de la fraction massique de matières sèches (MS) contenue dans la liqueur mère ($S + NS + E$). Elle est définie par :

$$Bx_{LM}^{\%} = 100 \frac{S + NS}{S + NS + E} \quad (2.1)$$

$$\text{ou } Bx_{LM}^{\%} = 100 \frac{MS}{MS + E} \quad (2.2)$$

2.3.1.2 Brix masse cuite

Le Brix masse cuite est la mesure de la fraction massique de matières sèches (MS) additionnée de la masse des cristaux de saccharose (C) contenue dans la masse cuite ($S + NS + E + C$). Elle est définie par :

$$Bx_{MC}^{\%} = 100 \frac{S + NS + C}{S + NS + E + C} \quad (2.3)$$

$$\text{ou } Bx_{MC}^{\%} = 100 \frac{MS + C}{MS + E + C} \quad (2.4)$$

2.3.1.3 Pureté liqueur mère

La pureté liqueur mère est la fraction massique de saccharose à l'état liquide (S) dans les matières sèches (MS). Elle se définit par :

$$Pte_{LM}^{\%} = 100 \frac{S}{S + NS} \quad (2.5)$$

$$\text{ou } Pte_{LM}^{\%} = 100 \frac{S}{MS} \quad (2.6)$$

2.3.1.4 Pureté massecuite

La pureté massecuite d'une solution est la fraction massique du saccharose à l'état liquide (S) additionnée de la masse des cristaux de saccharose (C) contenue dans la massecuite ($S + NS + E + C$) moins la masse d'eau (E). Elle se définit par :

$$Pte_{MC}^{\%} = 100 \frac{S + C}{S + NS + C} \quad (2.7)$$

$$\text{ou } Pte_{MC}^{\%} = 100 \frac{S + C}{MS + C} \quad (2.8)$$

2.3.1.5 Teneur en cristaux

La teneur en cristaux est définie par la masse des cristaux dans la masse totale :

$$CC^{\%} = 100 \frac{C}{S + NS + E + C} \quad (2.9)$$

Cette teneur en cristaux peut être calculée soit à partir des Brix, soit à partir des puretés :

- A partir des Brix liqueur mère et massecuite :

$$CC^{\%} = 100 \frac{Bx_{MC}^{\%} - Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}} \quad (2.10)$$

- A partir des puretés liqueur mère et massecuite :

$$CC^{\%} = \frac{Pte_{MC}^{\%} - Pte_{LM}^{\%}}{100 - Pte_{LM}^{\%}} Bx_{MC}^{\%} \quad (2.11)$$

Ces deux définitions sont équivalentes (**annexe 1**).

2.3.1.6 Les fractions massiques

Nous pouvons également caractériser la massecuite en termes de fractions massiques. Ces termes sont utilisés lors des descriptions de solutions impures. Les termes $\frac{S}{E}$ et $\frac{NS}{E}$ sont des termes utilisés pour caractériser les solubilités et les sursaturations des solutions étudiées.

On note :

$$Bx_{LM} = \frac{Bx_{LM}^{\%}}{100} \quad (2.12)$$

$$Bx_{MC} = \frac{Bx_{MC}^{\%}}{100} \quad (2.13)$$

$$Pte_{LM} = \frac{Pte_{LM}^{\%}}{100} \quad (2.14)$$

$$Pte_{MC} = \frac{Pte_{MC}^{\%}}{100} \quad (2.15)$$

Alors, on a :

$$\frac{S}{E} = \frac{Bx_{LM} \cdot Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}} \quad (2.16)$$

$$\frac{NS}{E} = \frac{Bx_{LM} \cdot (1 - Pte_{LM})}{1 - Bx_{LM}} \quad (2.17)$$

$$\frac{MS}{E} = \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} \quad (2.18)$$

$$\frac{C}{E} = \frac{Bx_{MC}}{1 - Bx_{MC}} - \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} \quad (2.19)$$

Les démonstrations qui conduisent à ces relations sont données en **annexe 2**.

2.3.2 Le procédé industriel des trois massecuites.

La production de sucre s'effectue en différentes étapes de cristallisation consécutives à partir du sirop issu de l'atelier d'évaporation. En effet, lorsque la teneur en cristaux d'une massecuite devient supérieure à 50%, l'augmentation de la viscosité du milieu entrave le phénomène de diffusion des molécules de saccharose vers les cristaux. La cristallisation fractionnée consiste à centrifuger la massecuite devenue trop visqueuse pour séparer les cristaux de la liqueur mère. La liqueur mère dont la concentration en saccharose est encore élevée, est épuisée lors des étapes suivantes. Elle est ainsi utilisée comme égout d'alimentation au cours de la phase de croissance de l'étape suivante. Lorsque ces étapes sont répétées trois fois, il est dit « procédé des trois massecuites ».

C'est une configuration classique et fréquemment utilisée dans le domaine sucrier, [Hugot, 1950 et 1987].

Le procédé des trois massecuites comprend trois cycles complets de cristallisation. Chaque cycle commence avec la formation des cristaux dans la solution sucrée, et se termine par la séparation des phases solide et liquide. Chaque cycle se déroule en trois étapes :

- la cristallisation du saccharose à l'état liquide dans la solution par le procédé de cristallisation ;
- le malaxage qui permet d'épuiser au maximum la liqueur mère par la mise en pratique du procédé de cristallisation par refroidissement ;
- et le turbinage, ou centrifugation, qui est l'étape de séparation des cristaux contenus dans la massecuite.

Les liqueurs mères successives s'appauvrissent en saccharose dissous.

On nomme les trois cycles de cristallisation A, B et C ou encore premier, deuxième et troisième jet.

A l'usine de Bois Rouge, le procédé global de cristallisation suit le principe des 3 massecuites. Notre étude est centrée sur la cristallisation C ou cristallisation de troisième jet, que nous décrivons en détail dans les sections suivantes.

2.4 Le procédé de cristallisation C de l'usine de Bois Rouge

Le procédé de cristallisation C est l'ultime étape qui permet de cristalliser les molécules de saccharose encore présentes dans les solutions. La figure suivante (**figure 2.2**) donne les caractéristiques des différentes solutions utilisées pour alimenter les cuves et les caractéristiques des solutions après cristallisation.

Tonne de Cannes par Heure = 202,13

Tonne de Cannes = 15696

Tonne de sirop = 3047,7

t/h : Tonne par heure

tMS/h : Tonne de matière sèche par heure

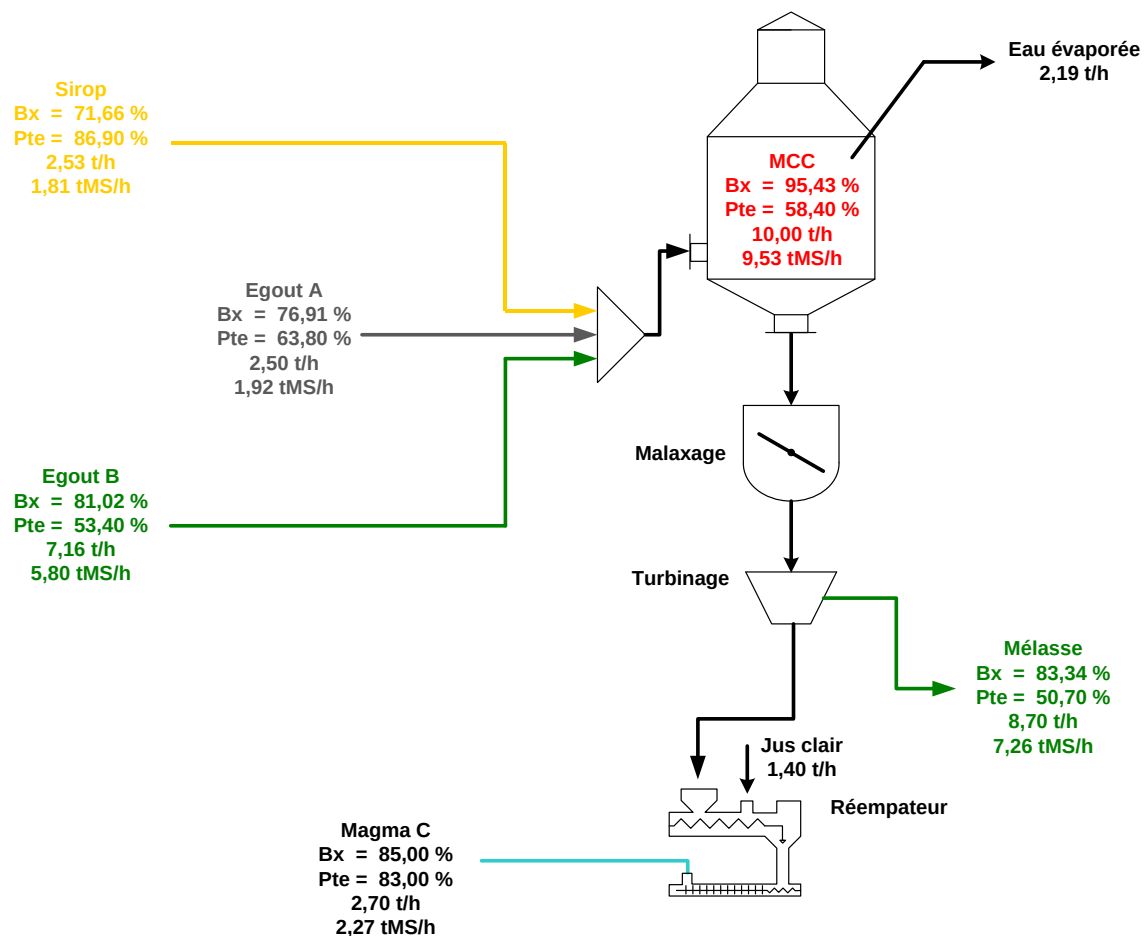


Figure 2.2 : exemple de valeurs au niveau du troisième jet à l'usine de Bois Rouge.

La cristallisation C est réalisée grâce à un mélange de LS, d'égouts A et B pour la production de sucre C et de **mélasse**. Le sucre C produit est non commercialisable. De ce fait, il est systématiquement réempâté, **magma C**.

2.4.1 La cuite et l'appareil à cuire discontinu C540

A l'usine de Bois Rouge, les cristallisations par évaporation sont réalisées sous pression réduite. Les cristallisations par refroidissement s'effectuent à pression ambiante dans des cuves demi-cylindriques ouvertes et agitées mécaniquement à l'aide de pales.

La cuite s'effectue dans des cristallisoirs qui peuvent être continus ou discontinus. La cuve C540 est la dernière cuve où sont réalisées toutes les étapes d'une cristallisation complète : Fabrication du pied de cuite à la croissance cristalline. Nous avons donc choisi d'instrumenter la cuve C540 afin d'y étudier et d'optimiser l'épuisement de la liqueur mère.

La C540 est une cuve fabriquée en acier inoxydable et constituée d'un corps cylindrique fermé par un dôme et par une base circulaire conique. Cette géométrie particulière de la base du cristallisoir facilite l'écoulement de la suspension très visqueuse qu'est la masse cuite en fin de cristallisation (cf. **figure 2.3**) :

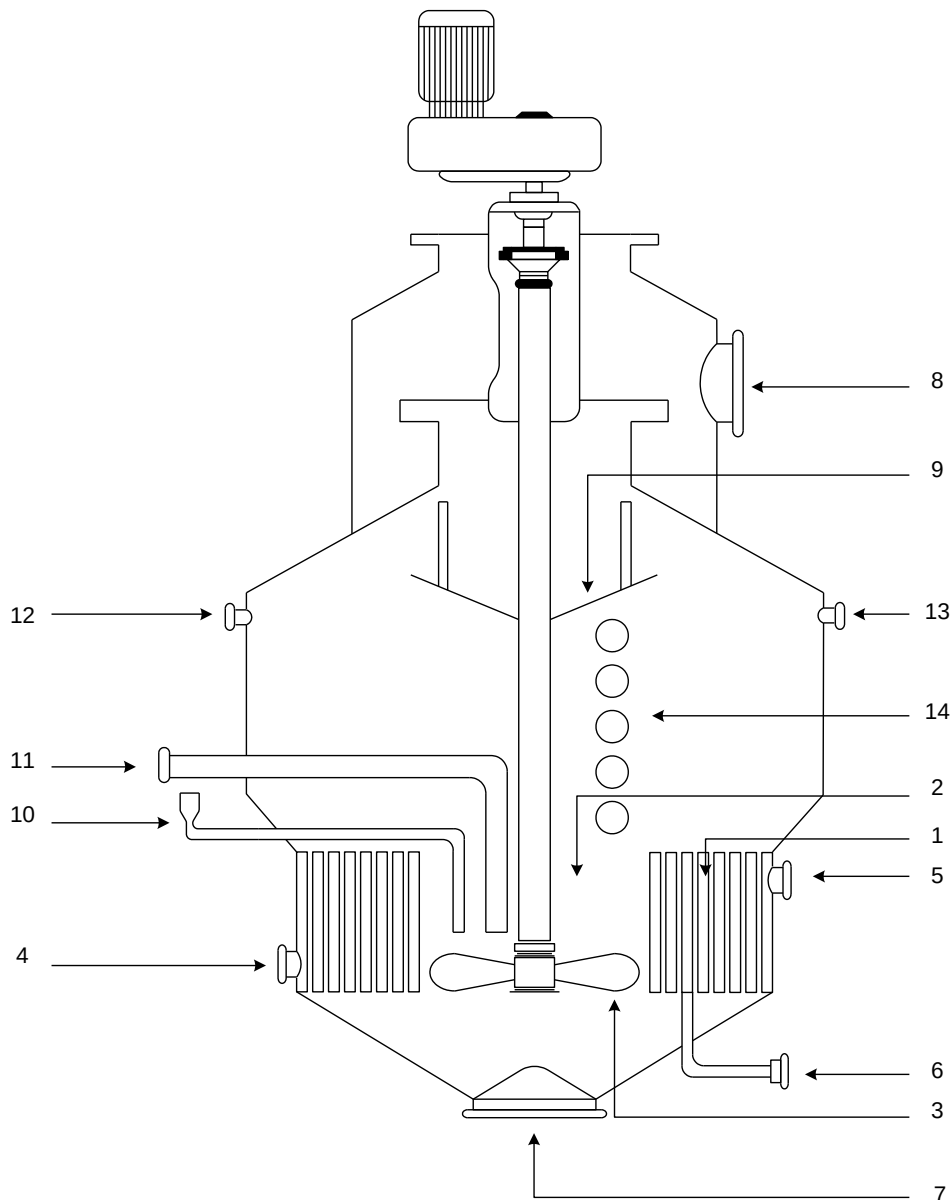


Figure 2.3 : représentation d'un cristallisateur discontinu utilisé en usine : exemple de la C540.

Le cristallisateur est doté dans sa partie basse d'un faisceau (1) qui sert à la circulation du fluide caloporteur : la vapeur basse pression. La hauteur de ce faisceau représente près d'un tiers de la hauteur totale. La calandre présente en son centre, un puits (2), qui permet la recirculation de la solution. Les pales d'un agitateur mécanique (3) sont positionnées à l'intérieur de ce puits. Une bouche d'entrée (4) du fluide caloporteur est prévue sur la paroi latérale de la calandre. Une sortie (5) est prévue pour l'évacuation des gaz incondensables. On y trouve aussi des sorties (6) qui permettent l'évacuation des eaux condensées contenues dans la calandre. La bouche d'évacuation (7) de la masse cuite en fin de cuite se situe au point le plus bas de la calandre.

Le dôme est muni d'une sortie (8) permettant l'évacuation des vapeurs d'eau émises lors de la concentration de la solution. Un désucreur (9) est placé juste au-dessous de la bouche d'évacuation des vapeurs. Cette vapeur d'eau émise lors de la cristallisation entraîne avec elle de fines particules de suspension, dont le saccharose à l'état liquide. Ce désucreur présente

une large surface métallique poreuse conçue pour permettre l'évacuation de la vapeur d'eau. Les gouttelettes d'eau contenant du saccharose à l'état liquide, s'agglutinent sur la surface du désucreur puis retombent dans la masse cuite sous l'effet du champ de gravité.

La cristallisation C par évaporation est initialisée par une solution contenant des micro cristaux de sucre, appelée semence. Cette semence est introduite dans le mélange à l'état sursaturé, par une conduite qui aboutit au puits central de la calandre, se situant juste au-dessus des pales de l'agitateur (10). De cette manière, la semence est répartie dans la solution sursaturée, d'une façon la plus homogène possible.

La croissance des cristaux de saccharose nécessite un apport de matière contenant du saccharose à l'état liquide. En cristallisation C, on utilise de l'égout A et de la liqueur standard pour réaliser les montées 1 et uniquement de l'égout B pour réaliser les montées 2. Ces égouts d'alimentation empruntent une conduite (11) qui plonge, elle aussi dans le puits central de la calandre. Là encore, l'agitation mécanique répartit les solutions d'alimentation dans la suspension. L'agitation continue de la masse cuite permet d'assurer l'homogénéité de la sursaturation de la solution, et de faire l'hypothèse que la vitesse de cristallisation est aussi homogène. Après la cristallisation, l'ouverture d'une bouche d'aération (12), placée juste en-dessous du dôme, permet le retour à la pression atmosphérique.

Des arrivées de vapeur (13) sont disposées dans le haut du corps cylindrique de la cuve. On utilise de la vapeur sous pression pour le rinçage du dispositif entre deux cristallisations. Des hublots de verre (14) disposés sur la surface latérale du corps cylindrique, permettent aux cuiseurs d'observer l'intérieur de l'appareil et de voir l'aspect et le niveau de la masse cuite lors de la cristallisation.

2.4.2 Les différentes phases d'une cristallisation sur la C540.

Succinctement, une opération complète de cristallisation sur la C540 s'effectue généralement de la façon suivante : on introduit une certaine quantité d'égout A et de liqueur standard (phase 4) dans le cristalliseur, le mélange est concentré par évaporation d'eau jusqu'à atteindre une valeur de conductivité¹ de 32 % (valeur d'usine). Lorsque la conductivité électrique de la solution atteint cette valeur, on considère qu'elle se trouve dans un état de sursaturation favorable à l'ensemencement (point de grainage). Il y a donc ensemencement de la solution. Lorsque les cristaux dans la solution grossissent, la sursaturation du milieu diminue. Pour pallier cette diminution, le cristalliseur est alimenté en égout A ou égout B (montée 1). L'apport de matière conjugué à l'évaporation permet de maintenir la sursaturation de la solution. La sursaturation est un paramètre important, son instabilité peut générer des effets néfastes :

- apparition spontanée de cristaux pour une sursaturation trop élevée ;

¹ A l'usine de Bois Rouge la conductivité électrique de la solution est donnée en pourcentage, et elle représente une valeur relative comprise entre 0% et 100%.

- dissolution des cristaux pour une sursaturation trop faible.

La montée 1 (phase 13) se poursuit jusqu'à un remplissage à 90% à 95% de la cuve. Cette phase terminée, on vide à moitié la cuve C540, pour effectuer une autre montée : la montée 2. Cette nouvelle montée est utilisée pour faire croître encore plus les cristaux. Généralement, les temps de cuisson sont comparables pour les montées 1 et les montées 2 (à peu près 120 – 130 minutes).

A l'usine de Bois Rouge, le cycle complet d'une cristallisation C discontinue s'effectue en sept étapes au cours desquelles le contrôle de la cristallisation s'opère par le suivi d'un profil de conductivité (cf. **figure 2.4**). Comme la sursaturation des solutions techniques des usines sucrières, n'est pas une grandeur physique mesurable en temps réel, alors on travaille généralement avec d'autres grandeurs, données comme image de cette sursaturation dans le milieu. A l'usine de Bois Rouge comme dans la plupart des usines sucrières, on utilise la mesure de la conductivité électrique de la solution comme étant l'image de la sursaturation du milieu.

Pour garder une certaine cohérence de présentation, nous avons numéroté les phases comme sur le site industriel.

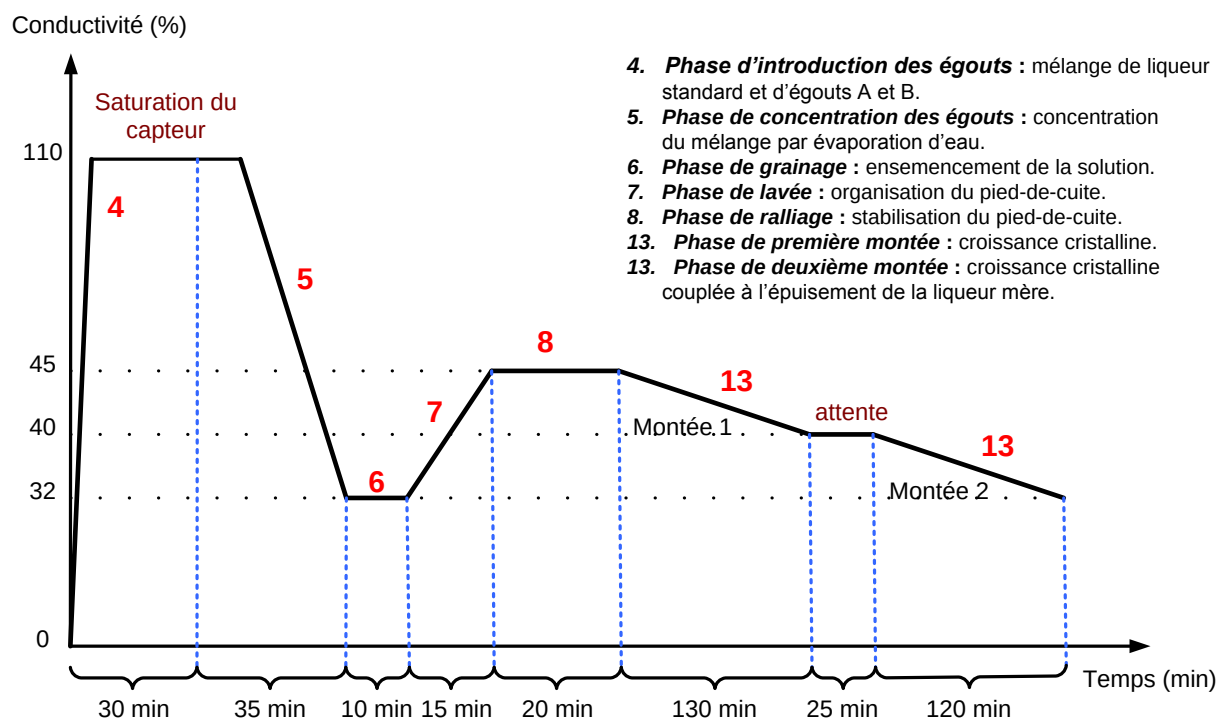


Figure 2.4 : profil de conductivité pour les conduites des cristallisations C discontinues dans le cristalliseur C540.

Le profil de conductivité définit une fonction continue linéaire par morceaux. Chaque morceau du profil de conductivité est identifié par un numéro correspondant à l'une des étapes de la cristallisation.

Ces différentes phases seront détaillées dans les sections suivantes. Des informations concernant la conduite de ces phases sont données dans [Bonnecaze, 2004].

2.4.2.1 Introduction de la solution initiale.

Le cycle d'une cristallisation discontinue commence toujours par l'introduction de la solution initiale.

Théoriquement, le volume introduit dans la cuve doit recouvrir le faisceau de tubes de la calandre pour éviter les problèmes de caramélisation. A l'usine de Bois Rouge, le volume est fixé à 230 hL, ce qui représente un niveau dans la cuve d'environ 43% (volume total de 540 hL).

Le mélange initial est composé de liqueur standard additionnée d'égout A. Les proportions de ce mélange sont déterminées :

- en fonction de la richesse des solutions de départ ;
- de l'objectif défini par l'industriel pour l'opération de cristallisation.

La même démarche est appliquée au début de chaque cycle. Les calculs sont réalisés sur la base des puretés et des Brix des produits initiaux, dans l'objectif d'atteindre une pureté au moment du grainage entre 74% et 76% (de l'ordre de 75%) (cf. **figure 2.5**). Le **tableau 2.1** donne l'exemple d'un cas réel de valeurs de Brix et de puretés pour la préparation d'un mélange de liqueur standard et d'égout A.

Produits	Brix (%)	Pureté (%)	Volume (hL)
Egout A (EA)	74,34	73,01	126
Liqueur standard (LS)	68,40	77,39	104

Tableau 2.1 : exemple de données expérimentales.

Il est à noter que toute la démarche précédente concernant la proportion volumétrique du mélange dépend essentiellement des caractéristiques de l'égout A. En effet, trois cas de figure sont à envisager :

- si la pureté de l'égout A ($P_{te_{EA}}$) est supérieure à 76%, on mélange donc de l'égout A à de l'égout B dont la pureté ($P_{te_{EB}}$) est plus faible que $P_{te_{EA}}$;
- si la pureté de l'égout A est comprise dans l'intervalle 74% - 76%, on ne fait pas de mélange, on n'introduit dans la cuve que de l'égout A ;
- si la pureté de l'égout A est inférieure à 74%, on mélange alors l'égout A à de la liqueur standard (cf. **tableau 2.1**), dont la pureté ($P_{te_{LS}}$) est plus élevée que $P_{te_{EA}}$.

Ces trois configurations sont représentées de façon synthétique sur la **figure 2.5** suivante :

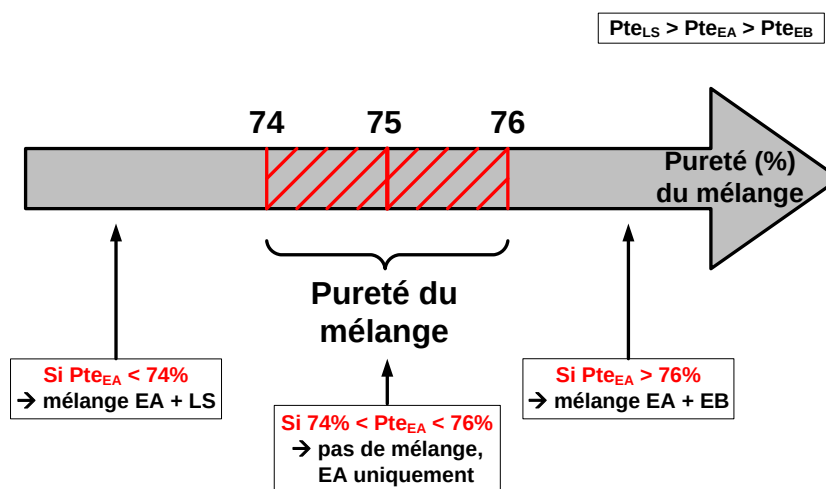


Figure 2.5 : modification du mélange initial en fonction de la pureté de l'égout A.

Cette phase d'introduction de la solution initiale s'effectue en une trentaine de minutes environ.

2.4.2.2 Concentration du mélange.

La concentration de la solution s'effectue par évaporation isothermique. Cette phase de concentration est nécessaire à l'obtention de la valeur de la sursaturation favorable à la nucléation cristalline par ensemencement. La concentration de la solution sous une pression réduite constante nécessite un apport d'énergie. Le fluide caloporteur est de la vapeur d'eau basse pression (de l'ordre de 1,10 bars), introduite au travers d'une vanne régulée dans le faisceau tubulaire de la calandre. La valeur de la pression réduite à l'intérieur du cristalliseur conditionne la température d'ébullition. A Bois Rouge, la pression réduite est maintenue constante au cours du cycle complet de la cristallisation C (environ -0,867 bar).

La concentration de la solution débute lorsque la température d'ébullition est atteinte. On la poursuit jusqu'à ce que la conductivité atteigne 32%, **figure 2.4**. La vapeur d'eau émise par la solution en ébullition est aspirée par l'action de la pression réduite. Elle se condense le long du conduit qui relie le cristalliseur au réceptacle à eaux condensées. A mesure que la concentration croît, la solution sucrée passe d'un état sous saturé à un état sursaturé.

Il est important de souligner, qu'à l'usine de Bois Rouge, le cuiseur ouvre la vanne de vapeur dès que le niveau dans la cuve C540 atteint les 25% à 30%. Cela implique que le début de la phase de concentration, commence bien avant que l'égout A ne soit entièrement introduit dans le cristalliseur. En effet, le cuiseur commence la phase de concentration avant que le niveau dans la cuve ne soit trop élevé afin d'éviter le phénomène d'aspiration. Ce phénomène est lié à la création de mousse dans la cuve qui sera ensuite aspirée dans la conduite d'évacuation de

la vapeur émise par la solution, **figure 2.3**. Cette mousse entraînera donc avec elle, la solution sucrée contenue dans le cristalliseur.

Cette phase de concentration du mélange dans le cristalliseur s'effectue en moyenne en trente cinq minutes.

2.4.2.3 Grainage.

C'est la phase la plus délicate du cycle de la cristallisation C, car elle génère la population initiale des microcristaux. La masse totale de cristaux produits en fin de cristallisation C dépend de la qualité de cette population initiale.

D'une cuite à l'autre, la phase de grainage se fait toujours à une même valeur de conductivité (32%). L'ensemencement ou le grainage du mélange consiste à introduire une quantité de semence dans la solution sucrée sursaturée. Le point d'ensemencement de la solution en état de sursaturation est indiqué en phase 6 par le profil de conductivité, **figure 2.4**. Il s'agit de la phase la plus rapide du cycle de cristallisation C, elle ne dure qu'une dizaine de minutes. Pendant ces quelques minutes les microcristaux de saccharose sont dispersés dans la solution de façon mécanique par agitation. Cette dispersion des microcristaux permet une homogénéisation et une répartition spatiale identique des particules de saccharose en tout point de la solution.

La semence est un mélange de sucre blanc finement broyé et d'alcool isopropylique. Le saccharose, non soluble dans cet alcool, est ainsi à l'abri des dissolutions partielles qui favorisent la formation d'agglomérats. La présence d'agglomérats dans une semence comme dans une masse cuite est préjudiciable à la qualité finale des cristaux et à la production maximale de cristaux. Les agglomérats en interaction avec les cristaux, les parois du cristalliseur et les pales de l'agitateur sont sujets aux brisures. Leur présence dans la solution favorise l'apparition de micro cristaux (les fines) dans la masse cuite qui passent au travers des mailles du tamis des centrifugeuses et tendent à augmenter la pureté de la mélasse (diminution du rendement).

La quantité de semence utilisée pour la fabrication d'un pied-de-cuite C est d'environ 4,2 kg² pour le cristalliseur C540 (540 hL). La taille des cristaux introduits dans la solution est de l'ordre de 20 micromètres. Cette quantité, supposée optimale, a été déterminée selon une méthode essai-erreur consistant à comparer la teneur en cristaux après la cristallisation de plusieurs masses cuites ensemencées par différents volumes de semence [**Bonnecaze, 2004**].

² On prend 8 L d'un mélange initial d'alcool isopropylique (8 L) + cristaux de sucre (4 L) broyé pendant environ 5h00.

2.4.2.4 Lavée.

Cette phase, qui sert à l'organisation du pied-de-cuite, doit permettre la dissolution des germes cristallins les plus petits au profit des plus gros. Elle consiste à ajouter dans la solution en état métastable de sursaturation un volume d'eau suffisant (environ 2 m³) pour diminuer notablement la viscosité de la solution et à augmenter sa conductivité de 32% à 45%. La quantité d'eau ajoutée est déterminée par le profil de conductivité en phase 7. L'eau parvient dans la suspension au moyen d'une vanne proportionnelle régulée. Cette opération de lavée ne dure qu'une quinzaine de minutes.

2.4.2.5 Ralliage.

La phase de ralliage consiste à stabiliser la sursaturation de la solution en zone métastable, ce qui correspond à stabiliser sa conductivité autour de 45%, pour amorcer le développement des microcristaux. L'effet de l'évaporation sur la valeur de la sursaturation est contrebalancé par l'apport régulier d'eau. Pour cette valeur de la conductivité (45%), la viscosité du pied-de-cuite est supposée favoriser le mécanisme de transfert de soluté vers les surfaces cristallines des microcristaux. La phase de ralliage dure environ une vingtaine de minutes.

2.4.2.6 Les deux phases de Montée.

La phase de montée permet la croissance des microcristaux dans la solution. Une croissance cristalline optimale nécessite une sursaturation de valeur constante en zone métastable. L'évaporation se poursuit en provoquant une augmentation de la sursaturation qui doit être compensée par l'apport de solution sous-saturée de saccharose. L'introduction de cette solution s'effectue par une vanne proportionnelle régulée. Le produit d'alimentation, (liqueur standard, égout A ou égout B, **figure 2.7**), est introduit de telle sorte que, d'une part, la conductivité suive le profil établi en phase 6, et que d'autre part le niveau de la massecuite croisse linéairement.

La première montée (montée 1) se termine lorsque le volume de massecuite a atteint 93% du volume totale. Ce volume de massecuite est divisé en deux : massecuite 1 et massecuite 2. La massecuite 1 est coulée dans un malaxeur sous vide. Une deuxième phase de croissance cristalline (montée 2) est réalisée à partir de la massecuite 2. Cette deuxième montée s'achève lorsque le niveau de massecuite atteint sa valeur maximale dans la cuve. Le pied-de-cuite issu de la montée 2, divisé aussi en deux, est transféré dans deux autres cuves, ERES et MAGUIN, où se poursuivent la croissance cristalline et l'épuisement de la liqueur mère (cf. **figure 2.4** et **2.9**). Une nouvelle phase de montée 2 est réalisée à partir de la massecuite 1, suivant le même protocole que celui utilisé pour le premier pied-de-cuite. A Bois Rouge, une seule montée 1 issue de la cuve C540 permet de réaliser quatre montées dans les cuves ERES et MAGUIN. Les cuiseurs utilisent les termes « **faire un grainage, pour quatre pieds-de-cuite** », c'est-à-

dire que le grainage se fait dans la C540 et les pieds-de-cuite dans ERES et MAGUIN (cf. *figure 2.6*).

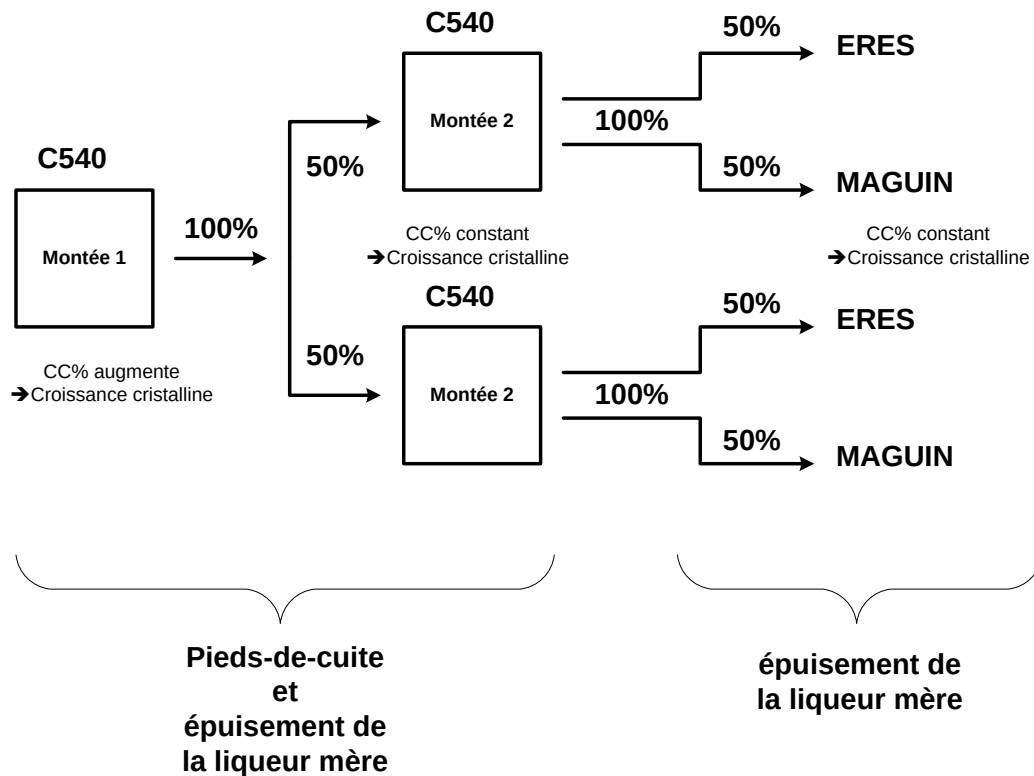


Figure 2.6 : différentes phases de montées.

Il est à noter que la montée 1 s'effectue de façon particulière. Pour choisir la nature de la solution d'alimentation à introduire, le cuiseur vérifie systématiquement la valeur de la pureté de l'égout A. En fonction de la valeur de cette pureté, trois cas de figures se présentent :

- si la pureté de l'égout A est supérieure à 72%, la première partie de la montée 1, environ 80% du niveau dans la cuve, se fera avec de l'égout A, et les 10% - 15% du niveau restant se feront avec de l'égout B ;
- si cette pureté est comprise entre 70% - 72%, la montée 1 ne se fait qu'avec un ajout d'égout A tout au long de la cuite ;
- si la pureté de l'égout A est inférieure à 70%, la première partie de la montée 1, toujours environ 80% du niveau dans la cuve, se fait avec de la liqueur standard, et les 10% - 15 % du niveau restant se font avec de l'égout A.

Ces trois configurations sont représentées de façon synthétique à la ***figure 2.7*** :

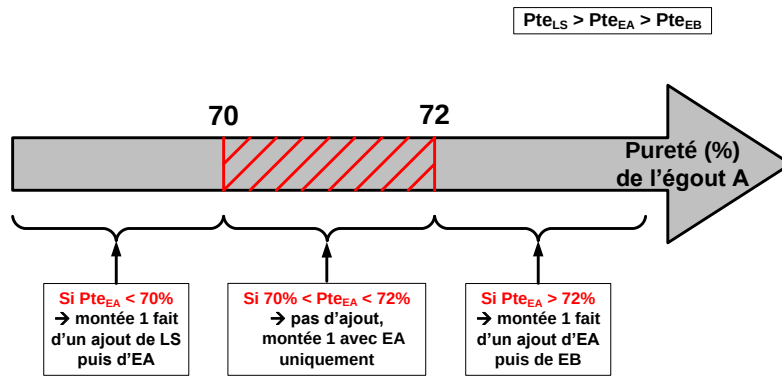


Figure 2.7 : modification d'ajout de matière première en fonction de la pureté de l'égout A.

Pour les montées 2, l'alimentation de la cuve se fait toujours avec de l'égout B.

Toute la difficulté de la maîtrise de la croissance cristalline consiste à maintenir une sursaturation constante à l'aide d'une mesure de la conductivité électrique de la solution. Cependant, cette conductivité dépend de plusieurs facteurs. La présence, dans les solutions sucrées, de constituants cationiques ou métalliques (K^+ , Na^+ et Ca^{2+}) faisant partie des non-sucres, assure la conduction du courant électrique. Dès 1938, Dubourg [Dubourg, 1938] montre que, à 20°C, la résistivité d'une solution sucrée est minimum pour un Brix compris entre 25 % et 30 %. La courbe représentant la variation de la résistivité en fonction du Brix est une parabole à concavité dirigée vers le haut. Dans notre cas, la conductivité d'une solution sucrée en fonction du Brix présente l'allure d'une parabole à concavité tournée vers le bas. Ce résultat est cohérent du fait que la conductivité est inversement proportionnelle à la résistivité de la solution sucrée.

En 1962, Ponant et Nebout [Ponant et Nebout, 1962] reprennent les études de [Dubourg, 1938], [Parker, 1958 et 1959] et [Pidoux, 1961], et montrent l'influence de la température, de la pureté, du Brix et du rapport organique³ sur la résistivité des solutions sucrées. Nous reprenons ces résultats en déclinant l'influence de la température, de la pureté et du Brix sur la conductivité des solutions [Libelle et al, 2004] :

- pour une pureté et une température données, la conductivité d'une solution sucrée ne dépend que du Brix. Cette dépendance n'est pas vérifiée à pureté élevée ;
- l'évolution de la conductivité en fonction du Brix à température constante présente toujours un maximum : $Bx_{y_{max}^T}$, situé aux environs de 30 % de Brix. Au voisinage de ce maximum de conductivité, la courbe présente un palier d'autant plus étendu que la température est élevée. Par exemple :
 - à 20°C, palier sur l'intervalle de Brix [26% ; 30%],
 - à 50°C, palier sur l'intervalle de Brix [26% ; 38%] ;

³ Le rapport organique est défini, comme la masse, en grammes de matières organiques contenus dans la solution sucrée impure par gramme de cendres.

- une petite variation de température modifie considérablement la conductivité d'une solution sucrée. La relation température conductivité n'est pas linéaire ;
- pour une température donnée, lorsque le Brix est égal à $Bx_{y_{\max}^T}$, il existe une relation entre la pureté et la conductivité d'une solution sucrée.

En 1976, lors d'études conductimétriques des solutions sucrées d'usine, Ponant et Windal [Ponant et Windal, 1976] confirment les travaux déjà effectués dans ce domaine, et apportent de nouveaux éléments pour la caractérisation de la pureté des solutions sucrées. Tout d'abord deux phénomènes antagonistes illustrés à la **figure 2.8** peuvent être mis en évidence.

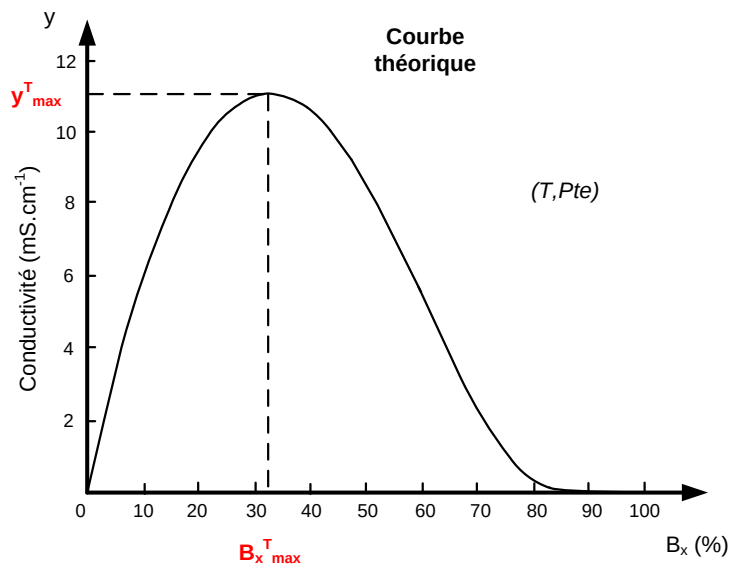


Figure 2.8 : Conductivité en fonction du Brix à température et pureté constantes.

Lorsque le Brix est inférieur à $Bx_{y_{\max}^T}$, la conductivité croît avec le Brix de façon exponentielle, jusqu'à une valeur maximale. Ce phénomène d'amortissement s'explique par une diminution de la dissociation des molécules en ions dans la solution [Ponant et Windal, 1976]. Cette dissociation ne sera totale que pour une solution infiniment diluée, ce qui n'est pas le cas pour des solutions sucrées industrielles. Par ailleurs, lorsque le Brix est supérieur à $Bx_{y_{\max}^T}$, la viscosité de la solution augmente, réduisant la mobilité des ions, et par conséquent la conductivité. En effet, la conductivité d'un milieu conducteur dépend de la vitesse de déplacement des charges électriques dans le système, laquelle est directement liée à sa viscosité.

L'application d'un champ électrique E dans la solution engendre un mouvement ordonné des ions. Chaque ion est soumis à une force $\pm z_i \cdot eE$ qui tend à l'accélérer dans le sens du champ électrique ou en sens contraire, selon le signe de l'ion ($\pm z_i$ est la valence de l'ion et e la charge électrique élémentaire). En raison des forces de frottement visqueux qui augmentent avec la vitesse, celle-ci atteint rapidement la valeur limite V_i . En assimilant les ions à des sphères de rayon r se déplaçant avec une vitesse V dans un milieu de viscosité η , et admettant que la

force de frottement qui s'exerce sur ces sphères est égale à $6\pi r\eta V$ (loi de Stokes), la vitesse limite V_i est atteinte lorsque la force de frottement visqueux s'équilibre avec la force d'entraînement, soit :

$$V_i = \frac{\pm z_i \cdot e}{6 \cdot \pi \cdot r_i \cdot \eta} E \quad (2.20)$$

Cette équation montre que la conductivité d'une solution est directement liée à sa viscosité. Pour une solution très visqueuse, la vitesse limite V_i tend vers 0 ($V_i \rightarrow 0$) et la valeur de la conductivité diminue.

2.4.2.7 Etape finale de la cristallisation C à la sucrerie de Bois Rouge.

Le cycle discontinu de la cristallisation C s'achève par une étape d'épuisement de la liqueur mère en saccharose à l'état liquide. Les cristaux obtenus après l'étape de croissance cristalline profitent des molécules de saccharose dissous pour continuer et achever leur croissance. Le maintien de la sursaturation dans la solution requiert une évaporation continue dans le cristalliseur. La dernière étape d'épuisement de la liqueur mère en saccharose est réalisée dans les cristalliseurs ERES et MAGUIN. Pendant cette phase, dans le meilleur des cas, s'il n'y a pas de refonte des cristaux, la teneur en cristaux reste constante dans les deux cristalliseurs **figure 2.9**.

L'objectif final de la cristallisation C est d'obtenir un rendement en sucre cristallisé le plus haut que possible. On diminue ainsi la pureté de la mélasse qui est le résidu de la chaîne de fabrication. Généralement, l'objectif à atteindre est une valeur de pureté de la mélasse d'environ 35%.

Pour toutes ces raisons l'efficacité de la cuite C influence directement le rendement de la sucrerie.

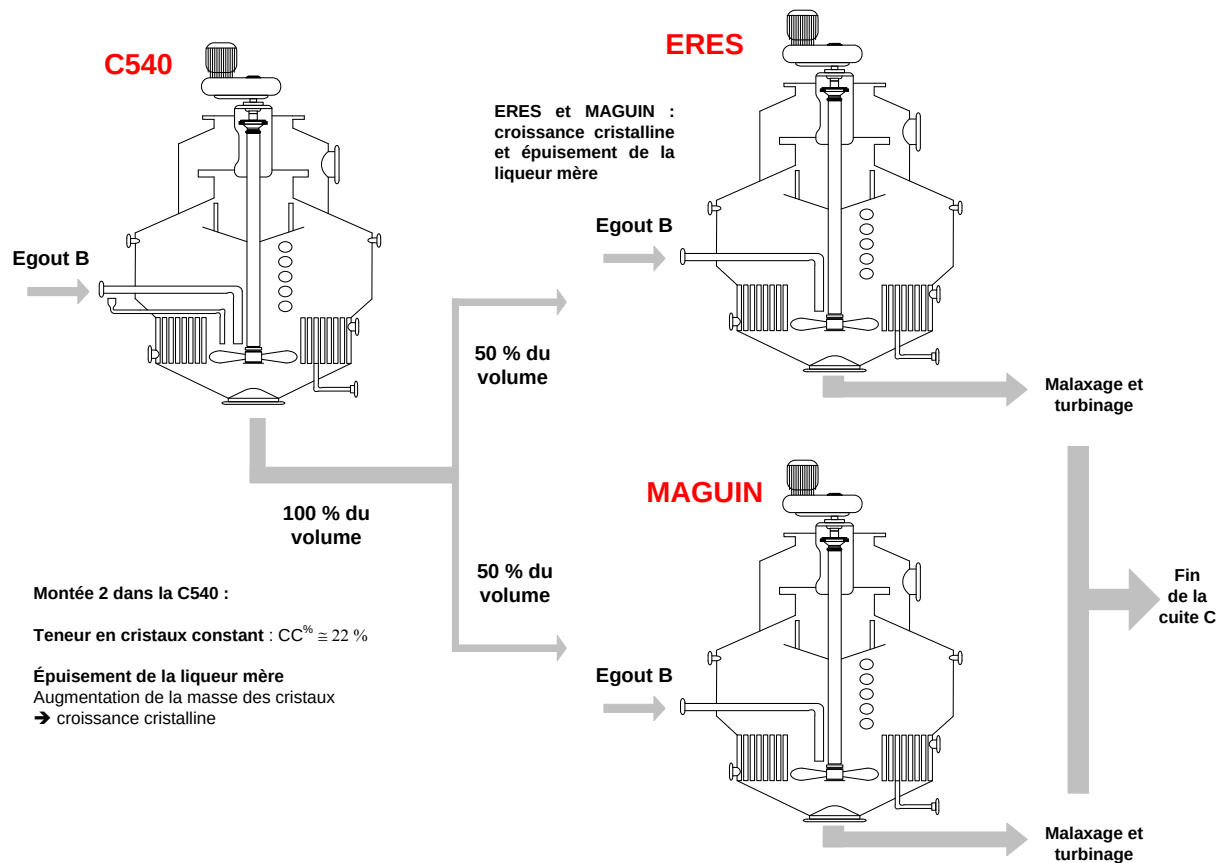


Figure : 2.9 : interaction entre les cristallisoirs C540, ERES et MAGUIN.

2.4.3 Environnement expérimental : les capteurs.

2.4.3.1 Caractéristiques techniques du cristallisoir C540.

Les caractéristiques techniques du cristallisoir sont répertoriées dans le **tableau 2.2** suivant (plan donné en **annexe 3**) :

Capacité de la cuve	540 HL
Hauteur	7,755 m
Diamètre partie basse (faisceau)	4,3 m
Diamètre partie haute (calandre)	5,3 m
Faisceau :	
Surface de chauffe	350 m ²
Nombre de tubes	832
Diamètre d'un tube	101,6 mm
Epaisseur d'un tube	3,6 mm
Hauteur d'un tube	1,4 m

Tableau 2.2 : caractéristiques techniques du cristallisoir C540.

2.4.3.2 Les capteurs installés.

Le but de cette section est de présenter brièvement les capteurs installés au niveau du cristalliseur C540 à l'usine de Bois Rouge. Les technologies utilisées par ces capteurs seront décrites de façon succincte. Ces descriptions sont nécessaires pour avoir une meilleure compréhension de l'utilisation de ces capteurs, [Fraden, 1997] et [Asch, 1999]. Pour de plus amples renseignements, on peut se référer aux documentations techniques des constructeurs [K-Patents, 2006], [Bailey et al, 1996], [UR 20, Maselli Misure].

2.4.3.2.1 Positionnement des capteurs sur la C540.

Sur la **figure 2.10**, on peut voir la disposition spatiale des capteurs que nous avons installés sur la cuite C540 dans l'objectif de mieux comprendre les différents mécanismes mis en jeu lors de la cristallisation. Les mesures effectuées en ligne sur le site seront aussi utilisées sous forme de bases de données afin d'estimer les paramètres des différents modèles que nous allons identifier. Le modèle de cette cuite discontinue est détaillé au **chapitre 3**.

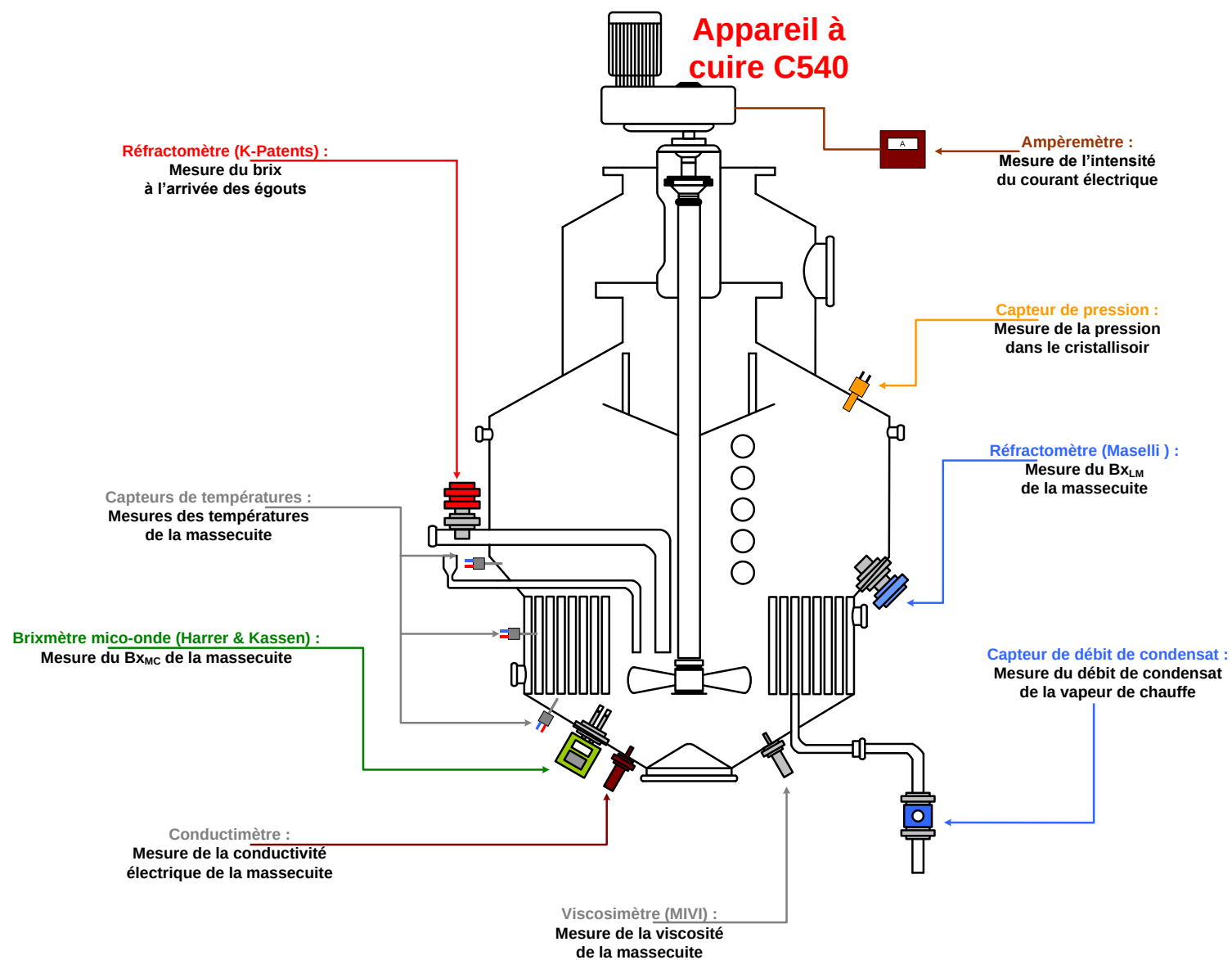


Figure 2.10 : Capteurs installés sur le cristalliseur C540.

2.4.3.2.2 Réfractomètres (mesure du Brix liqueur mère).

Le réfractomètre permet de mesurer la teneur en matières sèches dissoutes dans une solution. En sucrerie, ce capteur donne accès à une mesure en ligne du Brix de solutions de saccharose qui ne contiennent pas de cristaux de sucre (liqueur mère, égouts, etc.).

A l'usine de Bois Rouge, nous avons installé deux réfractomètres en ligne : le premier [K-Patents, 2006] est placé sur l'arrivée du fluide d'alimentation de la cuite (égout A, égout B ou liqueur standard) ; le second [UR 20, Maselli Misure], placé dans le cristalliseur juste au dessus des faisceaux, donne accès au Brix de la liqueur mère de la solution. Ces deux capteurs sont représentés à la **figure 2.10**. Le principe de fonctionnement des réfractomètres est résumé en **annexe 4**.

2.4.3.2.3 Densimètre micro-onde (mesure du Brix masse cuite).

Le densimètre micro-onde permet de mesurer la teneur en matières sèches ajoutées à la teneur en particules solides d'une solution. En sucrerie, cet appareil donne accès à une mesure en ligne du Brix de la masse cuite (cristaux de sucre et matière sèche en suspension). En 2002, nous avons installé un densimètre micro-ondes au pied de la cuve C540 [Pro M tec HK2, Harrer & Kassen], **figure 2.10**. Le principe de fonctionnement du densimètre micro-onde est résumé en **annexe 4**.

2.4.3.2.4 Viscosimètre.

A Bois Rouge, la viscosité de la masse cuite C est mesurée en ligne par un viscosimètre installé en 2005 [MIVI 7000, Sofraser]. Cette grandeur physique est très importante au même titre que la conductivité du milieu. En effet, ces deux grandeurs sont corrélées :

$$y \cdot \eta^n = C \quad (2.21)$$

avec y : la conductivité du milieu.
 η : la viscosité du milieu.
 n et C : constantes.

Le principe de fonctionnement du viscosimètre est résumé en **annexe 4**.

2.4.3.2.5 Erreurs de mesures sur les données capteurs.

Nous verrons plus loin, notamment lors de la mise en œuvre d'une stratégie d'identification de la cinétique de croissance des cristaux de saccharose adaptée au milieu industriel, qu'il est

important de connaître la précision des mesures utilisées. Nous avons résumé ces informations dans le **tableau 2.3** :

Capteur	Précision (usine)
Densimètre HK2 Harrer & Kassen	$\pm 0,1\%$
Réfractomètre PR-01 S K-Patents	$\pm 0,2\%$
Réfractomètre UR 20 Maselli Misure	$\pm 0,2\%$
Viscosimètre MIVI 7000 Sofraser	$\pm 0,5\%$
Capteur de niveau de la masse cuite	$\pm 0,2\%$
Capteurs de températures	$\pm 0,2\%$

Tableau 2.3 : précisions des capteurs du cristalliseur C540.

Les mesures réalisées par ces différents capteurs (Brix de la masse cuite, Brix de la liqueur mère, mesure de niveau et viscosité), sont toutes compensées en températures.

2.4.3.3 Chaîne d'acquisition des mesures en ligne.

Toutes les grandeurs physiques délivrées par les capteurs instrumentant les divers procédés de l'usine de Bois Rouge, sont collectées et gérées par un système de conduite et de supervision (S.C.S), le MODUMAT 8000 de Elsag Bailey. Parmi ces grandeurs physiques, celles relatives à la cristallisation C sont centralisées par une interface connectée au S.C.S, le système I-MEDIA⁴, développé au sein du laboratoire [Benne et al, 1998], [Lorion et al, 2001]. Le S.C.S et le système d'acquisition sont présentés dans les deux sections suivantes.

2.4.3.3.1 Le S.C.S.

Le système de conduite et de supervision (S.C.S) est une station informatisée dont l'organisation modulaire et évolutive permet un traitement réparti de l'ensemble des opérations effectuées dans l'usine. Ce système numérique permet l'échange des grandeurs physiques mesurées par les capteurs entre des automates programmables industriels (A.P.I), et les organes actionneurs des dispositifs de régulation.

La S.C.S est dotée d'une interface graphique homme-procédé qui permet des actions simultanées de conduite et de supervision, dans un environnement interactif et ergonomique.

Les outils développés dans l'objectif de la conduite assurent l'accès instantané aux informations à toutes les étapes du procédé, et la rapidité d'exécution des actions de contrôle-commande, par le biais d'une interface graphique qui donne accès à :

- un suivi historique des grandeurs physiques et des événements et un archivage des données ;

⁴ Interface under Multitask Environment for Digital Industrial Applications

- des synoptiques interactifs pour l'observation et la configuration en ligne des procédés ;
- et un traitement hiérarchique et rapide des alarmes pour la prévision et la gestion des incidents.

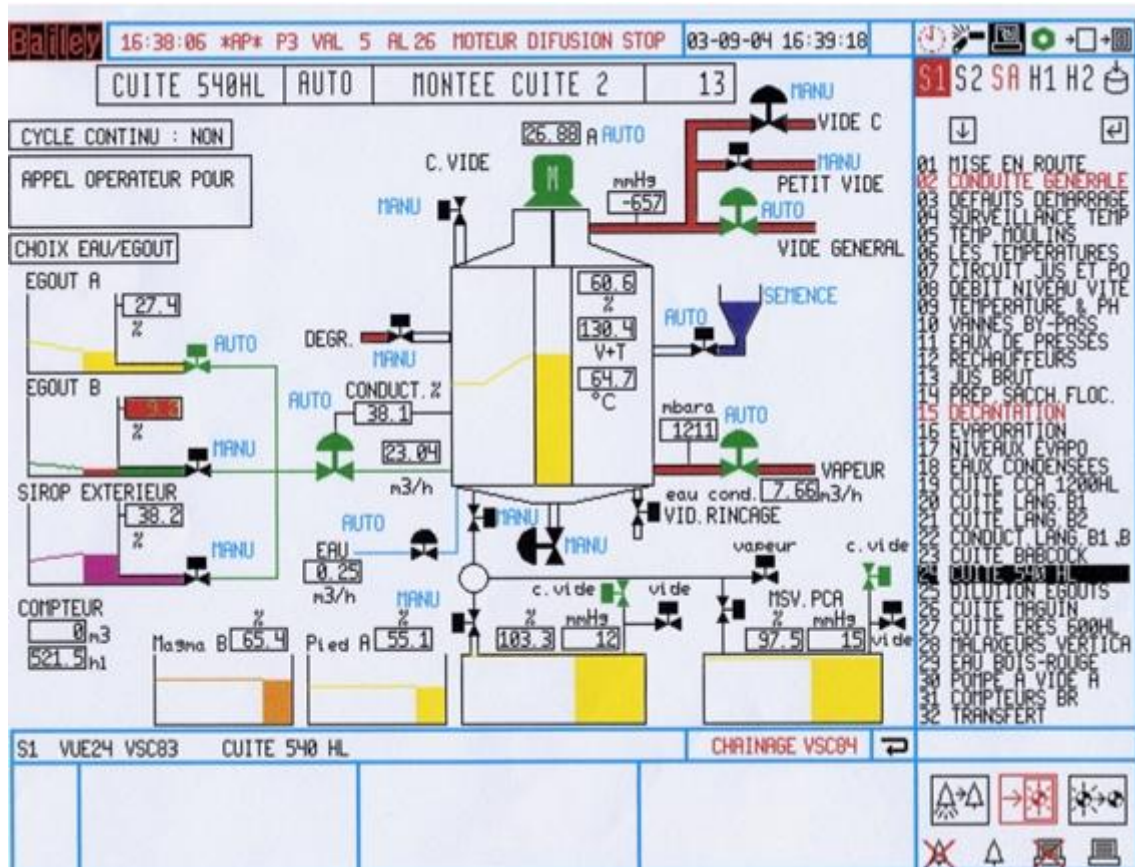


Figure 2.11 : exemple de synoptique de contrôle du cristalliseur C540 par le S.C.S.

L'ensemble des opérations d'acquisition et de régulation sont traitées par des A.P.I autonomes (les ACTIMAT). Leur association en grappe de 1 à 32 unités constitue des ensembles multiprocesseurs adaptés au traitement réparti de centaines de variables à haut débit de transmission (jusqu'à 10 000 variables en 250 ms). Dans une grappe, la liaison inter-équipement est assurée par des coupleurs d'automates programmables (C.A.P), et chaque grappe est connectée au réseau par l'intermédiaire d'un serveur.

La définition des propriétés entre les serveurs est assurée par un équipement maître, un calculateur de type P.C fonctionnant sous le système d'exploitation multitâche temps réel CONCURRENT – DOS®.

La distribution des flux d'information s'organise autour de deux réseaux de communication : le bus MEDIAMAT P pour la communication entre les A.P.I, et le bus MEDIAMAT S pour la communication des grappes avec les équipements maîtres (**figure 2.12**).

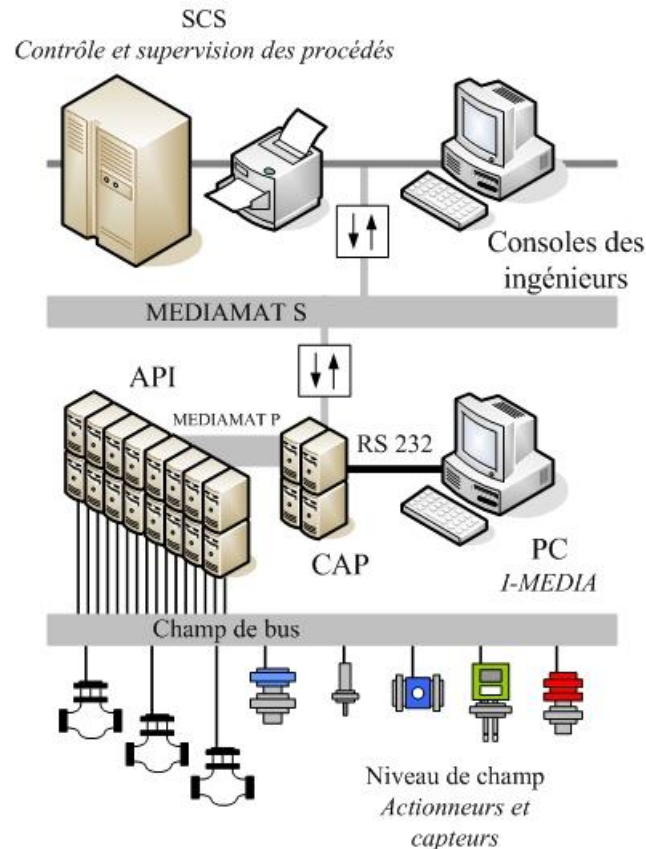


Figure 2.12 : schéma synoptique du MODUMAT 8000[®] S.C.S.

Les fonctions de supervision, essentielles pour l'optimisation des procédés (journaux de bord, calculs de bilans, etc.), sont réalisées à partir :

- des calculateurs d'application dédiés à des tâches précises ;
- des logiciels de traitement de bases de données, et des interfaces de développement graphiques ;
- des interfaces standard pour la communication avec des équipements du réseau interne ou des systèmes externes (protocoles Modbus – Jbus[®], Ethernet).

Cette dernière spécificité a permis le développement d'une interface de communication avec les réseaux MEDIAMAT pour l'acquisition des informations relatives aux procédés étudiés au **LE²P**⁵.

2.4.3.3.2 Le système I-MEDIA.

I-MEDIA est une interface entre le système industriel d'acquisition de données et les environnements de simulation de type MatLab – SciLab. Tel qu'il a été conçu et développé par les membres du **LE²P**, ce programme de type client-serveur répond à la fois à la volonté et à la nécessité industrielles de développer des capteurs logiciels, en proposant :

⁵ Laboratoire d'Energétique, d'Electronique et Procédés.

- L'acquisition de données expérimentales,
- Le développement de modèles de simulation,
- L'analyse de données en ligne.

Les outils de communication dynamique (via les canaux D.D.E⁶ disponibles sous l'environnement de développement Delphi® Borland) assurent l'échange des informations en temps réel. Le système d'exploitation multitâche autorise le fonctionnement simultané de plusieurs clients (**figure 2.13**).

L'interface est en fonctionnement dans la sucrerie de Bois Rouge depuis la campagne sucrière 1998, suivant une structure deux clients et un serveur :

- l'un des clients centralise l'ensemble des données relatives au procédé d'évaporation de l'usine de Bois Rouge,
- l'autre réalise la collecte de l'ensemble des données relatives au procédé de cristallisation réalisé dans le cristalliseur C540.

Les clients et le serveur sont implantés sur un P.C fonctionnant sous le système d'exploitation multitâche Windows 2000 Serveur. I-MEDIA communique avec un C.A.P par l'intermédiaire d'une liaison série RS-232 via le protocole Modbus – Jbus et son fonctionnement permet, toutes les 1,70 secondes environ, de traiter des données centralisées par ce C.A.P. Ces données sont relatives aux procédés industriels étudiés, elles peuvent être soit archivées dans un tableau de données, soit mises à la disposition d'applications dédiées au suivi des procédés étudiés ou à l'anticipation du comportement dynamique de ceux-ci, **figure 2.12**, représentation du raccordement du système I-MEDIA au bus de données industriel par liaison série RS 232. Les tableaux de données sont constitués de variables physiques mesurées par les capteurs instrumentant les procédés à l'étude.

Le programme I-MEDIA a servi à collecter des données industrielles et à développer des modèles dynamiques du procédé d'évaporation [**Benne, 1999**] et à développer des modèles de la pureté de la liqueur mère [**Bonnecaze, 2004**] au niveau de l'atelier de cristallisation.

⁶ Dynamic Data Exchange : outils de communication dynamiques entre applications.

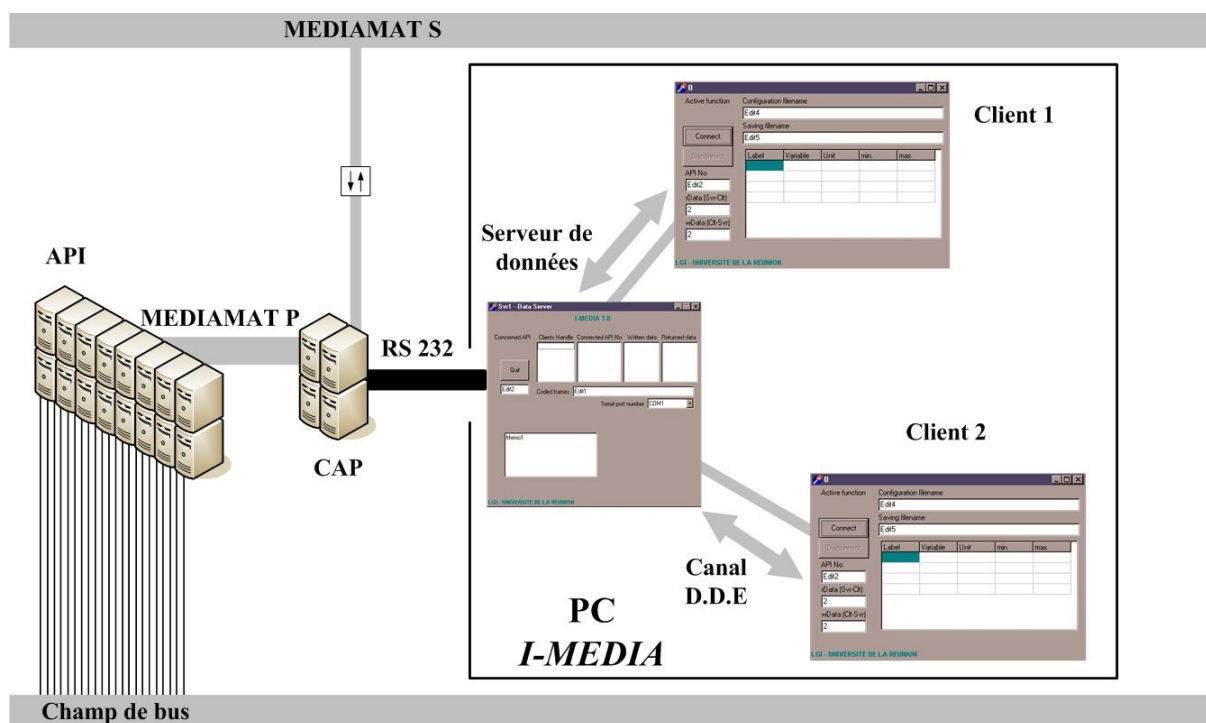


Figure 2.13 : schéma synoptique de la communication client-serveur.

2.4.4 Les données expérimentales en phase de montée

Les différents capteurs installés sur la cuve C540 ont permis l'acquisition de données mesurées en ligne.

Pour valider la construction des bases de données nécessaires à l'identification des modèles, nous avons procédé à des validations de mesures sur les différents capteurs de Brix (massecuite et liqueur mère). Le tableau suivant présente quelques résultats des études de calibration des capteurs (études faites généralement en début et mi-campagne sucrière).

Bx _{LM} (réfractomètre)		Bx _{MC} (micro onde)	
Mesures laboratoires	Mesures capteurs	Mesures laboratoires	Mesures capteurs
83,65	83,58	87,99	87,94
84,72	84,53	88,32	88,21
85,95	86,07	89,46	89,35
86,67	86,71	89,85	89,89
88,02	87,95	90,55	90,62

Tableau 2.4 : vérifications de la validité des mesures des capteurs de Brix.

Nous constatons dans l'ensemble des résultats, que nous sommes dans les moyennes de précisions données par les « constructeurs » des capteurs de Brix réfractométrique et micro onde (**tableau 2.3**).

Notons que les vérifications des Brix ont été faites lors des différentes phases de montées (1 et 2).

2.4.5 Les plages de variation des mesures expérimentales au cours d'une cuite

La mesure des grandeurs qui caractérisent l'état de la solution peut être réalisée suivant deux méthodes, et de façon complémentaire :

- la première consiste à suivre les protocoles des mesures des Brix et des puretés établis par une commission internationale : I.C.U.M.S.A⁷.
- la seconde consiste à utiliser les mesures en ligne du Brix liqueur mère et du Brix massecuite.

Les courbes suivantes : Bx_{LM} , Bx_{MC} , teneur en cristaux, volume de la massecuite, masse des cristaux, conductivité et Pte_{LM} donnent les mesures effectuées en ligne et hors ligne sur un cycle de cristallisation complet les **16 et 19 novembre 2004**.

Parmi les nombreuses bases de données que nous avons pu acquérir (une centaine), nous avons sélectionné les données les plus cohérentes.

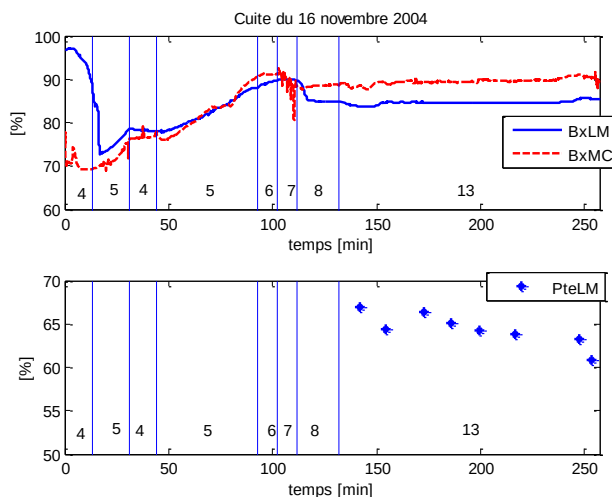
Effectuer des mesures en milieu industriel est une tâche délicate, d'autant plus que les capteurs que nous utilisons et qui fournissent des informations importantes dans le cadre du bilan de matière sont sensibles à l'encrassement. Ainsi, la mesure du Brix de la liqueur mère effectuée par réfractométrie est une mesure sensible. Rappelons que nous travaillons sur le jet C qui donne une massecuite très visqueuse. Ainsi, nous avons dû écarter de nombreuses bases de données car nous avons estimé que le Brix mesuré n'était pas correct.

Dans un deuxième temps, pour vérifier le bon fonctionnement des capteurs de nombreux prélèvements ont été réalisés sur le site, les mesures effectuées hors ligne concernent principalement les Brix liqueur mère et massecuite (**Tableau 2.4**).

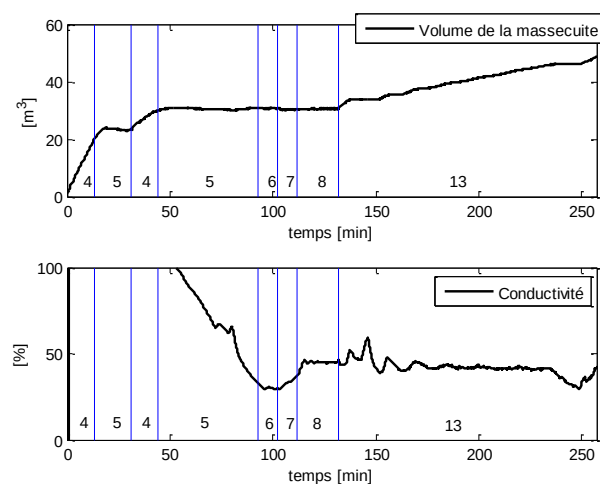
Pour vérifier la validité des mesures, nous avons essentiellement travaillé lors des phases de montée 1 et 2. Au cours de ces phases, les capteurs sont moins perturbés par les actions menées par les cuiseurs : remplissage de la cuve, grainage. Ainsi, nous pouvons observer sur les **figures 2.14** et **2.15** que les messages expérimentaux délivrés par les deux capteurs de Brix ne sont pas cohérents pendant les phases de remplissage (phases 4) et concentration (phase 5). En effet, le milieu ne contenant pas encore de cristaux, les deux mesures devraient être confondues. Plusieurs hypothèses peuvent être avancées. Lors du remplissage, c'est la position des capteurs dans la cuve qui peut être mise en cause. Lors du grainage, l'agitation de la massecuite n'est pas suffisante pour que l'hypothèse d'homogénéité de la solution soit valide. Les mesures réalisées en ligne ont ainsi permis de déterminer les plages de fonctionnement des différentes variables qui seront utilisées dans le modèle.

Pour toutes ces raisons, nous avons choisi de ne développer les modèles cinétiques que pour les phases de croissance cristalline (montées).

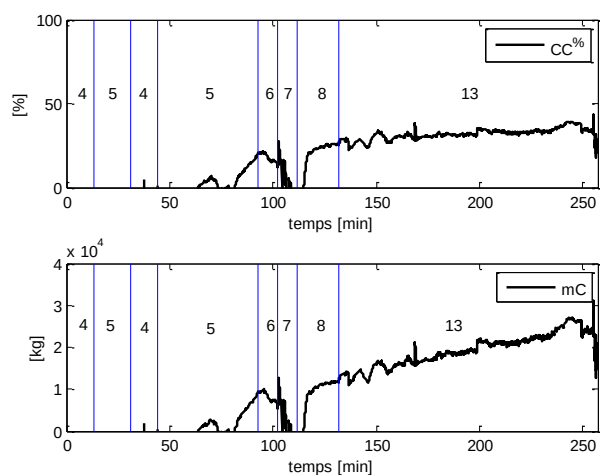
⁷ I.C.U.M.S.A : International Commission for Uniform Methods for Sugar Analysis.



**Figure 2.14.a : Cycle complet avec montée 1 :
Brix et pureté.**



**Figure 2.14.b : Cycle complet avec montée 1 :
Volume de la massecuite et conductivité.**



**Figure 2.14.c : Cycle complet avec montée 1 :
Teneur en cristaux et masse des cristaux.**

Sur les **figures 2.14.a, 2.14.b, 2.14.c**, nous voyons qu'il y a une répétition des phases 4 et 5, pendant les 90 premières minutes du cycle complet de cristallisation. Sur cette période, le cuiseur a géré le manque de matières premières (EA, LS) dans les cuves de stockage. Cette gestion se traduit par une alternance entre introduction des égouts (phase 4) et attente de stockage dans les cuves annexes. Pendant cette attente, on reste en phase 5.

Le volume de la massecuite V_{mc} contenu dans le cristallisateur est calculé grâce à la mesure du taux de remplissage (N) :

$$V_{mc} = N \cdot \frac{54}{100} \quad (2.22)$$

Les mesures en ligne des Brix liqueur mère et massecuite donnent accès, en temps réel tout au long d'une cuite, à l'évolution de la teneur en cristaux $CC\%$ dans la solution (**équation 2.10**) [Grondin-Perez et al, 2005]. La masse des cristaux M_c est ainsi calculée par :

$$M_c = CC \cdot M_T \quad (2.23)$$

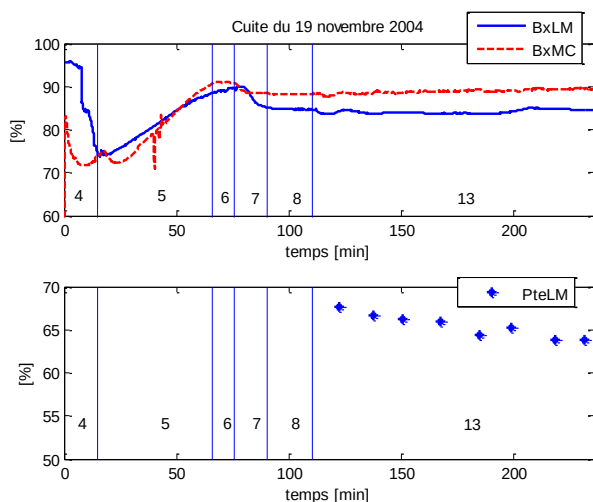
M_T : masse totale de la solution [kg].

$$M_T = \rho_{mc} \cdot V_{mc} \quad (2.24)$$

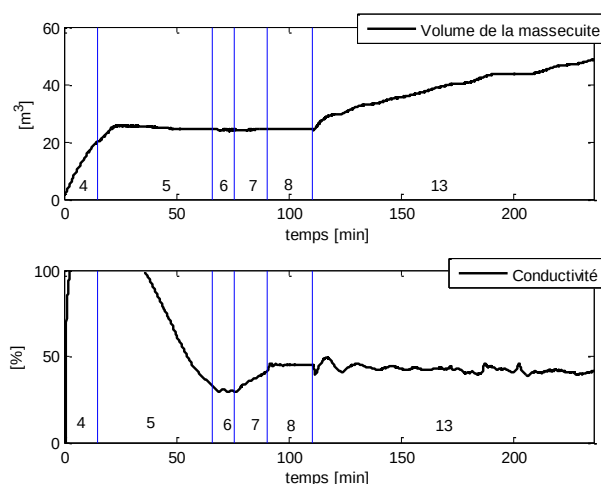
ρ_{mc} : masse volumique [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$]

(annexe 5).

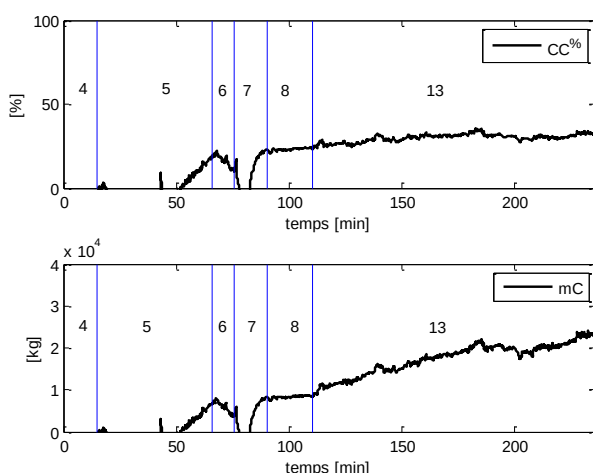
Pour les raisons que nous avons évoquées précédemment, le calcul du $CC\%$ n'est fiable que pour les phases de montées. La masse des cristaux M_c étant déduite du calcul du $CC\%$, cette information n'est valide par conséquent que pour les phases de montées.



**Figure 2.15.a : Cycle complet avec montée 1 :
Brix et pureté.**



**Figure 2.15.b : Cycle complet avec montée 1 :
Volume de la massecuite et conductivité.**



**Figure 2.15.c : Cycle complet avec montée 1 :
Teneur en cristaux et masse des cristaux.**

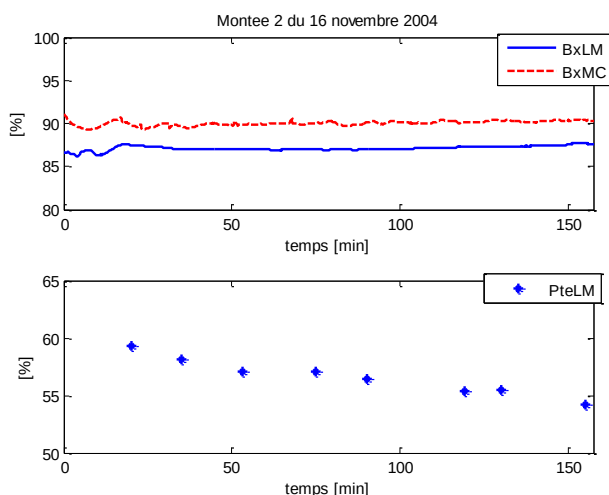
Les **figures 2.15.a, 2.15.b, 2.15.c** illustrent un cycle complet classique d'une cristallisation à l'usine de Bois Rouge. En effet, nous constatons que le déroulement de cette cuite se fait de façon traditionnelle, c'est-à-dire qu'il n'y a pas, comme pour la cuite précédente, une alternance entre les différentes phases. On peut faire ici les mêmes remarques que précédemment sur l'évolution des deux Brix en phases 4, 5 et 6.

La **figure 2.15.b** montre une évolution régulière du volume de la massecuite.

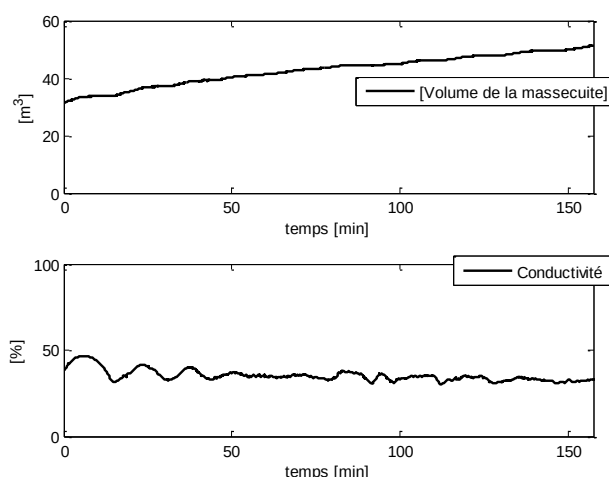
L'allure de la courbe de conductivité suit bien le profil décrit à la **section 2.4.2**, pour la première montée.

La **figure 2.15.c** montre, comme pour la **figure 2.14.c**, une stabilité de la teneur en cristaux dans la massecuite lors de la phase 13. Le calcul de la masse des cristaux dans la solution, nous permet de tracer son évolution au cours du temps. Cette évolution est croissante, il y a donc croissance cristalline.

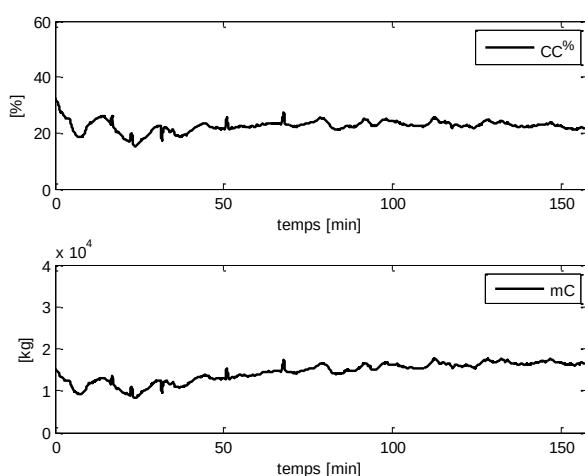
Dans la **section 2.4.5.2**, nous détaillons les différents cas de figures pouvant se produire au cours des deux montées.



**Figure 2.16.a : Montée 2 :
Brix et pureté.**



**Figure 2.16.b : Montée 2 :
Volume de la massecuite et conductivité.**



**Figure 2.16.c : Montée 2 :
Teneur en cristaux et masse des cristaux.**

Sur les figures **2.16.a**, **2.16.b** et **2.16.c**, nous représentons l'évolution des différentes grandeurs physiques au cours d'une montée 2.

Les messages expérimentaux délivrés par ces différents signaux sont cohérents.

Nous constatons que les évolutions du volume de la massecuite et de la conductivité sont régulières.

Sur la **figure 2.16.c**, nous constatons aussi que la teneur en cristaux au cours de la montée 2 est à peu près constante au cours du temps.

A la différence de la première montée, nous voyons que la pente de l'évolution de la masse des cristaux dans la solution est moins forte. Ceci s'explique par une viscosité de la massecuite plus importante en montée 2. Etant donnée, que la cinétique de croissance des cristaux est inversement proportionnelle à la viscosité du milieu, celle-ci est donc moins importante en montée 2.

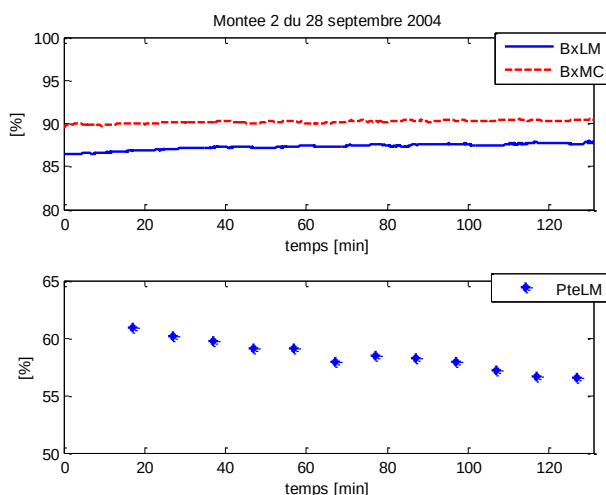


Figure 2.17.a : Montée 2 :
Brix et pureté.

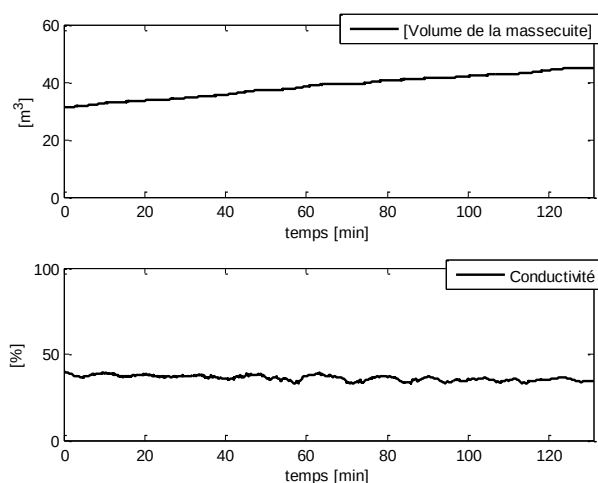


Figure 2.17.b : Montée 2 :
Volume de la massecuite et conductivité.

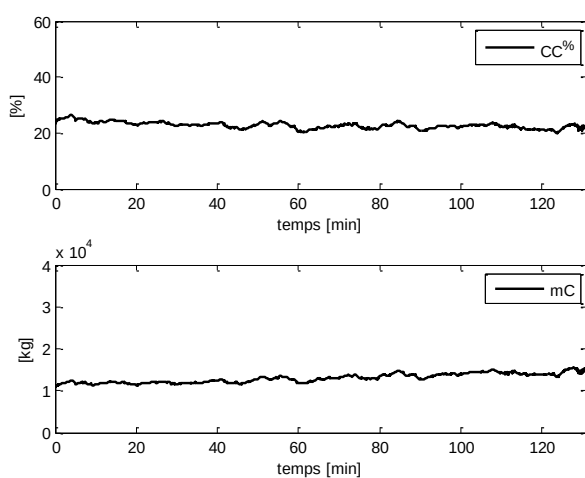


Figure 2.17.c : Montée 2 :
Teneur en cristaux et masse des cristaux.

Sur les figures **2.17.a**, **2.17.b** et **2.17.c**, nous représentons aussi l'évolution des grandeurs physiques mesurées et calculées au cours du temps, pour une autre montée 2.

Sur cet exemple aussi, nous voyons que les évolutions du volume de la massecuite et de la conductivité sont régulières au cours du temps.

La **figure 2.17.c** montre une constance de la teneur en cristaux au cours de la montée.

Nous constatons aussi que la pente de la courbe d'évolution de la masse des cristaux dans la solution est moins importante qu'en montée 1. On explique ce phénomène de la même façon qu'à l'exemple précédent.

2.4.5.1 Synthèse des plages de variation des mesures expérimentales.

Le **tableau 2.5** donne les différentes plages de variation de Brix et de puretés au cours des deux phases de montées 1 et 2 réalisées à l'usine de Bois Rouge pour la cristallisation C.

	Liqueur mère		Massecuite	
	Brix (%)	Pureté (%)	Brix (%)	Pureté (%)
Montée 1	83,0 - 86,0	68,0 - 62,0	86,5 - 89,5	78,0 - 72,0
Montée 2	85,0 - 88,5	62,0 - 54,0	88,5 - 91,0	72,0 - 64,0

Tableau 2.5 : récapitulatif des différents Brix et puretés

2.4.5.2 Teneur en cristaux : différents cas de figures

En 2003, nous avons équipé la cuite C540⁸ d'un capteur de Brix utilisant la technologie micro onde et permettant de mesurer le Brix de la massecuite en ligne.

Cette mesure permet d'analyser en ligne l'évolution du taux de cristaux dans la cuite.

Cet outil est une aide précieuse à la conduite de la cuite car il permet d'avoir des informations sur l'évolution des cristaux : croissance, refonte, etc. Par déduction, en cas de refonte, on peut considérer que la solution est sous saturée et agir en conséquence sur le procédé en phase de montée, en modifiant par exemple le débit d'égout, l'apport de chaleur, etc.

Comme nous avons pu le voir avec **l'équation 2.24**, la masse totale dans le cristalliseur ne fait qu'augmenter au cours de la montée (apport de matière).

La mesure en ligne de la teneur en cristaux permet de mettre en évidence différentes situations résumées ci-dessous :

Cas 1 : $CC \rightarrow$ et $M_T \nearrow \Rightarrow M_C \nearrow^9$, correspond au cas idéal pour une montée 1 et 2, épuisement de la liqueur mère.

Cas 2 : $CC \searrow$ et $M_T \nearrow \Rightarrow M_C \rightarrow$ et $CC \searrow$ et $M_T \nearrow \Rightarrow M_C \searrow$ correspondent à une montée avec refonte des cristaux dans la massecuite au cours de la montée.

Cas 3 : exemple comportant les cas où $CC \searrow$ et $CC \rightarrow$, correspond à une montée 2 avec refonte des fines et épuisement de la liqueur mère.

⁸ C'est le cristalliseur étudié, voir à la **section 2.4.2**.

⁹ $\nearrow$: augmentation, $\searrow$: diminution et $\rightarrow$: constance.

Premier cas de figure : $CC \rightarrow$ et $M_T \nearrow \Rightarrow M_C \nearrow$.

Exemple en montée 1 :

Initialement, avant l'étape de la montée 1, il y a ensemencement du milieu par des microscristaux (**section 2.4.3**). La première montée consiste à faire croître suffisamment ces microscristaux dans la solution grâce à un épuisement efficace de la liqueur mère.

Cette situation a été observée lors des montées 1. Un exemple est donné ci-dessous.

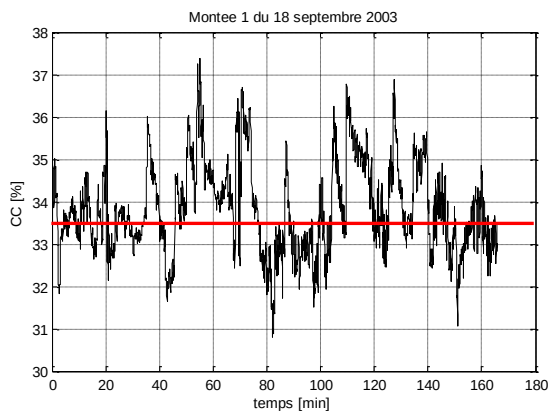


Figure 2.18 : évolution de la teneur en cristaux au cours d'une montée 1.

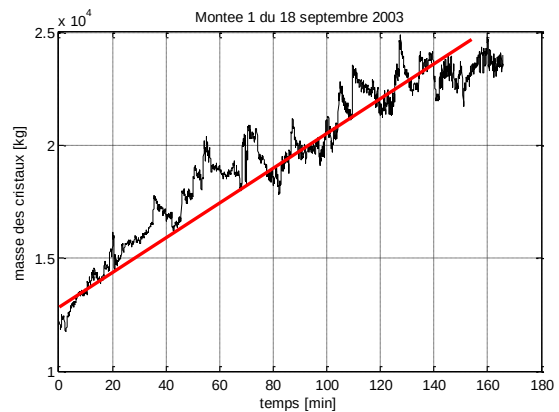


Figure 2.19 : évolution de la masse des cristaux au cours d'une montée 1.

Remarque : pour les courbes ci-dessus le temps $t = 0$ correspond au début de la phase de montée 1 (phase 13). Cette montée intervient environ 50 minutes après le début du cycle complet de la cristallisation.

Exemple en montée 2 :

Au cours de la montée 2, les cristaux croissent tout en épuisant la liqueur mère de son saccharose. De ce fait, on ne devrait jamais observer une augmentation de la teneur en cristaux lors de cette montée (**section 2.4.3**). Dans le cas contraire, il y aurait formation spontanée de cristaux ce qui signifierait que la solution serait à l'état de sursaturation labile.

Ce cas de figure est illustré aux **figures 2.20** et **2.21** suivantes :

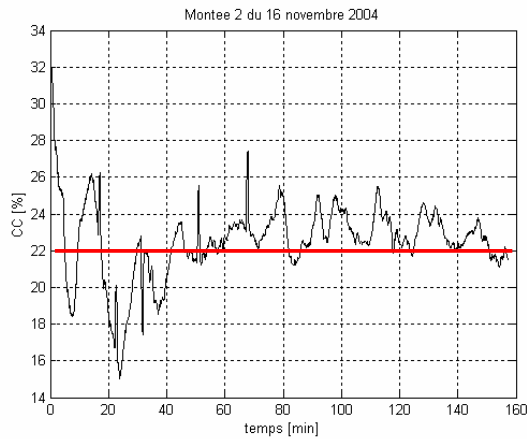


Figure 2.20 : évolution de la teneur en cristaux au cours d'une montée 2.

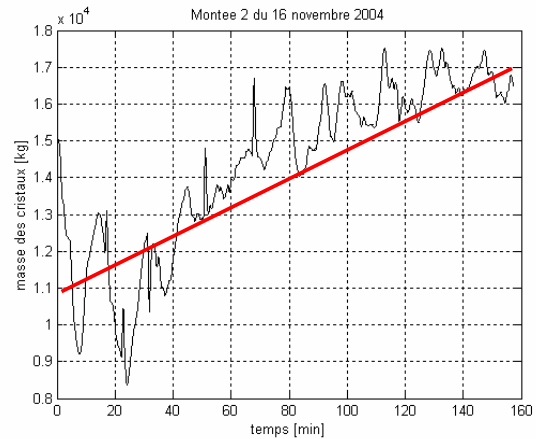


Figure 2.21 : évolution de la masse des cristaux au cours d'une montée 2.

Ces figures présentent une montée 2 réussie. Ceci est dû au fait que la teneur en cristaux reste à peu près constante, négligeant ainsi la refonte. On constate que la masse des cristaux augmente notablement. Cette augmentation montre que les cristaux croissent et qu'il y a épuisement de saccharose dans la liqueur mère. C'est un exemple d'épuisement de la liqueur mère en phase de montée 2, cas idéal recherché par l'industriel.

Deuxième cas de figure :

La mesure du taux de cristaux a permis de mettre en évidence « les défauts » de la montée 2, puisque l'on a pu observer suivant les cuites une diminution du CC au cours de cette montée. Cette diminution est due à une refonte des cristaux dans la masse cuite.

Notons qu'il peut y avoir deux types de refonte :

1. Refonte des fines (micros cristaux).
2. Refonte des cristaux.

1. Refonte des fines : $CC \searrow$ et $M_T \nearrow \Rightarrow M_C \rightarrow$

Lorsque la teneur en cristaux diminue et que la masse de cristaux correspondante reste constante, cela signifie que l'on refond les fines au dépend des plus gros. En effet, les micros cristaux se dissolvent et le saccharose correspondant cristallise à la surface des plus gros cristaux. De ce fait, il n'y aura pas d'épuisement de la liqueur mère. Les plus gros cristaux vont absorber les fines issues de la refonte tout au long de la montée. Les **figures 2.22 et 2.23** illustrent ce phénomène :

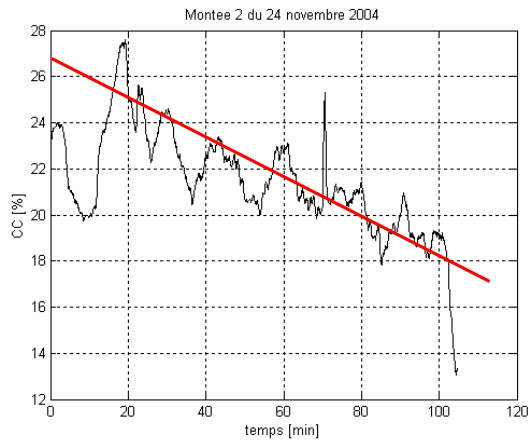


Figure 2.22 : évolution de la teneur en cristaux au cours d'une montée 2.

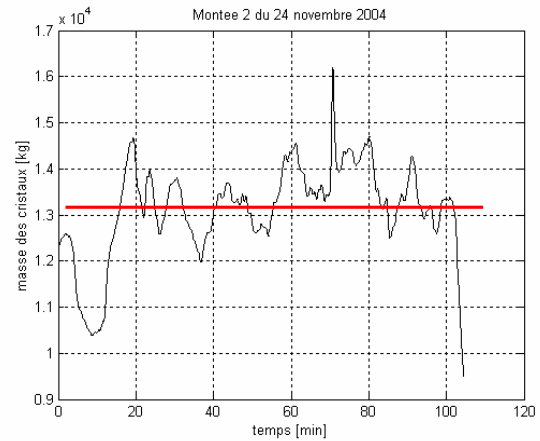


Figure 2.23 : évolution de la masse des cristaux au cours d'une montée 2.

2. Refonte des cristaux : $CC \searrow$ et $M_T \nearrow \Rightarrow M_C \searrow$

Une montée de ce type est un cas typiquement catastrophique. Une telle cristallisation n'est pas réussie du fait que la masse des cristaux dans la massecuite diminue au cours de la montée. En effet, si la teneur en cristaux diminue et que la masse des cristaux correspondante diminue elle aussi, cela signifie clairement que l'on est en train de refondre totalement dans le cristalliseur. Ce phénomène est dû à une mauvaise gestion de la sursaturation dans le milieu réactionnel. Cette cristallisation représente une perte certaine pour l'industriel. Ce phénomène est illustré aux **figures 2.24 et 2.25**.

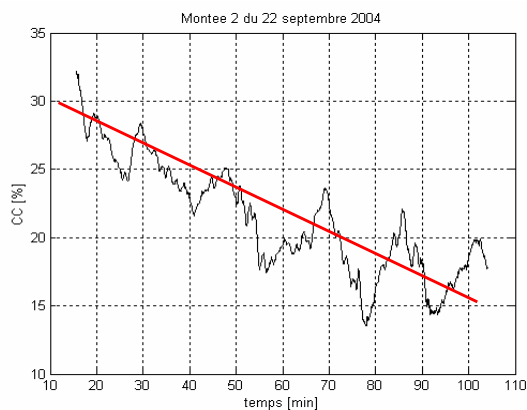


Figure 2.24 : évolution de la teneur en cristaux au cours d'une montée 2.

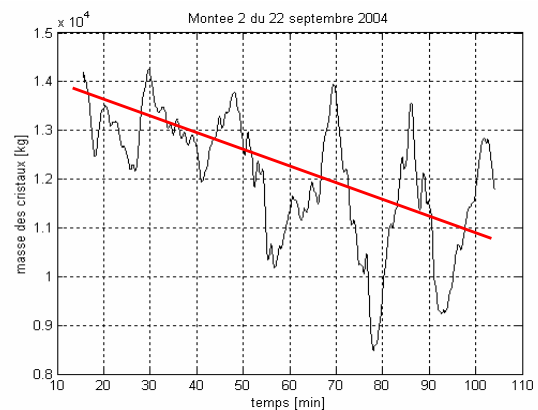


Figure 2.25 : évolution de la masse des cristaux au cours d'une montée 2.

Troisième cas de figure : $(CC \searrow \text{ et } CC \rightarrow)$ et $M_T \nearrow \Rightarrow (M_C \rightarrow \text{ et } M_C \nearrow)$.

Ce cas de figure correspond à une montée avec refonte des micros cristaux sur les cinquante premières minutes, qui aura pour conséquence d'alimenter les plus gros cristaux. Ainsi, la

masse des cristaux dans le cristalliseur reste constante. Au-delà des cinquante minutes, on constate que la teneur en cristaux reste constante et que la masse des cristaux dans la masse cuite augmente de manière significative. Ceci est dû au fait que l'on épuise la liqueur mère de son saccharose. Les **figures 2.26** et **2.27** illustrent ce phénomène :

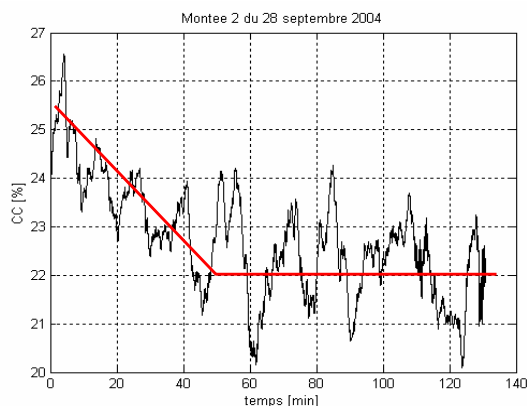


Figure 2.26 : évolution de la teneur en cristaux au cours d'une montée 2.

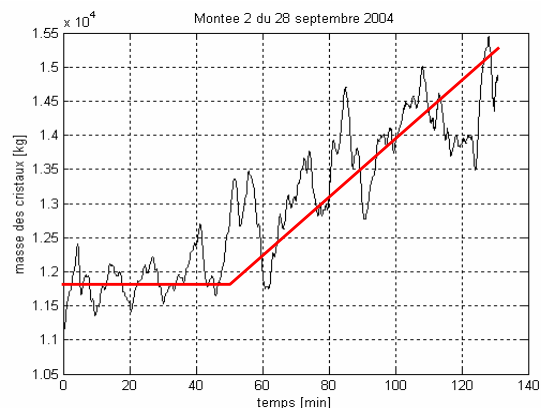


Figure 2.27 : évolution de la masse des cristaux au cours d'une montée 2.

Cette analyse a été réalisée a posteriori. Cependant, la possibilité d'avoir l'évolution du CC sur l'écran de contrôle de l'usine constituerait une aide précieuse à la conduite du procédé, puisqu'à l'heure actuelle aucune mesure ne permet d'évaluer la sursaturation de la solution en ligne.

2.5 Conclusion.

Les différents éléments développés dans ce chapitre montrent que le procédé de cristallisation discontinu C est très fortement non linéaire et non stationnaire. Notre objectif étant de modéliser le procédé, une difficulté supplémentaire vient du protocole de fabrication lui-même puisque les conditions dans lesquelles sont effectuées les cristallisations C ne sont jamais les mêmes d'une cuite à l'autre. En effet, le pied-de-cuite de la montée 1 n'a jamais la même composition et les solutions introduites (*jus introduits*) dans le cristalliseur lors de la montée ne sont pas non plus les mêmes. Les propriétés physico-chimiques des solutions variant avec leur composition, il est parfois difficile d'identifier dans ces conditions un modèle de précision convenable et caractérisé par une capacité de généralisation acceptable. Ainsi pour identifier un modèle de connaissance répondant aux deux contraintes énoncées précédemment nous devons tenir compte de divers éléments.

Les caractéristiques thermo-physiques des constituants en présence dans le cristalliseur se modifient au fur et à mesure que la concentration en saccharose dissous augmente par ajout de produits sucrés dans le système.

Le saccharose contenu dans un mélange de solution sucrée (EA, EB et LS) passe de l'état liquide à l'état solide. Autrement dit, ce changement d'état va favoriser l'augmentation de la

teneur en cristaux dans le milieu, du pourcentage en non-sucre et de la viscosité de la solution. Ces divers phénomènes ont pour effet de diminuer très notablement les vitesses de croissance des cristaux.

Lors d'une montée, le volume dans le cristalliseur va augmenter de façon linéaire dans le meilleur des cas, et peut aussi augmenter par palier.

Toutes ces configurations rendent difficiles la reproductibilité du procédé de cristallisation C. Au-delà de ces changements, l'introduction de matières premières de différentes puretés au cours de la montée modifient également la dynamique du procédé de cristallisation C discontinu. Cette modélisation fait intervenir des bilans des flux d'informations très variés et complexes.

Le paramètre fondamental, telle que la sursaturation de la solution sucrée étudiée n'est pas directement mesurable au cours de la cristallisation. Aussi, un vaste champ de connaissances doit être exploré au préalable avant l'étude de la conduite automatisée du procédé de cristallisation. Nous avons donc cadré nos recherches principalement par rapport à ces critères.

*« La théorie, c'est quand on sait tout
et que rien ne fonctionne.
- La pratique, c'est quand tout fonctionne
et que personne ne sait pourquoi.
- Si la pratique et la théorie sont réunies,
rien ne fonctionne et on ne sait pas pourquoi. »*

A. Einstein.

CHAPITRE 3

Les différents modèles de la cuite discontinue C540.

3	LES DIFFERENTS MODELES DE LA CUITE DISCONTINUE C540.....	87
3.1	Introduction.....	87
3.2	Modélisation d'une cristallisation discontinue en milieu industriel.....	88
3.3	Modèle de connaissance.....	89
3.3.1	Objectif de la modélisation.....	89
3.3.2	Les hypothèses de modélisation.....	91
3.3.3	Les conditions initiales de la modélisation.....	92
3.3.4	Modèle d'état à paramètres localisés (systèmes EDO et équation de sortie).....	95
3.3.4.1	Bilan de matières.....	97
3.3.4.1.1	Le débit massique de l'eau.....	97
3.3.4.1.2	Le débit massique des impuretés.....	98
3.3.4.1.3	Le débit massique du saccharose en solution.....	99
3.3.4.1.4	Le taux de production locale de cristaux.....	99
3.3.4.1.5	Modélisation des propriétés thermo-physiques non mesurées.....	100
3.3.4.2	Bilan d'énergie.....	102
3.3.4.3	Lois thermodynamiques d'équilibre.....	104
3.3.4.3.1	Solubilité et coefficient de saturation du saccharose.....	104
3.3.4.3.2	Elévation du point d'ébullition.....	104
3.3.5	Lois de comportement par la résolution du bilan de population.....	105
3.3.5.1	Formalisme général des bilans de population (bilan local).....	105
3.3.5.2	Bilan de population sur un cristalliseur parfaitement agité (bilan global).....	108
3.3.5.3	Transformation du bilan de population par la méthode des moments.....	110
3.3.5.3.1	Prise en compte du phénomène de croissance cristalline.....	110
3.3.5.3.2	Prise en compte des phénomènes de nucléation, de croissance et d'agglomération.....	111
3.3.6	Expression de la sursaturation de la solution.....	114
3.3.7	Modélisations du taux de production locale des cristaux.....	115
3.3.7.1	Les lois cinétiques choisies pour la modélisation de la cristallisation.....	115
3.3.7.1.1	Modèles de la cinétique de croissance.....	115
3.3.7.1.2	Modèles des cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération.....	121
3.3.7.2	Calcul du taux de production locale des cristaux par méthode différentielle.....	121
3.4	Evaluation des performances des modèles proposés.....	122
3.5	Conclusion.....	124

3 Les différents modèles de la cuite discontinue C540.

3.1 Introduction.

L'objectif à moyen terme de nos travaux est d'améliorer les performances du procédé de cristallisation du sucre C à l'usine de Bois Rouge, qui est la dernière étape du procédé global de cristallisation. En effet, à ce stade de la chaîne de fabrication, il faut épuiser au maximum la solution sucrée pour éviter les pertes de saccharose dans la mélasse.

Pour atteindre notre objectif, une des étapes essentielles de la démarche scientifique consiste à développer un modèle du procédé. Ce chapitre présente les différents modèles que nous avons développés pour reproduire le comportement de la cristallisation semi-continue C à l'usine de Bois Rouge.

Les modèles identifiés sont construits sur la même base : un modèle de connaissance macroscopique. Pour réaliser ce modèle, il faut tenir compte des transferts de matière, des échanges de chaleur et des cinétiques de tous les phénomènes physiques mis en jeu au cours de la transformation (nucléation, agglomération et croissance des cristaux). Par conséquent, le bilan repose sur 3 équations de bilan (matière, énergie et population) complétées par des lois thermodynamiques d'équilibre.

Dans le contexte industriel, nous avons entrepris de mesurer en ligne la teneur en cristaux de la masse cuite (à la **section 2.3.1.5**), ce qui permet de simplifier la résolution du bilan de population. Cette approche est très intéressante car elle ne nécessite pas la connaissance *a priori* des cinétiques de nucléations, d'agglomérations et des cinétiques de croissance des cristaux.

L'originalité de ce travail repose sur plusieurs points :

- la modélisation d'un procédé de cristallisation en milieu impur ;
- la résolution en ligne du bilan de population ;
- et la comparaison inter modèle.

Par la suite, les différents modèles de connaissance identifiés sont classés suivant la complexité de la méthode adoptée pour la résolution du bilan de population. Le modèle le plus simple ne prend en considération que la croissance cristalline, et le plus complexe inclut les trois phénomènes que sont la nucléation, la croissance et l'agglomération.

3.2 Modélisation d'une cristallisation discontinue en milieu industriel.

Dans cette section, nous montrerons au travers d'une étude bibliographique les différents modèles développés de la cristallisation discontinue. Il est à noter que très peu voire aucune des investigations dans ce domaine ne traitent de la cristallisation de troisième jet. Cette revue en détail des stratégies de modélisation, nous permet de mieux appréhender les hypothèses et les approches qu'il faut utiliser pour modéliser une cristallisation discontinue. Notre étude est axée plus particulièrement sur la simulation numérique des différentes cinétiques (nucléation, croissance et agglomération). Dans la suite de ce manuscrit, nous supposerons que ces phénomènes existent dans les solutions industrielles considérées.

Les travaux de Wright et White **[Wright et White, 1968]** donnent une première approche de la modélisation de la cristallisation. Wright **[Wright, 1971]** a continué à améliorer le modèle mis en place avec White, **[Wright et White, 1974]**. Ce nouveau modèle a été réalisé dans le but de prédire les performances du procédé pour différentes conditions. Le modèle comprend le bilan de matières, le bilan d'énergie, le bilan de population et les lois thermodynamiques d'équilibre ainsi qu'une description de la distribution en taille des cristaux grâce à l'utilisation des trois premiers moments. Cette nouvelle approche incorpore également un paramètre de dispersion des tailles des cristaux qui permet de prédire, avec plus ou moins de précision, la distribution en taille des cristaux contenus dans la solution. La relation empirique non linéaire utilisée pour exprimer ce paramètre de dispersion comprend la température, la pureté de la liqueur mère et les cinétiques de croissance et de nucléation. Wright et White montrent la difficulté à estimer ce paramètre de dispersion, du fait de la complexité des mécanismes mis en jeu lors de la cristallisation du saccharose. La cinétique de croissance est représentée par une corrélation empirique non linéaire dont trois paramètres sont à ajuster expérimentalement. Un des intérêts majeur de ce modèle est que ses paramètres, en majorité cinétiques, ont été ajustés à partir de données expérimentales industrielles et pour des solutions techniques sucrées de différentes puretés. Ils précisent aussi que si le bilan de population est formulé, il est alors possible de modéliser le cristalliseur à des fins de conception, de contrôle ou d'optimisation.

Tahal **[Tahal, 2000]** combine les travaux de **[Doucet et Giddey, 1966]**, **[Evans et al, 1970]**, **[Wright, 1971]**, **[Broadfoot, 1980]**, **[Wilson, 1990]** et **[Schneider, 1996]**, pour écrire différemment un modèle de la cristallisation discontinue. Ce modèle diffère principalement des autres du fait qu'il a remplacé les équations de bilan de population en prenant en compte des effets de la vitesse de croissance sur la distribution en taille des cristaux, connue sous le nom dispersion de cinétique de croissance (GRD¹).

Feyo de Azevedo **[Feyo de Azevedo et al, 1993 et 1994]** propose un modèle basé sur les bilans de matières, d'énergie et de population. Pour décrire la distribution en taille des cristaux, il s'appuie sur les cinq premiers moments du bilan de population. Chorão et Feyo de

¹ En anglais : Growth Rate Dispersion.

Azevedo [**Chorão et Feyo de Azevedo, 1996**] discrétisent le bilan de population pour la modélisation de la cristallisation industrielle du saccharose.

Najim [**Najim et al, 1996**], Feyo de Azevedo [**Feyo de Azevedo et al, 1997**], Meireles [**Meireles et Feyo de Azevedo, 1998**] et Peres [**Peres et al, 2001**] améliorent la performance de modélisation de la cristallisation du saccharose, en mettant en place des modélisations hybrides et adaptatives de procédés. Georgieva [**Georgieva et al, 2003**] a travaillé sur la modélisation hybride basée sur de la connaissance. Cette étude est basée sur un modèle de connaissance et sur un modèle à apprentissage hybride à réseau de neurones qui permet d'améliorer les performances de modélisation.

Ditl [**Ditl et al, 1990**] travaille aussi sur les bilans de matières et d'énergie. Dans ses travaux, il fait l'hypothèse que la croissance des cristaux est diffusionnelle et utilise une corrélation relative au nombre de Sherwood pour déterminer le transfert de matière. Il prend aussi en considération la nucléation secondaire ainsi qu'une distribution initiale en taille des cristaux de la semence introduite dans la solution.

Il est à noter que toutes ces stratégies de modélisation de la cristallisation discontinue reposent sur l'hypothèse que l'appareil à cuire est parfaitement agité et n'incluent donc pas les phénomènes dus à l'effet de la pression hydrostatique. Ces stratégies de modélisation font aussi l'hypothèse d'une température uniformément répartie dans la cuve bien que la position des faisceaux soit localisée à un emplacement particulier.

Ducloux [**Ducloux, 1987**], Chraïbi [**Chraïbi, 1992**] et Bouamrani [**Bouamrani, 1994**] modélisent le cristalliseur comme un ensemble fini de compartiments à travers lesquels la masse cuite circule en se mélangeant plus ou moins bien avec les éléments de la masse cuite adjacents. Cette approche repose sur l'hypothèse que le cristalliseur n'est pas une enceinte parfaitement agitée, hypothèse qui semble légitime du fait des dimensions des cristalliseurs industriels. Le modèle est basé sur l'écriture du bilan de matières et d'énergie. Le bilan de population des cristaux est discrétisé en classes, ce qui conduit à des modèles assez lourds en équations et en variables.

3.3 Modèle de connaissance.

3.3.1 Objectif de la modélisation.

Notre objectif est de proposer plusieurs modèles de connaissance de la cristallisation discontinue C à l'usine de Bois Rouge, basés sur des approches différentes. Une première approche consiste à utiliser comme équation de base le bilan de population. Ceci implique l'introduction dans le modèle de connaissance d'équations décrivant les cinétiques des phénomènes physiques susceptibles d'intervenir au cours de la transformation (nucléation, croissance, agglomération). La deuxième approche se base sur le calcul de l'évolution de la

masse de cristaux au cours du temps suivant une méthode numérique (dérivée par différences finies). Cette méthode permet de s'affranchir de la résolution du bilan de population.

Deux applications majeures des modèles identifiés peuvent être envisagées :

- le modèle basé sur la résolution du bilan de population trouve son application dans le développement de stratégies de contrôle, comme simulateur du procédé ;
- le modèle basé sur une résolution par différence finie est adapté à une utilisation dans le cadre de la supervision du procédé.

Tous les modèles de connaissances développés s'appuient sur les bilans de matières et le bilan d'énergie de la masse cuite, complétés par des lois thermodynamiques d'équilibre du milieu étudié. Ces lois qui régissent l'évolution de la cristallisation sont très importantes, et indispensables pour caractériser la solution. Elles permettent notamment d'estimer la solubilité du saccharose en milieu impur (solution technique des usines sucrières) vue en **section 1.2.1.1**, et l'élévation du point d'ébullition de la solution. En outre, viendra se greffer sur l'ensemble des modèles s'appuyant sur le bilan de population, les différentes cinétiques choisies pour modéliser la cristallisation étudiée.

Nous allons faire l'étude de modèles de complexités différentes suivant les hypothèses choisies. En effet, en fonction des hypothèses, nous introduirons ou pas, diverses lois traduisant différents processus cinétiques dans les bilans (de matière etc.).

Ainsi, nous avons développé deux catégories de modèles. La première catégorie de modèles de cristallisation ne prend en compte que la cinétique de croissance des cristaux dans la solution. Nous faisons ici l'hypothèse forte que seul le phénomène de croissance cristalline intervient, et nous considérons que les phénomènes de nucléation et d'agglomération n'existent pas. Ce premier modèle est lui-même subdivisé en plusieurs études, car nous avons testé des modèles donnés dans la littérature, plus ou moins complexes, prenant en compte diverses entrées (sursaturation, masse des cristaux, etc.). La deuxième catégorie de modèle rend compte des trois types de cinétiques, c'est-à-dire la cinétique de nucléation, la cinétique de croissance cristalline et enfin la cinétique d'agglomération. Cette modélisation se subdivise aussi en plusieurs études, les cinétiques étant décrites par plusieurs lois empruntées à la littérature.

Pour modéliser la cristallisation discontinue C à l'usine de Bois Rouge, nous utilisons dans l'écriture des modèles de connaissance développés, un bilan de population constitué de quatre moments² (μ_0 , μ_1 , μ_2 et μ_3) complété d'un bilan de matières et d'un bilan d'énergie.

² Termes définis à la section 3.

3.3.2 Les hypothèses de modélisation.

Tous les modèles que nous avons développés reposent sur une hypothèse globale : le cristalliseur C540 est considéré comme un réacteur parfaitement agité. En effet, les pâles de l'agitateur installé sur cette cuve sont surdimensionnées par rapport au volume et à la viscosité de la masse cuite, ce qui permet de diminuer efficacement les effets de la pression hydrostatique.

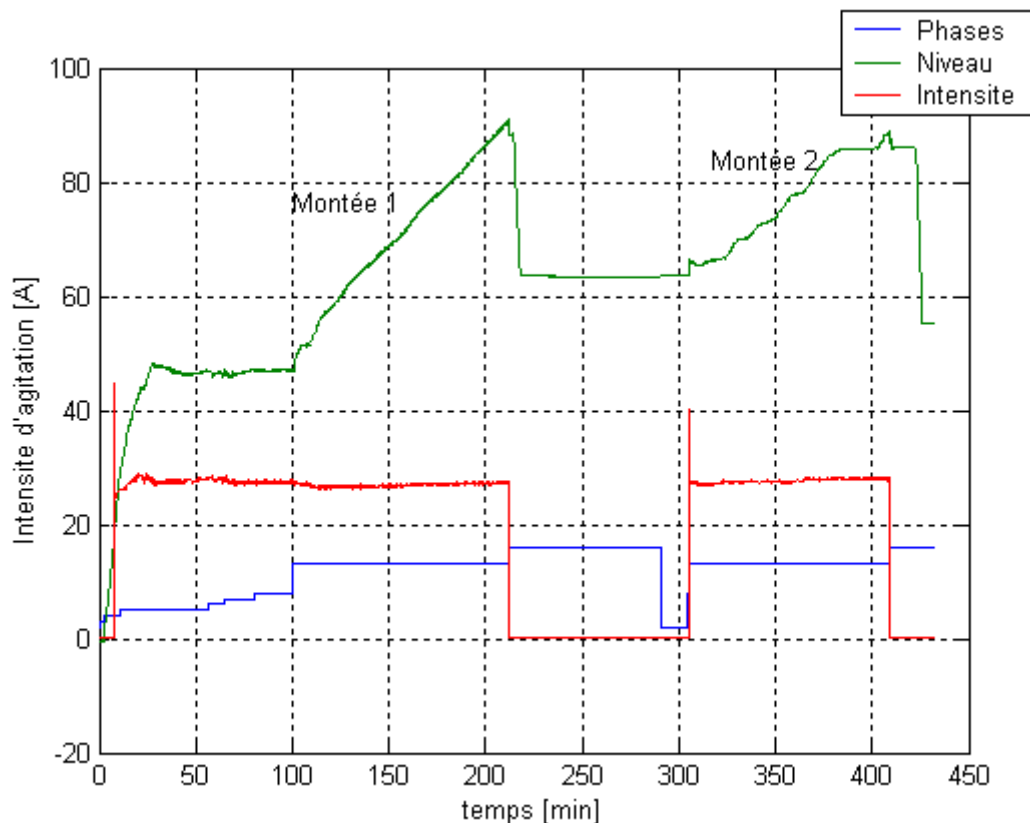


Figure 3.1 : représentation de l'intensité d'agitation lors d'une montée 1 et d'une montée 2 (24/11/2004).

Les autres hypothèses sont formulées suivant la nature des modèles identifiés.

Hypothèses communes (avec et sans bilan de population) :

1. Le cristalliseur C540 dispose d'une très bonne agitation, ainsi la température et la sursaturation du milieu sont homogènes. Comme vu précédemment, cette hypothèse est vérifiée.
 2. En considérant que la pression hydrostatique est négligeable (hypothèse globale), le gradient de température dans la masse cuite peut être négligé : toute la masse cuite est en ébullition.
-

3. Le cristalliseur C540 est alimenté par des solutions qui ne contiennent pas de cristaux (égout A, égout B, liqueur standard ou sirop).
-

Hypothèse formulée pour l'identification de modèles basés sur le bilan de population et prenant en compte la cinétique de croissance cristalline :

4. La masse cuite estensemencée et le nombre de cristaux dans la solution ne varie pas au cours de la cristallisation. De plus, ces micros cristaux sont caractérisés par une taille initiale moyenne.
5. Il n'y a pas de formation de faux grain, c'est-à-dire que le phénomène de nucléation primaire est négligé car la cristallisation est réalisée à partir de solutions en état de sursaturation métastable. Il n'y a pas non plus de nucléation secondaire et d'agglomération dans le milieu.
6. La cinétique de croissance cristalline vérifie la loi de Mac Cabe, c'est-à-dire qu'elle est indépendante de la taille des cristaux présents dans le milieu.
-

Hypothèse formulée pour l'identification de modèles basés sur le bilan de population et prenant en compte la cinétique de croissance cristalline, de nucléation et de cinétique d'agglomération :

7. La masse cuite estensemencée et le nombre de cristaux dans la solution varie au cours de la cristallisation. Les micros cristaux introduits dans la solution lors de l'ensemencement sont aussi caractérisés par une taille initiale moyenne (ouverture moyenne de 20 μm).
8. Il n'y a pas de formation de faux grain, c'est-à-dire que le phénomène de nucléation primaire est négligé. Par contre, des phénomènes de nucléation secondaire et d'agglomération sont pris en compte.

Ces stratégies de modélisation reposent aussi sur l'hypothèse 6.

3.3.3 Les conditions initiales de la modélisation.

L'observation des phases de montée révèle que la masse de cristaux augmente au cours des montées 1 et n'augmente pas au cours des montées 2 (**figures 3.2 et 3.3**). Cette observation

nous a conduit à réaliser les premières simulations sur la base de données collectées au cours de montées 1, conformément à l'hypothèse 6 commune à l'ensemble des modèles développés.

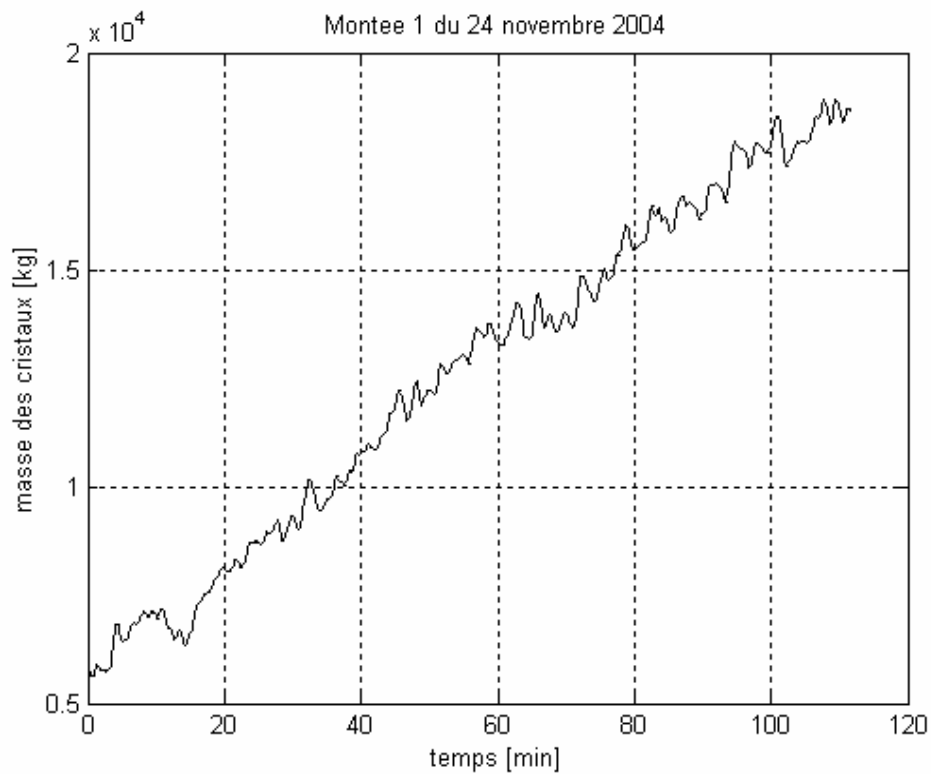


Figure 3.2 : évolution de la masse des cristaux au cours de la montée 1 du 24/11/2004.

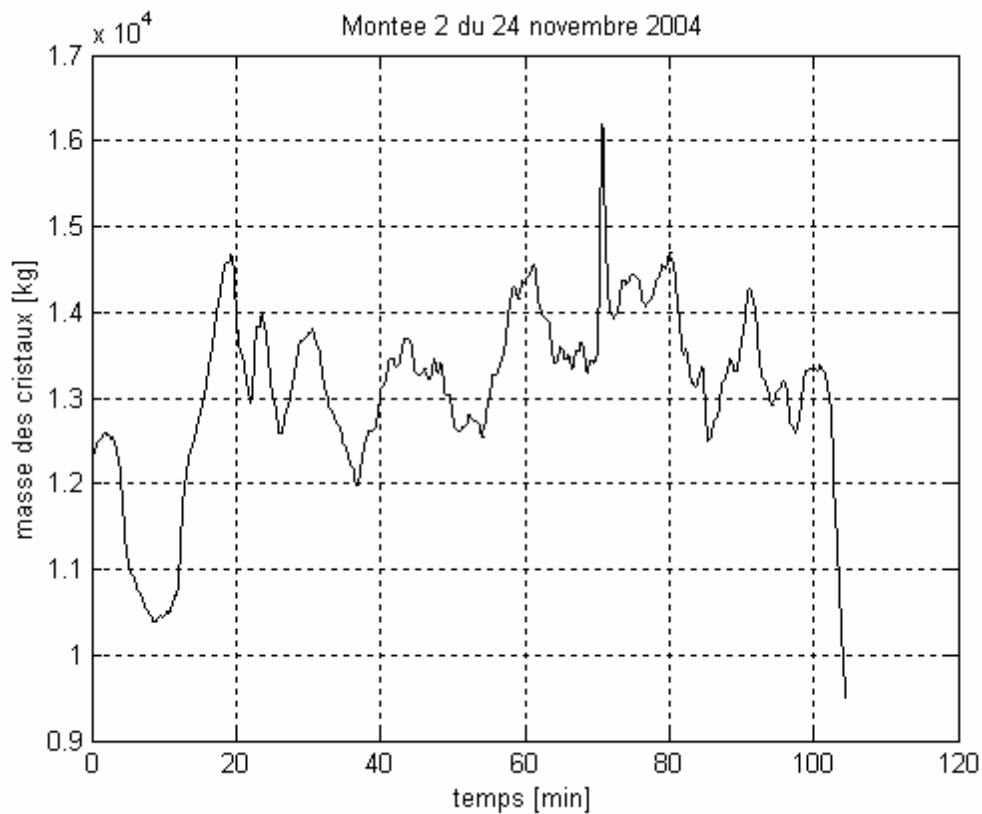


Figure 3.3 : évolution de la masse des cristaux au cours de la montée 2 du 24/11/2004.

Grâce aux divers résultats obtenus, il est préférable de ne considérer que la phase de montée 1 pour effectuer l'étude des cinétiques (nucléation, croissance et agglomération). En effet, au cours de cette phase de montée, nous constatons une augmentation notable de la masse des cristaux dans le cristalliseur contrairement à la montée 2 (**figure 3.2** et **3.3**). Ces résultats permettent une estimation des paramètres des lois cinétiques régissant la cristallisation C réalisée à l'usine de Bois Rouge.

Ainsi, toutes les montées 1 serviront à déterminer les diverses cinétiques. Suivant les modélisations, nous commencerons toujours les simulations à partir d'un pied de cuite de composition connue.

Pour l'initialisation de chaque modèle, nous connaissons la composition de la solution initiale :

- S_{init} : masse de sucre en solution [kg]
- I_{init} : masse d'impuretés en solution [kg]
- E_{init} : masse d'eau [kg]
- C_{init} : masse des cristaux contenus dans la solution [kg]

Aussi, pour les modèles utilisant le bilan de population, les quatre premiers moments (μ_0 , μ_1 , μ_2 et μ_3) sont connus.

Nous avons accès aussi, depuis la campagne 2004, à une donnée qui est utilisée pour la modélisation de la cristallisation : le débit de condensat de la vapeur de chauffe au niveau des faisceaux.

Ainsi pour résumer, les divers capteurs de débits installés in situ (**figure 3.4**) donnent :

- Le débit d'alimentation en égout A, égout B, liqueur standard et sirop.
- Le débit d'alimentation en eau de dilution.
- Le débit en eau condensée de la vapeur de chauffe au niveau des faisceaux. Cette information nous donne à une constante près la valeur de l'eau évaporée lors de la cristallisation. En effet ces deux grandeurs sont corrélées entre elles.

Grandeurs physiques précisant les conditions opératoires de la modélisation :

- Les divers Brix et puretés des produits d'alimentation (EA, EB, LS et sirop).
- Le Brix et la pureté liqueur mère de la solution, le Brix de la masse cuite, sont utilisés entre autre pour calculer les diverses masses initiales (sucre en solution, impuretés, eau et masse des cristaux).
- La température de la masse cuite, de l'eau d'alimentation et des produits d'alimentation (EA, EB, LS et sirop).
- La pression réduite (vide partiel) dans la calandre qui donne accès à la température de vapeur dans la calandre.

- La pression de la vapeur de chauffe dans les faisceaux, nous donne accès à la température de la vapeur de chauffe.
- Le niveau de la massecuite dans le cristalliseur C540, nous donne accès au volume de la massecuite contenue dans la cuve.
- L'intensité d'agitation en ampère est convertie en travail fourni.
- Le nombre moyen de cristaux contenus dans la massecuite.
- Le volume total moyen de tous les cristaux dans la massecuite.

3.3.4 Modèle d'état à paramètres localisés (systèmes EDO et équation de sortie).

Cette section présente les équations utilisées pour l'établissement des modèles. En effet, les équations de bilan de matières et d'énergie permettent de déterminer la valeur de la sursaturation de la solution, laquelle permet de calculer les cinétiques de cristallisation. Nous allons intégrer dans le bilan de population ces cinétiques, et cela nous permettra de simuler la distribution en taille des cristaux dans la massecuite grâce aux différents modèles de cristallisation.

Sur la **figure 3.4** suivante, sont représentés les différents flux de matières dans le cristalliseur C540 au cours d'une montée 1, ainsi que les échanges de chaleur entre la massecuite et la vapeur de chauffe circulant dans les faisceaux. L'agitation produit aussi un travail qui est transmis à la solution (c'est de l'énergie qui apparaît dans le bilan).

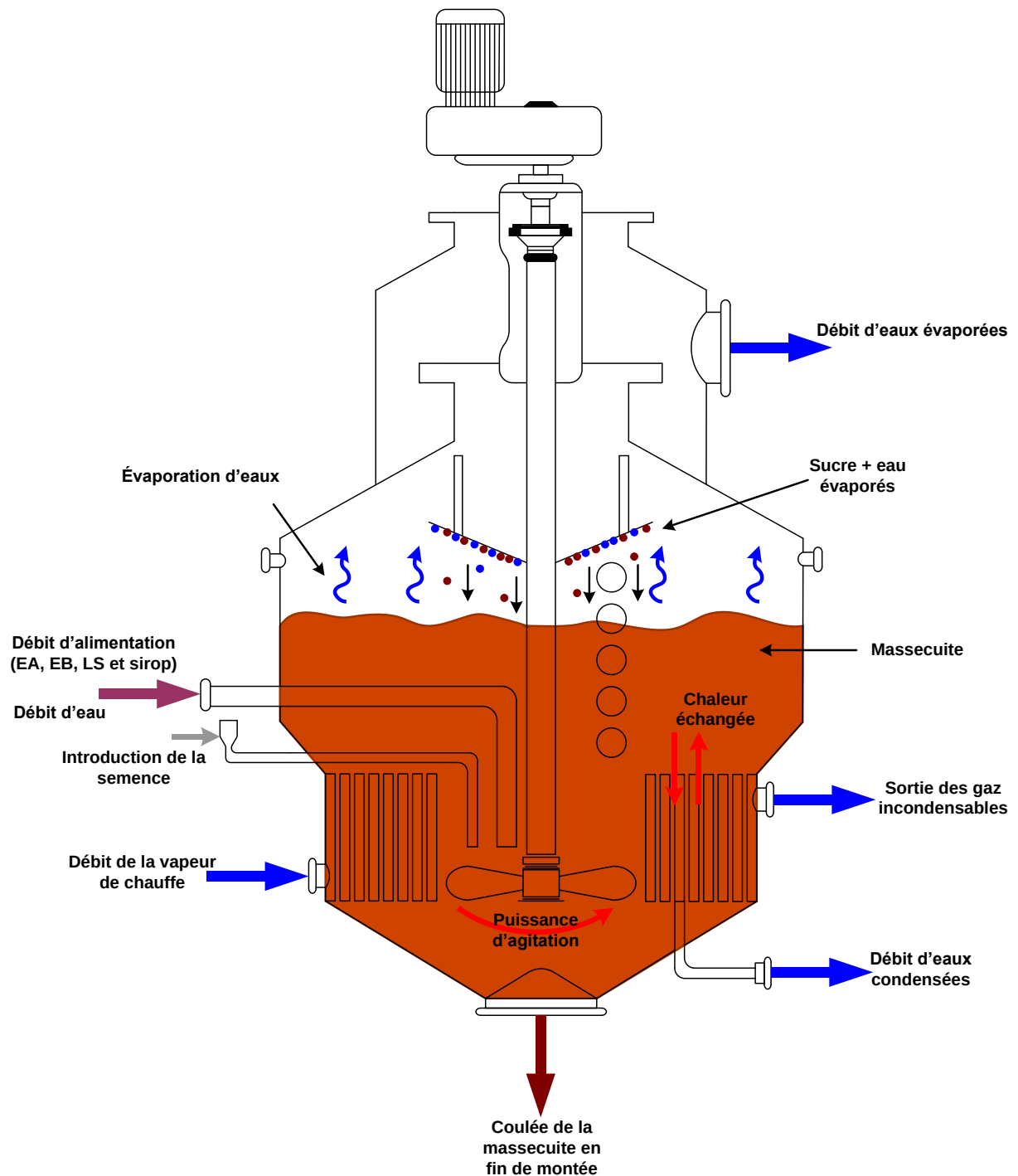


Figure 3.4 : représentation des flux de matières dans le cristalliseur C540 au cours d'une montée.

3.3.4.1 Bilan de matières.

Le bilan de matières est réalisé pour tous les constituants de la masse cuite, représentés en terme de masse par :

- Eau notée m_w [kg]
- Impuretés notées m_i [kg]
- Saccharose en solution noté m_s [kg]
- Cristaux notés m_c [kg]

Ainsi, le bilan de matières dans le cristalliseur C540 est défini par un ensemble de quatre équations qui suivent. Il est à noter que les équations de base pour l'ensemble des modèles sont les trois premières équations à savoir, les débits massiques de l'eau $\frac{dm_w}{dt}$, des impuretés

$\frac{dm_i}{dt}$ et du saccharose en solution $\frac{dm_s}{dt}$.

La détermination du taux de production locale des cristaux $\frac{dm_c}{dt}$ différera suivant les choix de modélisation (**chapitre 4**) :

- modèle de connaissance paramétrique,
- modèle par différence finie,
- modèle hybride.

3.3.4.1.1 Le débit massique de l'eau.

Le débit massique de l'eau $\frac{dm_w}{dt}$, en [kg.s⁻¹], est déterminé par les trois phénomènes suivants :

- l'alimentation de la cuve en produit sucré,
- l'alimentation de la cuve en eau de dilution,
- l'évaporation de l'eau.

Il s'exprime de la façon suivante :

$$\frac{dm_w}{dt} = \rho_f F_f (1 - Bx_f) + F_w \rho_w - q_{vap} \quad (3.1)$$

- F_f : débit du produit d'alimentation (EA, EB, LS, Sirop) [m³.s⁻¹]
- ρ_f : masse volumique du produit d'alimentation [kg.m⁻³]
- Bx_f : Brix du produit d'alimentation avec $Bx_f = \frac{Bx_f^{\%}}{100}$
- F_w : débit d'alimentation en eau [m³.s⁻¹]

- ρ_w : masse volumique de l'eau [kg.m⁻³]
- q_{vap} : vitesse d'évaporation de l'eau [kg.s⁻¹], et elle peut être définie de différentes façon.

En effet, Feyo de Azevedo et Georgieva [Feyo de Azevedo et al, 1993 et 1994], [Georgieva et al, 2003] définissent la vitesse d'évaporation de l'eau par la relation suivante :

$$q_{vap} = \frac{W + Q}{\lambda_{w(vac)}} + k_{vap} (T_m - T_{w(vac)} - BPE) \quad (3.2)$$

W est la puissance d'agitation en [J.s⁻¹], Q est la puissance de chauffe apportée par la vapeur [J.s⁻¹], $\lambda_{w(vac)}$ est la chaleur latente d'évaporation de l'eau, k_{vap} est un paramètre de la vitesse d'évaporation de l'eau lors de la cristallisation à ajuster, T_m est la température de la masse cuite, $T_{w(vac)}$ est la température de saturation de l'eau dans la cuve et enfin BPE est l'élévation du point d'ébullition [°C].

Pour les modélisations, nous avons utilisé *l'équation 3.3* suivante :

$$q_{vap} = \alpha_{vap} \rho_{vap} F_{cw \leftarrow hs} \quad (3.3)$$

α_{vap} est un paramètre de la vitesse d'évaporation de l'eau à ajuster par optimisation et il peut être, suivant le choix, une constante ou il peut dépendre des valeurs de la température de la masse cuite et des Brix liqueur mère et masse cuite. Le terme ρ_{vap} est la valeur de la masse volumique de l'eau condensée [kg.m⁻³] au niveau des faisceaux de la cuve (**figure 3.4**), et enfin le terme $F_{cw \leftarrow hs}$ représente le débit d'eau condensée au niveau de ces mêmes faisceaux [m³.s⁻¹], par commodité on le notera F_{hs} . Il est à noter que le terme α_{vap} permet d'ajuster la valeur de la vitesse d'évaporation de l'eau dans la cuve, qui est une grandeur non mesurée en usine, à celle de la vitesse de condensation de l'eau au niveau des faisceaux.

Toutes ces relations ont été testées, nous avons conservé celle qui conduisait aux meilleurs résultats.

3.3.4.1.2 Le débit massique des impuretés.

Le débit massique des impuretés $\frac{dm_i}{dt}$, en [kg.s⁻¹], dépend de l'alimentation de la cuve en produit sucré :

$$\frac{dm_i}{dt} = \rho_f F_f Bx_f (1 - Pte_f) \quad (3.4)$$

- Pte_f est la pureté du produit d'alimentation (EA, EB, LS, Sirop) avec $Pte_f = \frac{Pte_f^{\%}}{100}$.

Les autres termes (F_f , ρ_f et Bx_f) sont définis à la **section 3.3.4.1.1** précédente.

3.3.4.1.3 Le débit massique du saccharose en solution.

La variation de la masse de saccharose en solution $\frac{dm_s}{dt}$, en $[\text{kg.s}^{-1}]$ est déterminée par deux phénomènes :

- l'alimentation de la cuve en produit sucré,
- la cristallisation du saccharose en solution.

Ainsi, le débit massique est défini par :

$$\frac{dm_s}{dt} = \rho_f F_f Bx_f Pte_f - q_{cris} \quad (3.5)$$

- q_{cris} est le taux de production locale de cristaux (vitesse de cristallisation) exprimée en $[\text{kg.s}^{-1}]$.

Pour calculer la variation $\frac{dm_s}{dt}$, la détermination de q_{cris} est délicate. Nous avons utilisé plusieurs méthodes pour ce calcul.

3.3.4.1.4 Le taux de production locale de cristaux.

Le taux de production locale de cristaux dans la masse cuite $\frac{dm_c}{dt}$, en $[\text{kg.s}^{-1}]$ est défini de la façon suivante :

$$\frac{dm_c}{dt} = q_{cris} \quad (3.6)$$

Ce taux de production locale de cristaux dans la solution est exprimé de différentes façons. En effet, lorsque le modèle repose sur un bilan de population (modèle de connaissance paramétrique ou hybride), q_{cris} s'exprime par [**Tavare, 1995**] :

$$q_{cris} = A_T \cdot R_G \quad (3.7)$$

avec :

$$A_T = \frac{\Phi_s \cdot \mu_0^{1/3}}{(\rho_c \cdot \Phi_v)^{2/3}} \cdot m_c^{2/3} : \text{surface totale offerte par les cristaux } [\text{m}^2],$$

$$R_G = 3\rho_c \cdot \frac{\Phi_v}{\Phi_s} \cdot G : \text{vitesse globale de croissance [kg.m}^{-2}\text{.s}^{-1}\text{]},$$

Ainsi, on a :

$$q_{cris} = 3(\rho_c \Phi_v \mu_0)^{1/3} (m_c)^{2/3} G \quad (3.8)$$

- ρ_c est la masse volumique des cristaux de saccharose [kg.m⁻³], $\rho_c = 1580 \text{ kg.m}^{-3}$.
- Φ_v est le facteur de forme en volume égale à 0,75.
- Φ_s est le facteur de forme en surface égale à 5,02.
- μ_0 moment d'ordre 0, représente le nombre de cristaux dans la solution.
- m_c est la masse des cristaux dans la solution [kg].
- G est la vitesse de cristallisation linéaire [m.s⁻¹].

Et lorsque le calcul du débit de production locale des cristaux est calculé par différence finie q_{cris} est approché par :

$$q_{cris} \approx \frac{\Delta m_c}{\Delta t} \quad (3.9)$$

avec Δm_c est la différence de masse de cristaux entre deux instants t et $t + \Delta t$:

$$q_{cris} = \frac{m_c(t + \Delta t) - m_c(t)}{\Delta t} \quad (3.10)$$

- $m_c(t) = CC(t)m_{mc}(t)$, $CC(t)$ est la teneur en cristaux dans la masse cuite à l'instant t et $m_{mc}(t)$ est la masse de la masse cuite à l'instant t . La masse de la solution est calculée en utilisant le niveau de la solution et la masse volumique de la masse cuite, ainsi : $m_{mc}(t) = \rho_{mc}(t)V_{mc}(t)$.

3.3.4.1.5 Modélisation des propriétés thermo-physiques non mesurées.

Certaines grandeurs thermo-physiques ne sont pas mesurables. Elles sont modélisées par des corrélations faisant intervenir les mesures qui décrivent les propriétés thermo-physiques des constituants purs. En effet, nous introduisons des corrélations pour caractériser les jus sucrés d'alimentation, la masse cuite, les cristaux, l'eau (sous forme liquide et vapeur) et pour finir nous ajoutons quelques corrélations auxiliaires nécessaires à la modélisation.

1. Les jus sucrés d'alimentation (EA, EB, LS, Sirop) :

- Masse volumique des jus d'alimentation : ρ_f [kg.m⁻³].
- Capacité calorifique : Cp_f [J.(kg.°C)⁻¹].

- Enthalpie spécifique : H_f [J.kg⁻¹].

2. La massecuite :

- Masse volumique du saccharose en solution pure : ρ_{lm}^* [kg.m⁻³].
- Masse volumique du saccharose en solution impure : ρ_{lm} [kg.m⁻³].
- Masse volumique de la massecuite : ρ_{mc} [kg.m⁻³].
- Capacité calorifique de la liqueur mère : Cp_{lm} [J.(kg.°C)⁻¹].
- Enthalpie spécifique de la liqueur mère : H_{lm} [J.kg⁻¹].

3. Les cristaux :

- Volume des cristaux : v [m³].
- Fraction massique des cristaux : ω_c [%].
- Capacité calorifique des cristaux : Cp_c [J.(kg.°C)⁻¹].
- Enthalpie spécifique des cristaux : H_c [J.kg⁻¹].

4. L'eau (liquide et vapeur) :

- Masse volumique de l'eau : ρ_w [kg.m⁻³].
- Température de saturation de l'eau : $T_{w(vac)}$ ou $T_{w(s)}$ [°C].
- Chaleur latente de vaporisation : $\lambda_{w(vac)}$ ou $\lambda_{w(s)}$ [kJ.kg⁻¹].
- Enthalpie spécifique : H_w ou H_{vac} [J.kg⁻¹].
- élévation du point d'ébullition : ΔT_{eb} [°C].

5. Quelques corrélations auxiliaires :

- Fraction de volume des cristaux : v_c [%].
- Coefficient de saturation : CS .
- Solubilité du saccharose en milieu pur et impur : MS .
- Sursaturation de la solution : β .

Toutes ces corrélations thermo-physiques relatives aux divers constituants se trouvent en **annexe 5**.

Pour compléter et enrichir ces données, nous donnons quelques références bibliographiques [Wright et White, 1968 et 1974], [Batterham et al, 1974], [Batterham et Norgate, 1975], [Genotelle, 1980], [Kadlec et al, 1981], [Feyo de Azevedo et al, 1993 et 1994], [Peacock, 1995], [Georgieva et al, 2003], [Saska, 2002], [Pacheco et Kurokawa, 2004].

3.3.4.2 Bilan d'énergie.

L'enthalpie spécifique de la masse cuite h_{mc} , en $[J.kg^{-1}]$, est définie par la relation suivante :

$$h_{mc} = m_{mc} C_{p_{mc}} T_{mc} \quad (3.11)$$

- m_{mc} est la masse de la masse cuite $[kg]$ définie par : $m_{mc} = m_w + m_i + m_s + m_{mc}$,
- $C_{p_{mc}}$ est la capacité calorifique de la masse cuite $[J.(kg.^{\circ}C)^{-1}]$ définie par la relation :

$$C_{p_{mc}} = \frac{CC\%}{100} C_{p_c} + (1 - \frac{CC\%}{100}) C_{p_{lm}}$$
 Le terme C_{p_c} est la capacité calorifique des cristaux dans la solution et $C_{p_{lm}}$ est la capacité calorifique de la liqueur mère,
- T_{mc} est la température de la masse cuite $[^{\circ}C]$.

La variation de l'enthalpie spécifique de la masse cuite est exprimée par :

$$\frac{dh_{mc}}{dt} = \frac{d(m_{mc} C_{p_{mc}} T_{mc})}{dt} \quad (3.12)$$

$$\frac{dh_{mc}}{dt} = \frac{\partial h_{mc}}{\partial m_{mc}} \frac{\partial m_{mc}}{\partial t} + \frac{\partial h_{mc}}{\partial C_{p_{mc}}} \frac{\partial C_{p_{mc}}}{\partial t} + \frac{\partial h_{mc}}{\partial T_{mc}} \frac{\partial T_{mc}}{\partial t} \quad (3.13)$$

$$\frac{dh_{mc}}{dt} = C_{p_{mc}} T_{mc} \frac{\partial(m_{mc})}{\partial t} + m_{mc} T_{mc} \frac{\partial(C_{p_{mc}})}{\partial t} + m_{mc} C_{p_{mc}} \frac{\partial(T_{mc})}{\partial t} \quad (3.14)$$

Nous avons considéré que la capacité calorifique de la masse cuite est constante au cours de la cristallisation. En effet, nous avons constaté que les résultats de modélisation avec une capacité calorifique de la masse cuite variable au cours du temps sont « identiques ».

L'équation 3.14 peut s'écrire de la façon suivante :

$$\frac{dh_{mc}}{dt} = C_{p_{mc}} T_{mc} \frac{\partial(m_{mc})}{\partial t} + m_{mc} C_{p_{mc}} \frac{\partial(T_{mc})}{\partial t} \quad (3.15)$$

Une autre expression de la variation de l'enthalpie spécifique de la masse cuite est utilisée pour faire apparaître tous les flux d'énergie qui interagissent au cours d'une cristallisation (figure 3.4) :

$$\frac{dh_{mc}}{dt} = W + Q + \rho_f F_f h_f + \rho_w F_w h_w - q_{vap} h_{vap} - q_{crys} h_c - \frac{dm_{lm}}{dt} h_{lm} \quad (3.16)$$

- W est la puissance d'agitation (puissance mécanique) en $[J.s^{-1}]$, la valeur utilisée dans les modélisations est $W = 380 I_{agit}$. I_{agit} est la valeur de l'intensité du courant électrique en $[A]$, et la constante 380 est simplement la valeur de la tension injectée (c'est une alimentation triphasée).

- Q est la puissance de chauffe en $[J.s^{-1}]$, et elle est définie par :

$$Q = \alpha_Q \rho_{hs} F_{hs} l_{lv}^w \quad (3.17)$$

α_Q est un paramètre à ajuster par optimisation comme α_{vap} (voir **chapitre 5**). Pour des modèles simplifiés, ce paramètre peut être considéré comme constant ; pour des approches plus complexes, on peut l'exprimer en fonction de la température de la masse cuite et des Brix liqueur mère et masse cuite. Le terme ρ_{hs} est la valeur de la masse volumique de la vapeur de chauffe $[kg.m^{-3}]$ au niveau des faisceaux du cristalliseur (**figure 3.4**). Le terme l_{lv}^w représente la chaleur latente spécifique de condensation de l'eau $[J.kg^{-1}]$.

Il est à noter que nous avons utilisé une autre corrélation pour définir la puissance de chauffe :

$$Q = UA(T_{hs} - T_{mc}) \quad (3.18)$$

U est le coefficient d'échange global $[W.m^{-2}.(°C)^{-1}]$. Au même titre que le terme α_Q , U peut être défini comme une constante pure ou dépendre de plusieurs paramètres. Le terme T_{hs} est la température de la vapeur de chauffe $[°C]$.

A représente la surface d'échange des tubes du faisceau $[m^2]$.

- h_f est l'enthalpie spécifique du produit d'alimentation $[J.kg^{-1}]$.
- h_w est l'enthalpie spécifique de l'eau d'alimentation $[J.kg^{-1}]$.
- h_{vap} est l'enthalpie spécifique de la vapeur issue de la masse cuite (évaporation) $[J.kg^{-1}]$.
- h_c est l'enthalpie spécifique des cristaux $[J.kg^{-1}]$.
- $\frac{dm_{lm}}{dt}$ est la dérivée de la masse de la liqueur mère $[kg.s^{-1}]$, avec $m_{lm} = m_w + m_i + m_s$.
- h_{lm} est l'enthalpie spécifique de la liqueur mère $[J.kg^{-1}]$.

En combinant les **équations 3.15** et **3.16** nous arrivons à :

$$Cp_{mc} T_{mc} \frac{d(m_{mc})}{dt} + m_{mc} Cp_{mc} \frac{d(T_{mc})}{dt} = W + Q + \rho_f F_f h_f + \rho_w F_w h_w - q_{vap} h_{vap} - q_{crys} h_c - \frac{dm_{lm}}{dt} h_{lm} \quad (3.19)$$

D'où :

$$m_{mc} Cp_{mc} \frac{d(T_{mc})}{dt} = W + Q + \rho_f F_f h_f + \rho_w F_w h_w - q_{vap} h_{vap} - q_{crys} h_c - \frac{dm_{lm}}{dt} h_{lm} - Cp_{mc} T_{mc} \frac{d(m_{mc})}{dt} \quad (3.20)$$

Le bilan d'énergie final est décrit par l'**équation 3.20**, où T_{mc} représente la température de la masse cuite.

3.3.4.3 Lois thermodynamiques d'équilibre.

3.3.4.3.1 Solubilité et coefficient de saturation du saccharose.

Comme vu à la **section 1.2.1.1**, la solubilité du saccharose a fait l'objet de plusieurs études au cours de ces quarante dernières années. Parmi celles-ci, l'étude de Vavrinecz [**Vavrinecz, 1962**] a permis, après avoir comparé plusieurs équations fonctionnelles, de montrer que l'équation en série de puissances développée au quatrième degré (fonction de la température) donnait les meilleurs résultats :

$$MS = 64,447 + 0,08222 \times T + 1,6169 \times 10^{-3} \times T^2 - 1,558 \times 10^{-6} \times T^3 - 4,63 \times 10^{-8} \times T^4 \quad (3.21)$$

- T représente la température (en °C).
- MS est la solubilité du saccharose dans la solution [g soluté / 100g de solution], MS représente aussi la teneur en matières sèches.

Dans le cas des solutions techniques utilisées en sucrerie, et pour des ratios de sucres réducteurs par rapport aux cendres généralement mesurés, un coefficient de saturation CS (**section 1.2.1.1**) est introduit dans les équations pour corriger la valeur de la solubilité du saccharose en milieu impur, voir très impur dans la cas de la cristallisation C.

Nous avons effectué des comparaisons de modèles utilisant des expressions différentes du coefficient CS , données par des auteurs différents [**Wiklund, 1955**], [**Wagnerowski et al, 1961 et 1962**], [**Vavrinecz, 1978-79**]. L'expression qui donne les meilleurs résultats est celle de Wright et White [**Wright et White, 1968 et 1974**].

$$CS = 1 - 0,088 \frac{m_i}{m_w} \quad (3.22)$$

Ou encore :

$$CS = 1 - 0,088 \frac{Bx_{LM} (1 - Pte_{LM})}{1 - Bx_{LM}} \quad (3.23)$$

Il est à noter que le rapport $^3 \frac{m_i}{m_w}$ a été défini à la **section 2.3.1.6**.

3.3.4.3.2 Elévation du point d'ébullition.

L'élévation du point d'ébullition sert au calcul de la vitesse d'évaporation de l'eau dans le cristalliseur (**équation 3.2**). Ce paramètre permet le calcul de la température de la masse cuite.

$$^3 \frac{m_i}{m_w} = \frac{NS}{E}$$

Elle va influencer les valeurs des cinétiques de cristallisation et la solubilité du saccharose dans la solution.

Le cristallisateur C540 disposant d'une très bonne agitation, du fait du surdimensionnement des pales de l'agitateur, la température et la sursaturation de la masse cuite sont homogènes. Ainsi, toute la masse cuite est en ébullition et sa température est donc fonction de la pression réduite régnant dans la calandre augmentée de l'élévation du point d'ébullition.

L'élévation du point d'ébullition est aussi fonction du Brix et de la pureté de la liqueur mère. Comme les autres corrélations utilisées en cristallisation sucrière (coefficient de saturation, sursaturation, etc.), il existe de multiples corrélations disponibles dans la littérature [Batterham et Norgate, 1975], [Kadlec et al, 1981], [Peacock, 1995]. Nous avons retenu l'expression donnée par Peacock [Peacock, 1995] :

$$\Delta T_{eb} = (0,03 - 0,018 Pte_{LM}^{\%}) (T_{w(vac)} + 84) \frac{Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}} \quad (3.24)$$

- ΔT_{eb} est la valeur de l'élévation du point d'ébullition [°C].
- $T_{w(vac)}$ est la valeur de la température d'ébullition de l'eau à la pression réduite régnant dans la calandre [°C].

Nous pouvons ainsi définir la température de la masse cuite par la relation suivante :

$$T_{mc} = T_{w(vac)} + \Delta T_{eb} \quad (3.25)$$

Ou encore :

$$T_{mc} = T_{w(vac)} + (0,03 - 0,018 Pte_{LM}^{\%}) (T_{w(vac)} + 84) \frac{Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}} \quad (3.26)$$

3.3.5 Lois de comportement par la résolution du bilan de population.

Le choix optimal, le dimensionnement ainsi que la compréhension du fonctionnement des cristallisoirs nécessitent l'écriture des bilans de matières et d'énergie [Villermaux, 1993], [Klein et al, 1991]. Traditionnellement, ces deux bilans sont nécessaires, mais ils ne suffisent pas à prendre en compte les propriétés physiques des particules obtenues. Il faut alors introduire le comptage des particules en fonction de leur taille en s'appuyant sur la méthodologie générale des bilans de population.

3.3.5.1 Formalisme général des bilans de population (bilan local).

Le bilan de population est un formalisme permettant de décrire l'évolution au cours du temps (noté t) et dans l'espace (coordonnées d'un point de l'espace : x, y et z) d'une population d'entités dénombrables possédant un certain nombre M de propriétés [Marchal, 1989]. Le

champ d'application du bilan de population est large, et le **tableau 3.1** donne un aperçu d'applications très diverses.

Application	Entité	Propriétés
Mélange des fluides	Paquets de fluide	Age, taille, ...
Catalyse	Grain de catalyseur	Activité, surface active, ...
Biotechnologies	Microorganismes	Age, taille, ...
Cristallisation	Cristaux	Taille, forme, ...

Tableau 3.1 : champs d'application du bilan de population.

Ramkrishna [**Ramkrishna, 1985**] donne une introduction complète au formalisme des bilans de population.

Nous noterons $\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_M$ les grandeurs quantifiant les propriétés M. La population est décrite par sa fonction de distribution en nombre n :

$$n = n(x, y, z, \xi_1, \xi_2, \dots, \xi_M, t) \quad (3.27)$$

telle que $ndxdydzd\xi_1d\xi_2\dots d\xi_M$ représente le nombre d'entités contenues à l'instant t dans le volume élémentaire $dx dy dz$ avec des grandeurs quantifiant les propriétés contenues dans les intervalles $[\xi_1, \xi_1 + d\xi_1], [\xi_2, \xi_2 + d\xi_2], \dots, [\xi_M, \xi_M + d\xi_M]$. Le nombre N_T total d'entités est donc, par définition de n :

$$N_T(t) = \int_{x=0}^{x=\infty} \int_{y=0}^{y=\infty} \int_{z=0}^{z=\infty} \int_{\xi_1=0}^{\xi_1=\infty} \dots \int_{\xi_M=0}^{\xi_M=\infty} n dx dy dz d\xi_1 \dots d\xi_M \quad (3.28)$$

Le bilan de population est un bilan effectué sur un hypervolume de l'hyperespace à $M+3$ dimensions formé par les trois dimensions « classiques » de l'espace physique et les M dimensions des propriétés. Si $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z}, \vec{\xi}_1, \vec{\xi}_2, \dots, \vec{\xi}_M)$ est une base de cet hyperespace selon les directions indiquées ci-dessus, une entité décrit au cours de son existence une trajectoire sur laquelle elle se déplace avec une vitesse généralisée $\vec{v}$:

$$\vec{v} = \frac{dx}{dt} \vec{x} + \frac{dy}{dt} \vec{y} + \frac{dz}{dt} \vec{z} + \sum_{i=1}^{i=M} \frac{d\xi_i}{dt} \vec{\xi}_i \quad (3.29)$$

où $\frac{dx}{dt}, \frac{dy}{dt}$ et $\frac{dz}{dt}$ sont les composantes classiques de la vitesse dans l'espace physique à 3 dimensions et $\frac{d\xi_i}{dt}$ est le taux de transformation de la $i^{\text{ème}}$ propriété.

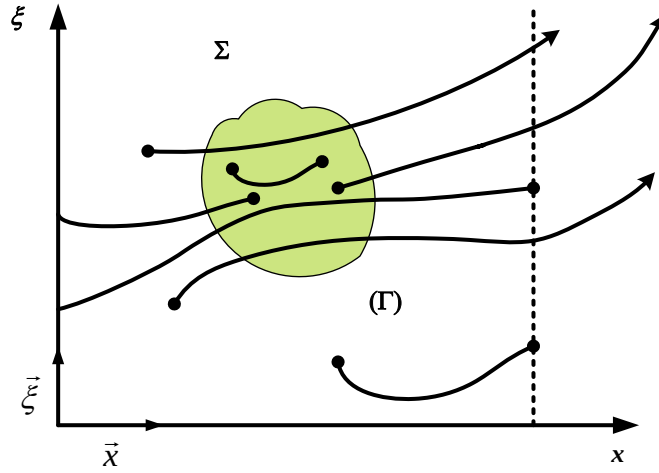


Figure 3.5 : Trajectoires d'entités et bilan de population dans un espace à deux dimensions [Marchal, 1989].

La **figure 3.5** ci-dessus donne une représentation de telles trajectoires dans le cas d'un hyperspace à deux dimensions : la dimension x de l'espace physique supposé ici monodimensionnel, et la dimension ξ de l'espace des propriétés. Il se peut que des entités disparaissent ou apparaissent, selon divers processus, et l'on introduit pour décrire ceci une fonction de génération $\dot{G}$:

$$\dot{G} = \frac{(\text{Nombre net d'entités apparaissant})}{\left(\begin{matrix} \text{unité de} \\ \text{temps} \end{matrix}\right) \left(\begin{matrix} \text{unité de } x \\ \text{[longueur]} \end{matrix}\right) \left(\begin{matrix} \text{unité de } y \\ \text{[largeur]} \end{matrix}\right) \left(\begin{matrix} \text{unité de } z \\ \text{[hauteur]} \end{matrix}\right) \left(\begin{matrix} \text{unité de} \\ \xi_1 \end{matrix}\right) \left(\begin{matrix} \text{unité de} \\ \xi_2 \end{matrix}\right) \dots \left(\begin{matrix} \text{unité de} \\ \xi_M \end{matrix}\right)} \quad (3.30)$$

Le bilan de population effectué sur l'hypervolume Σ délimité par une hypersurface (Γ) s'écrit :

$$\left(\begin{matrix} \text{Génération d'entités} \\ \text{dans } \Sigma \end{matrix}\right) = \left(\begin{matrix} \text{Nombre d'entités qui} \\ \text{"sortent" de } \Sigma \text{ en} \\ \text{franchissant } (\Gamma) \end{matrix}\right) + \left(\begin{matrix} \text{Accumulation d'entités} \\ \text{dans } \Sigma \end{matrix}\right) \quad (3.31)$$

ce qui se traduit mathématiquement par :

$$\int_{\Sigma} \dot{G} d\Sigma = \int_{(\Gamma)} n \vec{v} d\vec{n}_{nor} + \int_{\Sigma} \frac{\partial n}{\partial t} d\Sigma \quad (3.32)$$

où $d\vec{n}_{nor}$ représente le vecteur unitaire sortant localement normal à (Γ) . La **figure 3.5** donne de nouveau une image simplifiée dans un hyperspace à deux dimensions.

En effectuant la transformation mathématique suivante :

$$\int_{(\Gamma)} n \vec{v} d\vec{n}_{nor} = \int_{\Sigma} \text{div}(n \vec{v}) d\Sigma = \int_{\Sigma} \left[\frac{\partial}{\partial x} \left(n \frac{dx}{dt} \right) + \dots + \frac{\partial}{\partial \xi_M} \left(n \frac{d\xi_M}{dt} \right) \right] d\Sigma \quad (3.33)$$

On obtient alors le bilan de population général sous sa formulation locale :

$$\dot{G} = \frac{\partial}{\partial x} \left(n \frac{dx}{dt} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(n \frac{dy}{dt} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(n \frac{dz}{dt} \right) + \sum_{i=1}^{i=M} \frac{\partial}{\partial \xi_i} \left(n \frac{d\xi_i}{dt} \right) + \frac{\partial n}{\partial t} \quad (3.34)$$

Cette section donne les éléments essentiels suffisants à l'écriture de la forme générale du bilan de population sous sa formulation locale.

3.3.5.2 Bilan de population sur un cristalliseur parfaitement agité (bilan global).

Le cristalliseur s'intéresse le plus souvent à une enceinte close, le cristalliseur, qu'il considère comme un tout (un système) et sur lequel il effectue son bilan. Il est possible, en partant du bilan de population local, d'obtenir un bilan global sur une enceinte macroscopique, de volume V_T éventuellement variable. Cette démarche mathématique est donnée par Villermaux [Villermaux, 1982]. Nous nous placerons dans le cas particulier qui nous intéresse : le bilan de population sur un cristalliseur parfaitement agité pour le liquide et pour le solide. Les différentes fonctions ne font donc plus intervenir les coordonnées d'espace x , y et z . En effet, leurs valeurs sont uniformes sur l'ensemble de la cuve et toutes les grandeurs sont ramenées à l'unité de volume de suspension. Les entités sont les cristaux. Randolph et Larson [Randolph et Larson, 1962] ont été les premiers, en 1962, à appliquer les bilans de population à la cristallisation. Nous n'utiliserons pas leur formalisme, mais un formalisme légèrement différent proposé par Villermaux [Villermaux, 1982], où la taille des germes L^* peut avoir une valeur non nulle.

On ne considère qu'une seule propriété, la taille caractéristique L des cristaux. La fonction de distribution est donc une fonction de deux variables :

$$\tilde{n} = \tilde{n}(L, t) \quad (3.35)$$

et s'exprime en $[nb]/m^3.m$, c'est la fonction de distribution en nombre non normée. Elle est telle que $\tilde{n}dL$ représente le nombre de cristaux de taille comprise entre L et $L + dL$ présents par m^3 de suspension dans le cristalliseur à l'instant t .

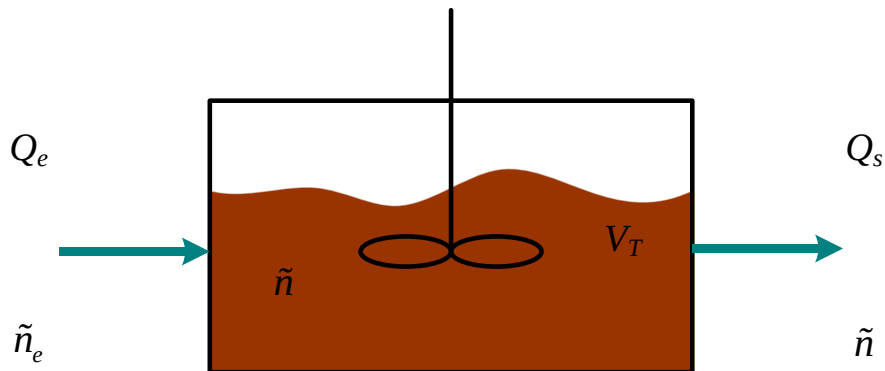


Figure 3.6 : Cristalliseur parfaitement agitée pour le liquide et pour le solide.

La **figure 3.6** représente un cristallisateur parfaitement agité. Celui-ci est alimenté par un débit Q_e [$\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$] de suspension chargée en cristaux, dont la granulométrie est décrite par leur fonction de distribution en nombre non normée $\tilde{n}_e$, et déchargé avec un débit Q_s . Comme la cuve est parfaitement agitée, la fonction de distribution des cristaux dans la sortie est $\tilde{n}$, fonction régnant dans le cristallisateur.

Les mécanismes qui ont lieu dans le cristallisateur sont propres à la cristallisation :

- la *nucléation*. Sa vitesse est notée r_N en $[\text{nb}] \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$.
- la *croissance*. La vitesse de croissance $\frac{dL}{dt}$ est notée G en $[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$. Cette notation, imposée par l'usage, ne désigne pas le débit de génération que l'on aurait pu construire par analogie avec celui défini plus haut.
- l'*agglomération*. Son intensité est évaluée par la distribution r_A , des vitesses d'agglomération, exprimée en $[\text{nb}] \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$.
- la *brisure*. La distribution des vitesses de brisure est notée r_B en $[\text{nb}] \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

Le bilan sur le cristallisateur des cristaux de taille comprise entre L et $L + dL$ est :

$$\begin{aligned}
 & \left(\begin{array}{c} \text{cristaux entrant} \\ \text{dans le} \\ \text{cristallisateur} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{cristaux produits} \\ \text{par nucléation} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{cristaux produits} \\ \text{par agglomération} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{cristaux sortant} \\ \text{du cristallisateur} \end{array} \right) + \\
 & \left[\left(\begin{array}{c} \text{cristaux de taille } L \text{ qui} \\ \text{croissent et dépassent la} \\ \text{taille } L+dL \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{cristaux de taille } L-dL \\ \text{qui croissent et atteignent} \\ \text{la taille } L \end{array} \right) \right] + \left(\begin{array}{c} \text{cristaux détruits} \\ \text{par brisure} \end{array} \right) + \\
 & \left(\begin{array}{c} \text{cristaux s'accumulant} \\ \text{dans le cristallisateur} \end{array} \right) \quad (3.36)
 \end{aligned}$$

Ce bilan se traduit mathématiquement par l'équation :

$$Q_e \tilde{n}_e dL dt + r_N \delta(L - L^*) dLV_T dt + r_A dLV_T dt = Q_s \tilde{n} dL dt + d(\tilde{n}G) + r_B dLV_T dt + d(\tilde{n}dLV_T) \quad (3.37)$$

- L^* représente la taille des microcristaux [m], taille des cristaux de la semence.
- δ est la distribution de Dirac.

Finalement, on obtient :

$$\frac{1}{V_T} \frac{\partial(\tilde{n}V_T)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial L}(\tilde{n}G) + \frac{Q_s \tilde{n} - Q_e \tilde{n}_e}{V_T} = r_N \delta(L - L^*) + r_A - r_B \quad (3.38)$$

L'**équation 3.38** est l'expression macroscopique du bilan de population sur un cristalliseur quelconque parfaitement agité.

3.3.5.3 Transformation du bilan de population par la méthode des moments.

Dans cette section, nous donnerons deux variantes du bilan de population que nous avons développées. En effet, nous avons dans un premier temps considéré que le seul phénomène existant au sein de la solution au cours de la cristallisation était la croissance cristalline décrite par une cinétique. Puis dans un deuxième temps, nous avons considéré qu'il y avait au cours de la cristallisation trois phénomènes : nucléation, croissance et agglomération. De ce fait, nous avons donc transformé les **équations 3.36, 3.37 et 3.38** suivant les deux cas considérés. En utilisant la méthode des moments, la transformation mathématique du bilan de population est aisée et la résolution du système différentiel obtenu est classique et rapide.

3.3.5.3.1 Prise en compte du phénomène de croissance cristalline.

Dans cette approche, nous n'avons considéré que le mécanisme de croissance cristalline. A cet effet, nous avons transformé le bilan de population dans le cristalliseur, qui est en fait le bilan des cristaux de taille comprise entre L et $L + dL$.

Le nouveau bilan s'écrit alors :

$$\left[\left(\begin{array}{c} \text{cristaux de taille } L \text{ qui} \\ \text{croissent et dépassent la} \\ \text{taille } L+dL \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{cristaux de taille } L-dL \\ \text{qui croissent et atteignent} \\ \text{la taille } L \end{array} \right) \right] + \left(\begin{array}{c} \text{cristaux s'accumulent} \\ \text{dans le cristalliseur} \end{array} \right) = 0 \quad (3.39)$$

Le bilan se traduit mathématiquement par :

$$d(\tilde{n}G) + d(\tilde{n}dLV_T) = 0 \quad (3.40)$$

Finalement, on obtient :

$$\frac{1}{V_T} \frac{\partial(\tilde{n}V_T)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial L}(\tilde{n}G) = 0 \quad (3.41)$$

Dans le cas où l'hypothèse de Mac Cabe est vérifiée, c'est-à-dire que la cinétique de croissance ne dépend pas de la taille des cristaux, alors G ne dépend pas de L , nous avons :

$$\frac{1}{V_T} \frac{\partial(\tilde{n}V_T)}{\partial t} + G \frac{\partial(\tilde{n})}{\partial L} = 0 \quad (3.42)$$

Les moments de distributions en nombre sont définis comme les $j^{\text{ième}}$ moments de la fonction de distribution en nombre d'une particule par :

$$\mu_j(L) = \int_0^{\infty} L^j n(L) dL \quad (3.43)$$

Suivant la procédure développée par Hulburt et Katz [**Hulburt et Katz, 1964**], le bilan de population est conventionnellement remplacé par un ensemble d'équations différentielles ordinaires représentant les moments de distributions en nombre :

$$\frac{d\mu_j}{dt} = jG\mu_{j-1} \quad (3.44)$$

Ainsi, on a :

$$\frac{d\mu_0}{dt} = 0 \quad (3.45)$$

- μ_0 est le moment d'ordre 0 et représente le nombre de particule, soit de cristaux, dans la solution.

$$\frac{d\mu_1}{dt} = G\mu_0 \quad (3.46)$$

- μ_1 est le moment d'ordre 1 et représente la taille des cristaux.

$$\frac{d\mu_2}{dt} = 2G\mu_1 \quad (3.47)$$

- μ_2 est le moment d'ordre 2 et représente la surface des cristaux.

$$\frac{d\mu_3}{dt} = 3G\mu_2 \quad (3.48)$$

- μ_3 est le moment d'ordre 3 et représente le volume des cristaux.

3.3.5.3.2 Prise en compte des phénomènes de nucléation, de croissance et d'agglomération.

Comme dans la section précédente, nous allons tout d'abord écrire le nouveau bilan de population dans le cristallisateur. Les cristaux ont des tailles comprises entre L et $L + dL$. Dans cette approche, nous allons considérer les mécanismes de nucléation secondaire, de croissance cristalline et d'agglomération.

Le bilan se traduit alors par :

$$\left(\begin{array}{c} \text{cristaux produits} \\ \text{par nucléation} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{cristaux produits} \\ \text{par agglomération} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{cristaux s'accumulant} \\ \text{dans le cristalliseur} \end{array} \right) +$$

$$\left[\left(\begin{array}{c} \text{cristaux de taille } L \text{ qui} \\ \text{croissent et dépassent la} \\ \text{taille } L+dL \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{cristaux de taille } L-dL \\ \text{qui croissent et atteignent} \\ \text{la taille } L \end{array} \right) \right] \quad (3.49)$$

Le bilan se traduit mathématiquement par l'équation :

$$r_N \delta(L - L^*) dLV_T dt + r_A dLV_T dt = d(\tilde{n}G) + d(\tilde{n}dLV_T) \quad (3.50)$$

Finalement, on obtient :

$$\frac{1}{V_T} \frac{\partial(\tilde{n}V_T)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial L} (\tilde{n}G) = r_N \delta(L - L^*) + r_A \quad (3.51)$$

Pour des raisons de commodités, nous allons réécrire **l'équation 3.51** sous une autre forme, en utilisant le formalisme de Tavaré [Tavare, 1995]. En effet, nous allons faire apparaître la fonction de distribution en volume. Ainsi, nous allons pouvoir écrire les fonctions de d'apparition et de disparition des particules dans un certain volume v .

Le nouveau bilan de population s'écrit alors :

$$\frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial t} + \frac{\partial G_v \tilde{n}(v)}{\partial v} = \tilde{B}(v) - \tilde{D}(v) \quad (3.52)$$

- $\tilde{n}(v)$ est la fonction de distribution en volume.
- G_v est la vitesse de croissance en volume.
- $\tilde{B}(v)$ et $\tilde{D}(v)$ représentent les mécanismes d'agglomérations.

Le symbole $\sim$ précise que l'on prend tout le volume de la cuve en considération.

$\tilde{B}(v)$ est la fonction de taux d'apparition des cristaux, définit par :

$$\tilde{B}(v) = \frac{1}{2} \beta'_{ag} \int_0^v \tilde{n}(u) \tilde{n}(v-u) du \quad (3.53)$$

$\tilde{D}(v)$ est la fonction de taux de disparition des cristaux, définie par :

$$\tilde{D}(v) = \beta'_{ag} \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(v-u) du \quad (3.54)$$

L'agglomération de deux particules de volumes u et $v-u$ dans une nouvelle particule de volume v est mathématiquement formulée par la vitesse d'apparition de la particule : $\tilde{B}(v)$. Et la vitesse de disparition de la particule de volume v par : $\tilde{D}(v)$.

Le noyau d'agglomération est défini par :

$$\beta_{ag} = \beta'_{ag} V_T \quad (3.55)$$

C'est la mesure de la fréquence de collision entre les particules de volumes u et $v-u$ qui sont susceptibles de produire une particule de volume v .

Comme à la section précédente, on définit le $j^{\text{ième}}$ moment de la fonction de distribution en volume d'une particule par :

$$\mu_j(v) = \int_0^\infty v^j n(v) dv \quad (3.56)$$

Toujours par la même procédure développée par [Hulburt et Katz, 1964], le bilan de population est défini de la façon suivante (**annexe 6**) :

$$\frac{d\tilde{\mu}_j}{dt} = G_v \left[j\tilde{\mu}_{j-1} - \left[\tilde{n}(v), v^j \right]_0^\infty \right] + \beta'_{ag} \left[\frac{1}{2} \left(\sum_{k=0}^j \binom{j}{k} \tilde{\mu}_k \tilde{\mu}_{j-k} \right) - \tilde{\mu}_0 \tilde{\mu}_j \right], j = 0, 1, 2, \dots \quad (3.57)$$

Avec les conditions initiales et limites :

$$\tilde{n}(0, v) = 0 \quad (3.58)$$

$$\tilde{n}(t, \infty) = 0 \quad (3.59)$$

$$\tilde{n}(t, 0) = \frac{\tilde{B}_0}{G_v} \quad (3.60)$$

- $\tilde{B}_0$ est la cinétique de nucléation pour un volume de cristal proche de zéro.
- $\binom{j}{k} = \frac{j!}{k!(j-k)!}$ est le coefficient binomial.

Pour modéliser le bilan de population du procédé de cristallisation, nous avons écrit les quatre premiers moments de **l'équation 3.57** :

$$\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} = \tilde{B}_0 - \frac{1}{2} \beta'_{ag} \tilde{\mu}_0^2 \quad (3.61)$$

- $\tilde{\mu}_0$ est le moment d'ordre 0 et représente le nombre de cristaux dans la solution.

$$\frac{d\tilde{\mu}_1}{dt} = G_v \tilde{\mu}_0 \quad (3.62)$$

- $\tilde{\mu}_1$ est le moment d'ordre 1 et représente le volume total de cristaux dans la solution.

$$\frac{d\tilde{\mu}_2}{dt} = 2G_v \tilde{\mu}_1 + \beta'_{ag} \tilde{\mu}_1^2 \quad (3.63)$$

$$\frac{d\tilde{\mu}_3}{dt} = 3G_v \tilde{\mu}_2 + 3\beta'_{ag} \tilde{\mu}_1 \tilde{\mu}_2 \quad (3.64)$$

- Les deux moments $\tilde{\mu}_2$ et $\tilde{\mu}_3$ peuvent être utilisés dans le modèle pour prédire la distribution en taille des cristaux contenue dans la masse cuite.

Avant d'arriver aux expressions ou modèles retenus par la suite (**chapitres 4 et 5**), nous avons opté pour différentes approches théoriques. Nous noterons que toutes ces approches sont toutes simplificatrices du fait du degré d'impureté de la matière industrielle (massecuite C) utilisée.

3.3.6 Expression de la sursaturation de la solution.

Dans cette section, nous allons tâcher de résumer les connaissances acquises et d'avoir une expression la plus complète de la sursaturation dans une solution de saccharose impure. Cette expression est utilisée dans tous nos modèles de cristallisation.

Pour exprimer la sursaturation de la solution que nous noterons β , nous avons choisi la définition proposée par Claasen [**Honing, 1959**] :

$$\beta = \frac{100 - MS}{MS} \frac{S}{E} \frac{1}{CS} \quad (3.65)$$

- rappel : $\frac{S}{E} = \frac{Bx_{LM} Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}}$.

Ainsi pour résumer, nous avons utilisé l'expression suivante pour estimer la sursaturation des solutions techniques d'usine :

$$\beta = \frac{100 - MS}{MS} \frac{Bx_{LM} Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}} \frac{1}{1 - 0,088 \frac{Bx_{LM} (1 - Pte_{LM})}{1 - Bx_{LM}}} \quad (3.66)$$

La littérature scientifique donne de nombreuses expressions de la sursaturation des solutions sucrées. La variabilité de la composition des solutions sucrées fait que ces expressions ne sont valides que dans le contexte cité. Vavrincez [**Vavrincez, 1978-1979**] fait un bilan de tous les travaux réalisés dans ce domaine et donne comme expression :

$$CS = a \frac{NS}{E} + b + (1 - b) e^{-c \frac{NS}{E}} \quad (3.67)$$

Nous avons aussi utilisé cette expression pour définir le coefficient de saturation, et plus particulièrement nous avons utilisé l'expression de la sursaturation utilisée par Georgieva [Georgieva et al, 2003]. Nous avons utilisé les valeurs moyennes pour les paramètres a, b et c (section 1.2.1.1). L'expression de la sursaturation définie par Georgieva est la suivante :

$$\beta = \frac{\frac{Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}}}{\frac{MS}{100 - MS}} \frac{1}{CS} \quad (3.68)$$

$$\circ \text{ avec } CS = 0,1 \frac{Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}} (1 - Pte_{LM}) + 0,4 + 0,6 \exp \left(-0,24 \frac{Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}} (1 - Pte_{LM}) \right)$$

3.3.7 Modélisations du taux de production locale des cristaux.

Cette section est divisée en deux parties. La première partie traite des lois de cinétiques choisies pour la modélisation de la cristallisation. Ces lois conduisent à un ensemble de données utiles à la connaissance du « milieu réactionnel ». Ainsi, nous pourrions intégrer les différents bilans de matières, d'énergie et de population.

Les lois cinétiques sont introduites dans le bilan de population pour modéliser l'évolution des cristaux au sein du cristalliseur. Comme vu précédemment à la section 3.3.5.3, les trois équations 3.36, 3.37 et 3.38 sont réajustées suivant les cas les plus ou moins complexes considérés pour les cinétiques. En effet, le bilan de population devient plus ou moins complexe, si l'on considère une ou plusieurs cinétiques dans le milieu étudié.

La deuxième partie de cette section est consacrée à la modélisation du taux de production locale des cristaux dans la solution sans faire appel à l'utilisation du bilan de population. Cette méthode est une approche simplifiée, elle est basée sur un calcul différentiel de la dérivée de la masse des cristaux sur un temps très court par rapport au temps d'une montée.

3.3.7.1 Les lois cinétiques choisies pour la modélisation de la cristallisation.

3.3.7.1.1 Modèles de la cinétique de croissance.

Modèle classique :

Pour modéliser la cinétique de croissance des cristaux, notre choix s'est porté tout d'abord sur un modèle classique à deux paramètres, représenté par une loi en puissance. Cette loi comme les autres lois de cinétiques, fait partie de la modélisation de la cuite discontinue C,

développée à la **section 3.3.4**. En effet, cette loi donnée par le bilan de matières est liée à l'évolution de la masse des cristaux au cours de la cristallisation :

$$R_G = \frac{1}{A_T} \frac{dm_c}{dt} = k_G (\beta - 1)^g \quad (3.69)$$

- R_G est la vitesse globale de croissance [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$].
- A_T est la surface totale offerte par les cristaux [m^2].
- m_c est la masse des cristaux [kg].
- k_G est la constante cinétique globale, déterminé par optimisation.
- β est la sursaturation de la masse cuite.
- g est l'ordre cinétique global, déterminé aussi par optimisation.

L'équation 3.69 fait intervenir la surface offerte par les cristaux. Etant donné que le nombre de cristaux reste constant au cours de la cristallisation (sous hypothèse : pas d'attrition et d'agglomération), la surface des cristaux peut être exprimée selon la masse des cristaux par la relation :

$$A_T = \frac{\Phi_s N^{1/3}}{(\rho_c \Phi_v)^{2/3}} m_c^{2/3} \quad (3.70)$$

N représente le nombre de cristaux contenus dans la masse cuite et il peut être approché par la relation :

$$N = \frac{m_c}{\rho_c \Phi_v \bar{L}^3} \quad (3.71)$$

- $\bar{L}$ est la taille moyenne des cristaux [m].

Nous pouvons ainsi remplacer **l'équation 3.6** par :

$$\frac{dm_c}{dt} = A_T R_G = \frac{\Phi_s N^{1/3}}{(\rho_c \Phi_v)^{2/3}} m_c^{2/3} k_G (\beta - 1)^g \quad (3.72)$$

Les valeurs des paramètres : facteurs de forme, masse volumique du cristal et nombre de cristaux, qui interviennent dans **l'équation 3.57**, sont données par Bubnik et Kadlec [**Bubnik et Kadlec, 1996**].

Φ_s	Φ_v	$\rho_c [\text{kg.m}^{-3}]$	$N [\text{nb}]$
5,02	0,75	1580	4.10^{11}

Tableau 3.2 : valeurs des différents paramètres.

R_G est la vitesse de croissance exprimée selon le taux de production locale de solide cristallisé. De manière générale, l'ordre g est compris entre 1 et 2. Un ordre proche de 1 étant le plus courant [Tavare, 1995] dans les cas de cuites A et B. En effet, en cuite C les valeurs de l'ordre de la cinétique sont plus importantes du fait que les massecuites utilisées contiennent plus d'impuretés. Comme nous l'avons vu au premier chapitre, il est possible de représenter la cinétique par la vitesse globale linéaire G (équation 1.34) liée à l'augmentation d'une dimension caractéristique du cristal. En fait, R_G est relative à la surface totale des cristaux tandis que G est relatif au nombre total de cristaux.

Autres types de modèles :

Plusieurs travaux (tableau 3.3) ont montré que la modélisation de la cinétique de croissance linéaire des cristaux était plus complexe que celle présentée par l'équation 3.69. En effet, la vitesse de croissance des cristaux est une grandeur très difficile à mesurer. De plus, les solutions techniques en usine sont très impures (solutions utilisées en troisième jet), et de ce fait, les lois régissant la vitesse de cristallisation sont très complexes.

Les équations donnant l'expression des cinétiques de croissance dépendent des variables :

- pureté de la liqueur mère,
- température,
- sursaturation,
- viscosité ou conductivité.

Ceci est en accord avec les travaux faits par Hugot [Hugot, 1987].

Cette observation est juste, car dans l'équation 3.72 la constante cinétique globale k_G dépend de la température, de la taille du cristal, des conditions hydrodynamiques et des impuretés. L'influence de la température est exprimée par une relation d'Arrhenius si le domaine de variation de la température est important au cours de la cristallisation. L'intensité de l'agitation et la fraction en solide dans le cristalliseur peuvent être explicitement prises en compte. L'équation 3.72 est alors modifiée et conduit à un modèle plus détaillé. Nous avons regroupé dans le tableau 3.3 quelques expressions de cinétiques de croissance des cristaux utilisées par différents laboratoires dans le monde.

Auteurs	Corrélation
[Van Hook, 1973 et 1974]	$V = K(T).(\sigma - 1)$ σ : sursaturation. $K(T)$: constante dépendante de la température T.
[Wright et White, 1974]	$G = P_1.(OS - P_2). \exp\left(-\frac{E_{act}}{R} \left(\frac{1}{T + 273,16} - \frac{1}{333,16}\right)\right). \exp\left(P_3 \cdot \frac{I}{E}\right)$ G : exprimée en $\mu\text{m.h}^{-1}$ $OS = \beta - 1$ I : masse impuretés (Kg) E : masse eau (Kg) P_1 : $7420 \mu\text{m.h}^{-1} \pm 250$ P_2 : $-0,005 \pm 0,006$ P_3 : $-1,75 \pm 0,03$ E_{act} : énergie d'activation
[Gros, 1979], [Maurandi et Rossi, 1975]	$V = 6,12.T^2 \cdot \frac{K^{20.(\beta-1)}}{\eta^2} . (\beta - 1) \text{ exprimée en } \text{mg.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$ K : facteur de forme η : viscosité (poise)
[Ducloux, 1987]	$V = k_0 \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{R.T}\right) \cdot \exp\left(-\alpha \frac{NS}{E}\right) \cdot (\beta - 1)^2$ K_0, α : paramètres à ajuster expérimentalement E_a : énergie d'activation NS : masse des non sucres (Kg) E : masse eau (Kg)
[Feyo de Azevedo et al, 1993]	$G = 10^2 \cdot \exp\left[-\frac{57000}{R.(T + 273)}\right] \cdot (\beta - 1) \cdot \exp(-8.(1 - P_{sol})) \cdot \left(1 + 2 \frac{V_c}{V_m}\right)$ G : vitesse de croissance linéaire (m.s^{-1}) T : température ($^{\circ}\text{C}$) β : sursaturation P_{sol} : pureté de la liqueur mère V_c : volume des cristaux (m^3) V_m : volume masse cuite (m^3)
[Burzawa et Heitz, 1995]	$V = (\sigma - 1).C_s \cdot \frac{1}{\frac{1}{K_d} + \frac{1}{K_r}}$ σ : sursaturation. C_s : concentration de liqueur mère en surface du cristal, à sursaturation. K_d : coefficient de transfert de matière au travers de la couche de référence d'épaisseur δ.

	K_r : coefficient de transfert de masse dû à la réaction de surface.
[Burzawa et Heitz, 1995]	$\frac{dm}{d\theta} = K.S.(\sigma - 1).f\left(T, \frac{NS}{E}\right)$ m : la masse de sucre cristallisé. θ : le temps. K : la constante de vitesse de cristallisation dépendante de la diffusion et de la réaction de surface. S : surface d'échange (c'est la surface des cristaux assimilés à une sphère). σ : sursaturation de l'eau mère. $f(T, NS/E)$: fonction montrant la dépendance de la cristallisation de la température (T) et de la pureté de l'eau mère (NS/E).
[Guimarães et al, 1995]	$R_G = 1,52.10^{-4} \Delta C^{1.28}$ à $T = 40^\circ C$ ΔC : exprimée en (Kg.Kg ⁻¹ eau) R_G : vitesse globale (Kg.m ⁻² .s ⁻¹)
[Mathlouthi et Reiser, 1995]	$R_c = \frac{K.(\sigma - 1)}{\eta}$ K : constante. σ : sursaturation. η : viscosité.
[Bubnik et Kadlec, 1996]	$m_g = k_0 \cdot \exp\left[k_t \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T+t}\right)\right] \cdot \exp\left(-k_N \cdot \frac{NS}{E}\right) \cdot (\beta - 1)$ $k_0 = 0,02356$ $k_t = 6796,2$ $k_N = 1,52$ m_g : exprimée en (g.m⁻².min⁻¹)
[Mathlouthi et al, 1996]	$V = \frac{10^{0,0183} \cdot T \cdot C_0 \cdot (\beta - 1)^{1,5}}{\eta^{0,731}}$ C_0 : concentration à l'équilibre (Kg.Kg⁻¹ eau) T : température (K) η : viscosité (mPa.s) V : exprimée en (mg.m⁻².s⁻¹)
[Pautrat et al, 1996]	$V_c = CR(i) - CR(i - 1) / [S(i - 1) \cdot 60] \cdot [q(i) - q(i - 1)]$ V_c : vitesse de cristallisation. $CR(i)$: poids de cristaux dans la masse cuite à l'instant i. $CR(i-1)$: poids de cristaux dans la masse cuite à l'instant i-1.

	S (i) : surface des cristaux à l'instant i. q(i) – q(i-1) : intervalle de temps.
[Lauret, 1998]	$R_G = k_G (\beta - 1)^g \left(\frac{100 - CC}{CC} \right)^e \exp(\alpha(1 - P_{lm}))$ CC : teneur en cristaux dans le cristalliseur P_{lm} : pureté de la liqueur mère
[Georgieva et al, 2003]	$G = k_G \exp \left[-\frac{57000}{R.(T + 273)} \right] . (\beta - 1). \exp(-13,863(1 - P_{sol})). \left(1 + 2 \frac{V_c}{V_m} \right)$ G : vitesse de croissance linéaire (m.s⁻¹) T : température de la masse cuite (°C) β : sursaturation P_{sol} : pureté de la liqueur mère V_c : volume des cristaux (m³) V_m : volume masse cuite (m³)

Tableau 3.3 : diverses corrélations exprimant la cinétique de croissance des cristaux.

Dans les cas de la modélisation de la cinétique de croissance linéaire des cristaux, nous avons repris l'expression de quatre modèles donnés dans la littérature. En effet, nous avons modifié et identifié les paramètres cinétiques des modèles donnés par **[Lauret, 1998]**, **[Tahal, 2000]**, **[Georgieva et al, 2003]** et le modèle classique à deux paramètres, **équation 3.69**.

Modèle proposé par [Lauret, 1998] :

$$R_G = k_G (\beta - 1)^g \left(\frac{100 - CC}{CC} \right)^e \exp(\alpha(1 - P_{lm})) \quad (3.73)$$

Modèle proposé par [Tahal, 2000] :

$$G = P_1 \exp(P_3 \frac{I}{E}) \exp(-\frac{E_{act}}{R} (\frac{1}{T + 273,16} - \frac{1}{333,16})) (OS - P_2) \quad (3.74)$$

Modèle proposé par [Georgieva et al, 2000] :

$$G = k_G \exp \left[-\frac{57000}{R(T_{mc} + 273)} \right] (\beta - 1)^g \exp(-\alpha(1 - P_{te_{lm}})) \left(1 + 2 \frac{V_c}{V_{mc}} \right) \quad (3.75)$$

Les résultats de ces identifications sont aux **chapitres 4 et 5**. Il est à noter que les valeurs trouvées sont différentes de celles données par ces auteurs car les paramètres ont été identifiés pour des cuites A ou B.

3.3.7.1.2 Modèles des cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération.

Dans cette section nous allons prendre en considération les cinétiques des trois phénomènes que nous supposons exister en cristallisation industrielle : la cinétique de nucléation secondaire, la cinétique de croissance linéaire et enfin la cinétique d'agglomération.

Lors de nos simulations, nous nous sommes servi de plusieurs expressions de cinétiques de croissance linéaires. En effet, nous avons utilisé les expressions des **équations 3.73, 3.74 et 3.75**.

Pour les expressions des cinétiques de nucléation et d'agglomération, nous avons utilisé celles de Georgieva [Georgieva et al, 2003], avec quelques modifications.

$$\tilde{B}_0 = k_n 10^{12} G^n \left(\frac{\tilde{\mu}_1}{\Phi_v V_{mc}} \right)^e V_{mc} \quad (3.76)$$

$$\beta' = k_{ag} G^{ag} \left(\frac{\tilde{\mu}_1}{V_{mc}^2} \right) \quad (3.77)$$

Une synthèse des différentes approches de modélisations est donnée au **chapitre 4**, la **figure 4.12** représente les différents modèles de connaissance paramétriques développés pour l'identification du procédé de cristallisation C.

3.3.7.2 Calcul du taux de production locale des cristaux par méthode différentielle.

Cette nouvelle approche, va permettre d'avoir la valeur du taux de production locale de cristaux dans la masse cuite sans avoir à écrire le bilan de population. Le calcul est simple comme vu à la **section 3.3.4.1.4**, il est basé sur les variations des valeurs des masses des cristaux dans des laps de temps très courts. Ainsi, nous pouvons de proche en proche avoir le taux de production locale des cristaux au cours d'une montée.

En utilisant la méthode différentielle pour modéliser la cristallisation, on écrit que le taux de production locale des cristaux est égale à :

$$q_{cris} = \frac{\Delta m_c}{\Delta t} \quad (3.78)$$

- Δm_c représente la différence de masse de cristaux prise à deux instant très proches.

Nous pouvons alors écrire le taux de production locale des cristaux au cours de la cristallisation sous la forme simplifiée suivante :

$$q_{cris} = \frac{m_c(t + \Delta t) - m_c(t)}{\Delta t} \quad (3.79)$$

- avec $m_c(t) = CC(t)m_{mc}(t)$, $CC(t)$ représente la teneur en cristaux dans la solution à l'instant t et $m_{mc}(t)$ représente la masse totale de matière contenue dans le cristalliseur à l'instant t .

3.4 Evaluation des performances des modèles proposés.

Dans cette section, nous allons généraliser et conceptualiser la méthode à mettre en œuvre pour évaluer les performances des modèles du procédé de cristallisation. Il est à noter que la cristallisation industrielle du saccharose fait intervenir divers types de processus cinétiques, et qu'elle dépend aussi de plusieurs paramètres de modélisation. En fait, les paramètres des modèles du procédé de cristallisation de par leurs innombrables variabilités sont forts complexes à estimer.

Comme vu dans les sections précédentes, les performances de ces modèles dépendent de beaucoup de facteurs : processus cinétiques, conditions hydrodynamiques, mode d'opération choisi (refroidissement, évaporation, etc.), géométrie de l'appareil et bien d'autres.

Une approche rationnelle est de décrire les différentes lois de conservation par le biais de l'écriture des différents bilans de matières, d'énergie et de population. Ces bilans sont complétés par la description des cinétiques des différents processus ainsi que par les lois thermodynamiques d'équilibre.

La **figure 3.7** illustre la procédure générale permettant d'évaluer les performances de ces modèles. Cet algorithme permet également, au besoin, de mieux comprendre le comportement du procédé.

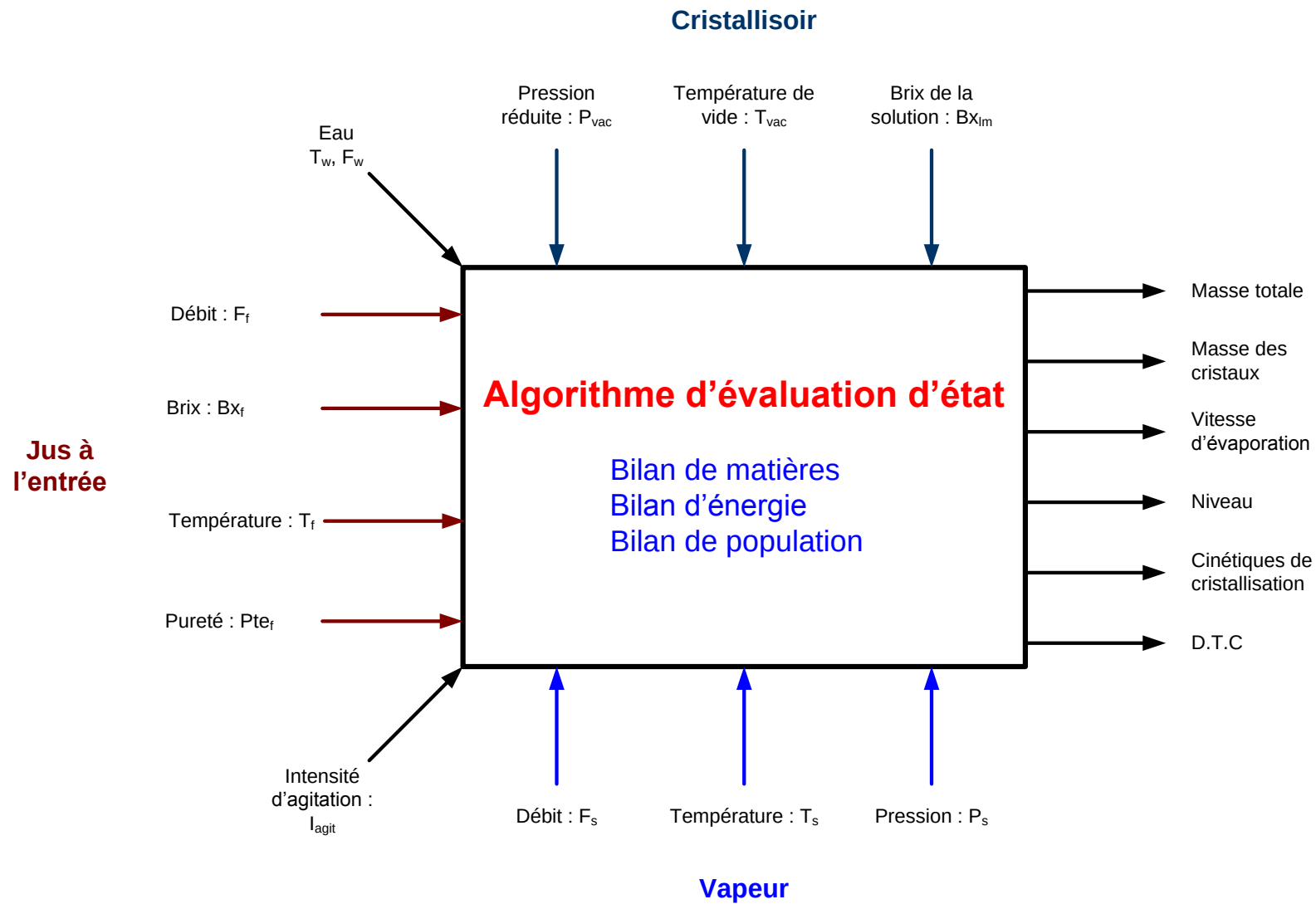


Figure 3.7 : Représentation des entrées et des sorties de l'algorithme d'évaluation.

3.5 Conclusion.

Dans ce chapitre, nous avons voulu explorer plusieurs stratégies de modélisation dans l'objectif de faire apparaître un formalisme le mieux adapté au contexte industriel. En effet, suivant les diverses hypothèses posées, trois niveaux de modélisation ont été proposés. Nous avons aussi mis en place deux approches pour résoudre le bilan de population. Pour cela, nous avons utilisé diverses expressions de cinétiques dans la littérature.

Une vision différente de celle utilisée classiquement, c'est-à-dire utilisation du bilan de population, a été mis en place pour calculer le taux de production locale des cristaux au cours de la cristallisation. Pour ce faire, nous avons utilisé une méthode différentielle basée sur l'évolution de la masse des cristaux à des intervalles de temps très court par rapport au temps mis pour réaliser une montée.

Nous avons aussi généralisé et conceptualisé la méthode pour évaluer les performances du modèle du procédé de cristallisation du saccharose. La cristallisation industrielle du saccharose, comme nous avons pu le voir dans ce chapitre, fait intervenir plusieurs processus cinétiques. De plus elle est dépendante pour chaque niveau de cristallisation (A, B ou C) de plusieurs paramètres de modélisation. Ces paramètres auront des valeurs très différentes suivant que l'on soit en cuite A ou en cuite C. Tous les paramètres des modèles du procédé de cristallisation, de par leurs variabilités d'une cuite à l'autre, sont très difficiles à estimer. De ce fait, les généralisations de modèles sont, elles aussi, difficiles à réaliser si ces paramètres de modélisation sont mal estimés.

Les performances des modèles du procédé de cristallisation dépendent de beaucoup de facteurs : processus cinétiques, conditions hydrodynamiques, mode d'opération choisi, géométrie de l'appareil et bien d'autres.

*« La connaissance s'acquiert par l'expérience,
Tout le reste n'est que de l'information »*

*Albert Einstein,
1879-1955*

CHAPITRE 4

Modélisation du taux de production locale de cristaux

4	MODELISATION DU TAUX DE PRODUCTION LOCALE DE CRISTAUX.	128
4.1	Introduction.	128
4.2	Nécessité des estimations paramétriques industrielles.	128
4.2.1	Hypothèses de modélisations.	129
4.2.2	Un système d'acquisition de données performant.	131
4.3	Difficultés de modélisation des cinétiques.	131
4.3.1	Influences des grandeurs physico-chimiques.	131
4.3.2	Processus dominant dans le cas de la cristallisation du saccharose en milieu industriel.	132
4.4	Démarche suivie pour la mise en place des modèles.	133
4.4.1	Les bases de données industrielles.	134
4.4.1.1	Les cuites utilisées.	134
4.4.1.2	Zone d'observation.	135
4.4.1.3	Calcul de la masse des cristaux dans le cristalliseur C540.	136
4.4.1.4	Filtrage des données industrielles.	139
4.4.2	Les diverses structures utilisées.	142
4.4.3	Estimation des paramètres du modèle.	145
4.4.3.1	Utilisation des méthodes de programmation non linéaire.	145
4.4.3.2	Schéma d'estimation.	145
4.4.3.3	Algorithmes d'optimisation des paramètres.	148
4.4.3.4	Choix des valeurs initiales.	149
4.4.4	Evaluations des erreurs de modélisations.	150
4.5	Modèle de connaissance paramétrique : modèle M1.	150
4.5.1	Introduction.	150
4.5.2	Modèle de connaissance du q_{cris} à l'aide du modèle de la cinétique de croissance.	151
4.5.3	Modélisation du q_{cris} à partir de modèles empiriques des cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération.	154
4.6	Représentation du taux de cristaux q_{cris} par un modèle aux différences finies temporelles : modèle M2.	159
4.6.1	Introduction.	159
4.6.2	Modélisation par différences finies temporelles du débit massique de cristaux.	159
4.7	Modélisation du q_{cris} à l'aide de modèles hybrides : modèle M3.	162
4.7.1	Introduction.	162
4.7.2	Position du problème.	162
4.7.3	Modélisations des cinétiques par réseaux de neurones.	165
4.7.4	Principe de la modélisation neuronale.	166
4.7.5	Modélisations hybrides des différentes cinétiques.	169
4.7.5.1	Structures des modèles Hybrides Basés sur de la Connaissance (HBC).	169
4.7.5.2	Procédure d'apprentissage hybride.	170
4.7.5.3	Modélisation de la cinétique de croissance linéaire.	172
4.7.5.3.1	Résultats de la phase d'apprentissage.	173
4.7.5.3.2	Résultats de la phase de généralisation.	174
4.7.5.4	Modélisation des cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération.	176
4.7.5.4.1	Résultats de la phase d'apprentissage.	176
4.7.5.4.2	Résultats de la phase de généralisation.	177
4.7.5.5	Résumé sur les modélisations hybrides des différentes cinétiques.	180
4.8	Synthèse des résultats de modélisation.	181

4.9	<i>Conclusion.....</i>	<i>183</i>
-----	------------------------	------------

4 Modélisation du taux de production locale de cristaux.

4.1 Introduction.

Ce chapitre propose différentes approches pour la modélisation du taux de variation de la masse des cristaux dans la masse cuite. Dans l'objectif d'améliorer le rendement du procédé de cristallisation C à l'usine de Bois Rouge, nous nous efforçons de mieux connaître et de maîtriser les divers phénomènes pouvant exister dans les solutions industrielles. En effet, dans les cristallisoirs industriels, surtout en milieu très impur (troisième jet), il est difficile de tout maîtriser, car plusieurs phénomènes peuvent intervenir simultanément (nucléation, croissance et l'agglomération) lors de la cristallisation.

En cristallisation C, le plus important c'est le rendement en cristaux en fin de cuite, ce qui requiert l'épuisement maximal du saccharose à l'état liquide dans la masse cuite. En effet, la forme des cristaux importe peu car ils vont être refondus et réintroduits dans le procédé des trois masses cuites utilisé à l'usine de Bois Rouge pour faire du sucre A ou B, *figure 2.2*.

Dans l'objectif d'améliorer le procédé, nous avons adopté trois approches différentes pour modéliser le taux de variation de la masse des cristaux dans le cristallisoir.

Dans la première partie, nous proposons plusieurs stratégies d'identification de cinétiques utilisées pour la modélisation de la nucléation, de la croissance et de l'agglomération. Nous avons utilisé des formules empiriques représentant ces cinétiques et nous avons identifié les paramètres cinétiques et énergétiques associés à chaque expression à partir de données industrielles.

La deuxième partie donne une autre approche par un calcul du taux de variation de la masse des cristaux et ne fait pas appel au calcul des cinétiques. Cette méthode est basée sur le calcul de la variation de la masse des cristaux dans la solution à des intervalles de temps très courts.

Enfin, dans la troisième partie, nous présentons une stratégie de modélisation des cinétiques basée sur une approche hybride neuronale. Cette approche a déjà fait ses preuves par le passé [Lauret, 1998], [Georgieva et al, 2003] et a donné des résultats très satisfaisants. En effet, la modélisation hybride des diverses cinétiques est plus flexible que celle faite classiquement.

4.2 Nécessité des estimations paramétriques industrielles.

Dans la littérature, il est courant d'observer que l'estimation des paramètres des cinétiques que nous souhaitons identifier, se fait en premier lieu dans des cristallisoirs pilotes dans les laboratoires de recherches [David et al, 1991], [Klein et Févotte, 1995], [Févotte et Klein, 1995], [Chung et al, 2000], [Takiyama et Matsuoka, 2001].

Les diverses cinétiques qui peuvent se produire dans les différents types de cristallisoirs pilotes fournissent des informations très importantes sur le dimensionnement et la conception du futur cristallisoir industriel. Ces cinétiques permettent aussi d'évaluer les performances du procédé de cristallisation considéré.

Toutes les approches faites en laboratoire ne peuvent être une image conforme du milieu industriel. En effet, il est difficile de simuler les mêmes conditions hydrodynamiques que celles existant dans les appareils industriels, de même pour les encrassements des conduits et les débits d'eau évaporée lors de la cristallisation. Il est important de noter que les modèles établis en laboratoire sont difficilement applicables directement en milieu industriel : il faudra souvent ajuster les paramètres identifiés pour se rapprocher des conditions expérimentales industrielles.

A moins d'être en mesure de réaliser les expérimentations dans les mêmes conditions que celles rencontrées en milieu industriel [Tavare, 1995]. De ce fait, il est préconisé de faire toute l'étude d'estimation des paramètres cinétiques avec des solutions techniques utilisées en milieu industriel pour effectuer les phases de croissance cristalline. Ceci est tout à fait légitime, car les impuretés contenues dans les solutions techniques jouent un rôle très important sur les cinétiques et par conséquent sur les propriétés des cristaux obtenus en fin de cristallisation [Klein et al, 1989], [Vaccari et Mantovani, 1995].

Toutefois, cette identification industrielle préconise au moins deux pré requis. Premièrement, nous devons faire des *hypothèses simplificatrices* concernant les lois cinétiques utilisées. Deuxièmement, les identifications des modèles reposent sur la quantité et la qualité *des données collectées* en milieu industriel. En ce qui nous concerne, de part les performances du système d'acquisition, nous pouvons dire que l'identification des cinétiques est tout à fait réalisable.

4.2.1 Hypothèses de modélisations.

De façon générale, les conditions industrielles nous obligent à faire des hypothèses simplificatrices nous permettant d'identifier les modèles cinétiques. En effet, de part les dimensions du cristallisoir industriel C540 de l'usine de Bois Rouge (*chapitre 2*), il est évident qu'il existe au sein de la solution un gradient de température dû à l'effet de la pression hydrostatique. La température n'étant pas homogène dans tout le cristallisoir, ceci fait apparaître un gradient de sursaturation au sein de la masse cuite. Il en résulte logiquement des dispersions des cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération à la surface de la masse cuite, au niveau des faisceaux et au fond du cristallisoir. Il est tout à fait légitime de partitionner le cristallisoir en plusieurs zones de travail, c'est-à-dire de mailler en volume la cuve pour avoir plusieurs modèles de cinétiques. Cette idée de modélisation par maillage se rapproche davantage des phénomènes réels existant au sein de la solution. Aussi, il est important de souligner que le maillage en volume du cristallisoir alourdit les modèles de la cuite, et que la mise en ligne des résolutions serait à exclure des objectifs fixés. Toutefois, nous allons supposer que l'agitation continue de la masse cuite diminue fortement ces gradients de température et de sursaturation dans le milieu. Il est à noter qu'à l'usine de Bois

Rouge, l'agitateur utilisé sur le cristalliseur C540 est surdimensionné par rapport au besoin requis.

Nous définissons ainsi les hypothèses que nous jugeons comme simplificatrices pour nos diverses approches de modélisation des cinétiques potentiellement mises en jeu dans la solution.

1. Tous les cristaux de saccharose dans la masse cuite croissent à la même vitesse, et cela, quelle que soit leur taille (l'hypothèse de Mac Cabe est prise en considération).
2. Il n'y a pas de phénomène de dispersion des cinétiques de croissances au sein de la solution : la croissance des cristaux se fait idéalement, c'est-à-dire que chaque cristal croît de la même façon et à la même vitesse suivant les trois dimensions de l'espace.
3. Grâce à une agitation performante, la solution est homogène en température et en sursaturation.

En abordant la modélisation des cinétiques, nous avons suivi deux types d'approches. La première a consisté à ne pas prendre en considération les processus de nucléation et d'agglomération qui pourraient intervenir dans la solution. Ainsi, le nombre de cristaux introduits dans la solution par ensemencement ne varie pas au cours de la cristallisation. Cette approche semble raisonnable en ce qui concerne les nucléations primaires homogène et hétérogène, mais l'est beaucoup moins pour la nucléation secondaire. Il est tout à fait concevable que les cristaux introduits par ensemencement aient collé à leur surface des microcristaux, ce qui engendrerait une nucléation secondaire apparente.

Pour palier cela, nous avons opté pour une deuxième approche qui consiste, quant à elle, à prendre en considération tous les mécanismes de nucléation, de croissance et d'agglomération supposés se produire au sein de la solution (*figure 4.1*).

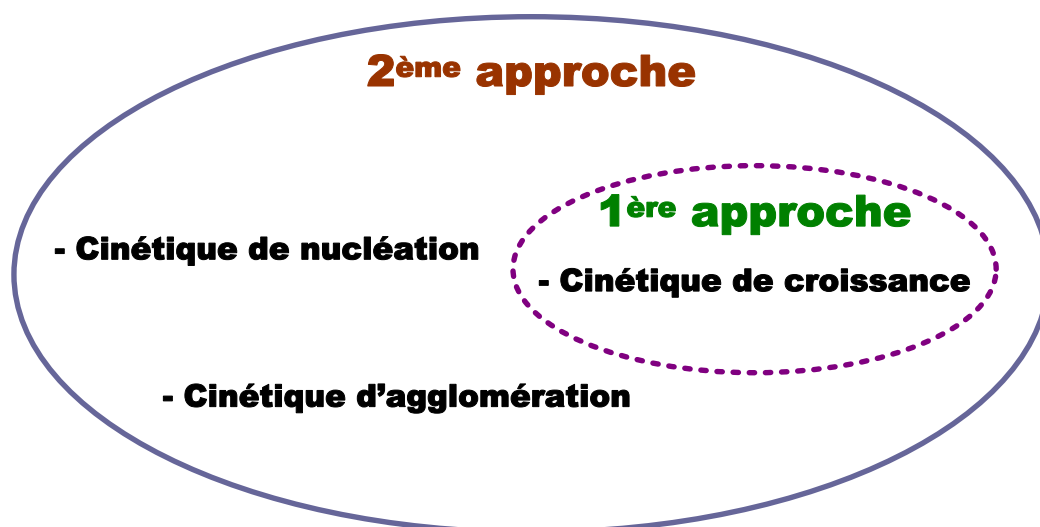


Figure 4.1 : deux types d'approches pour les modélisations des cristallisations C à l'usine de Bois Rouge.

Pour les deux approches, nous n'avons pas pris en considération l'existence de processus de brisure, car ce processus intervient sur des cristaux ayant une taille moyenne d'à peu près 200 micromètres de diamètre. En cuite C à l'usine de Bois Rouge, sur la C540, il est rare d'observer des cristaux de taille moyenne supérieure à 200 micromètres, donc *a priori* aucun risque qu'il y ait génération de brisure.

Grâce aux trois premières hypothèses, suivant l'approche considérée, les cinétiques mises en jeu dans la solution sont supposées suffisantes. De part ces choix de modélisation, il est évident que les paramètres cinétiques sont « affectés » de valeurs moyennes, et cela nous suffit grandement pour le développement d'un modèle de simulation du procédé de cristallisation de troisième jet à l'usine de Bois Rouge.

4.2.2 Un système d'acquisition de données performant.

Bien que nous ayons fait des hypothèses de modélisation, l'étude des cinétiques n'est véritablement intéressante à long terme que dans les cas où nous pouvons les envisager en ligne.

Toutefois, ces identifications de modèles basées sur des données industrielles ont nécessité que tout le procédé de cristallisation soit correctement instrumenté, et bien sûr que le système d'acquisition de données soit performant. Nous avons pour cela, décrit toute l'instrumentation du procédé de cristallisation de la cuite C540 ainsi que le système d'acquisition au **chapitre 2**. Dans cette section, nous insistons sur le fait que les performances du système d'acquisition permettent la collecte d'un grand nombre d'informations expérimentales. En effet, toutes les mesures nécessaires à la modélisation des cinétiques ont été collectées et enregistrées, sur le serveur placé en usine, avec une période d'échantillonnage moyenne de 1,7 secondes.

Ces données industrielles collectées nous garantissent l'identification de modèles satisfaisants des phénomènes potentiellement mises en jeu au sein de la cuite C.

4.3 Difficultés de modélisation des cinétiques.

4.3.1 Influences des grandeurs physico-chimiques.

Les cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération sont des grandeurs difficilement mesurables et modélisables. En effet, les lois qui régissent ces cinétiques sont loin d'être simples en particulier en milieu impur, voir très impur quand il s'agit de cuites de troisième jet. Ces phénomènes dépendent de grandeurs physico-chimiques interdépendantes qui sont en fait les variables des divers modèles. Ces variables sont principalement : la sursaturation, la température, la pureté de la liqueur mère, la viscosité et l'intensité d'agitation de la solution pour certains modèles cités dans la littérature [Palwe et al, 1985].

L'analyse de l'influence des paramètres commence par celle de la sursaturation de la solution, car elle constitue la force motrice de la cristallisation des cristaux de saccharose. Comme vu

au **chapitre 1**, il existe des valeurs de sursaturation relativement élevées formant une frontière à ne pas dépasser, sous peine de formation spontanée de germes cristallins au sein de la solution. De plus, une solution en état de sursaturation est caractérisée par une viscosité élevée, ce qui entrave le processus de diffusion du soluté vers le cristal.

Une température élevée de la solution aura pour effet, de faire diminuer la viscosité du milieu et de favoriser la vitesse de diffusion du soluté vers le cristal en faisant augmenter le coefficient de diffusion. Cette augmentation de la température diminuera la valeur de la sursaturation de la solution ainsi que par la même occasion les cinétiques existant dans le milieu. Il est à noter que globalement, une augmentation de la température conduit à une augmentation des cinétiques [Mathlouthi et Reiser, 1995].

Une très grande quantité d'impuretés dans les solutions a pour effet de diminuer la cinétique de croissance. En effet, ces impuretés vont faire augmenter la viscosité de la solution, et *a fortiori*, faire diminuer le phénomène de diffusion.

L'agitation de la solution permet de renouveler la très fine couche de solution (le film) à la surface des cristaux, ce qui représente, en fait, le gradient de concentration en soluté (**figure 1.9**). Ainsi, l'agitation favorise les transferts de matière et de chaleur dans la solution.

Les différentes lois utilisées pour modéliser les cinétiques (modèles empiriques) en milieu impur (troisième jet), sont loin d'être connues. En effet, dans la littérature il n'existe que très peu voir pas du tout de références bibliographiques dans ce domaine. Le fait que les grandeurs physico-chimiques soient interdépendantes, rend difficile la modélisation des cinétiques. La complexité et la non linéarité des modèles viennent du fait que les solutions étudiées sont très impures.

De ces états de fait, ils résultent que la cristallisation industrielle, surtout de troisième jet, est une subtile combinaison de compromis permettant d'adapter au mieux les lois générales régissant la cristallisation et un certain savoir-faire des expérimentateurs.

4.3.2 Processus dominant dans le cas de la cristallisation du saccharose en milieu industriel.

La plupart des auteurs s'accordent à dire que, dans les conditions opératoires industrielles, le processus de diffusion est prédominant [Chen, 1985], [Guimarães et al, 1995], [Bubnik et Kadlec, 1996], [Mathlouthi et Genotelle, 1998]. Selon Mathlouthi, la zone de température allant de 45°C à 50°C est celle où les deux processus, diffusion et intégration, sont équivalents (**figure 4.2**). En effet, si nous devons réaliser un modèle dans cette zone, il faudra prendre en considération ces deux phénomènes, en intégrant dans les lois cinétiques les paramètres relatifs à la diffusion et à l'intégration du soluté vers le cristal.

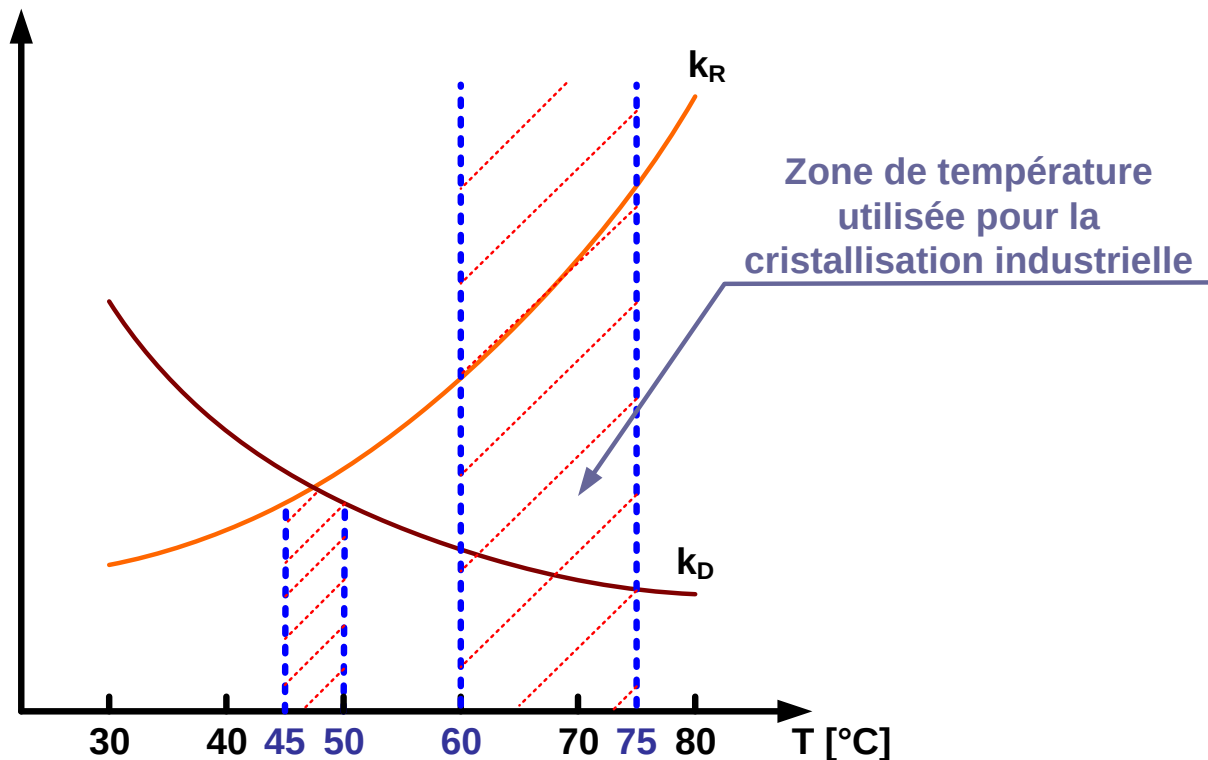


Figure 4.2 : Evolution schématique du coefficient de diffusion (k_D) et du coefficient d'intégration au cristal (k_R) en fonction de la température.

Il s'ensuit que le coefficient d'intégration est négligé par rapport au coefficient de diffusion dans la zone de température utilisée pour réaliser les cristallisations industrielles, zone allant de 60°C à 75°C.

Ainsi, la prédominance du processus de diffusion sur celui de l'intégration implique un ordre cinétique voisin de 1 pour la vitesse globale de croissance.

4.4 Démarche suivie pour la mise en place des modèles.

Chaque démarche d'identification des paramètres cinétiques a été faite suivant la même démarche (6 étapes), à partir de données expérimentales collectées pendant des phases de montées en cristallisation C [Walter et Pronzato, 1994]. Ces six étapes sont définies à la **figure 4.3** suivante :

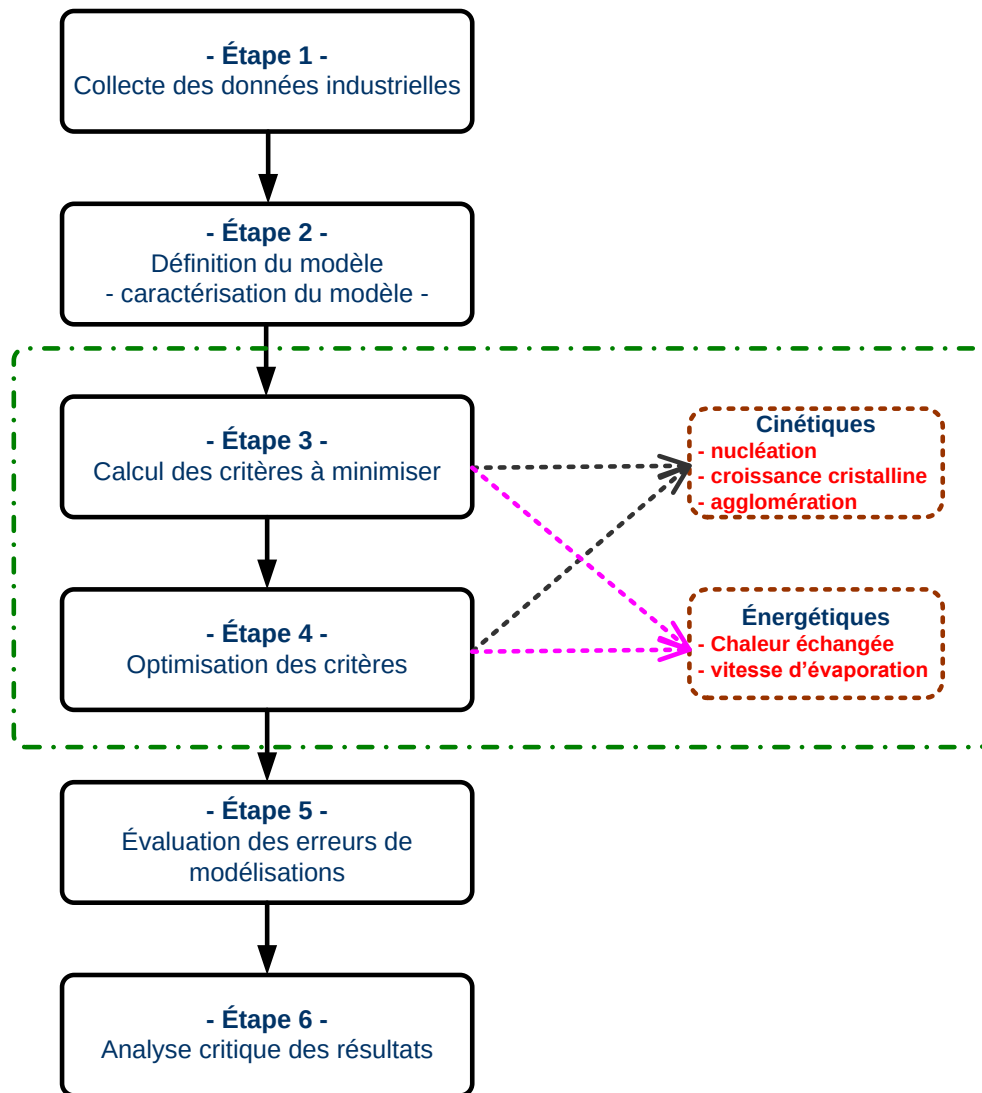


Figure 4.3 : les étapes suivies pour identifier les différents modèles de cristallisation.

Nous pouvons constater que pour faire les estimations des paramètres cinétiques ou énergétiques, les six étapes restent les mêmes. En effet, seules les étapes 3 et 4 vont être différentes du fait que nous allons optimiser les paramètres cinétiques et les paramètres énergétiques.

4.4.1 Les bases de données industrielles.

4.4.1.1 Les cuites utilisées.

En milieu industriel, une cuite correspond à l'ensemble des opérations effectuées par les cuiseurs pour transformer le sirop en cristaux de saccharose. La cuite commence dès le moment où il y a introduction des égouts dans le cristalliseur et prend fin lorsque la montée est terminée.

Nous avons choisi des cuites comportant exclusivement des montées 1, pour identifier des modèles de la cristallisation C, car la plupart des montées 2 réalisées à l'usine de Bois Rouge, comme nous avons pu le voir au **chapitre 2**, ne présentent pas une évolution régulière de la masse des cristaux, **figures 3.2** et **3.3**.

Ainsi, les six cuites choisies sont répertoriées dans le **tableau 4.1** suivant :

Cuites	1	2	3	4	5	6
Date d'acquisition	16/11/2005	19/11/2005	23/11/2005	24/11/2005	18/11/2005	30/11/2005
début de la cuite	20h41	12h05	17h40	15h23	14h55	16h10
fin de la cuite	00h57	15h59	20h49	18h53	19h36	19h45

Tableau 4.1 : les six montées 1 récoltées en usines.

Au cours de la campagne 2004, en plus des bases collectées *via* le serveur I-MEDIA, nous avons réalisé 14 suivis de cuites. Ce qui a permis de constituer des bases enrichies de mesures faites en laboratoire : les deux Brix et les deux puretés, masse cuite et liqueur mère. Ces bases se partagent en 6 bases de montées 1 et 8 bases de montées 2.

Sur les 6 bases de montée 1 seules les 4 premières sont utilisées pour faire l'estimation des divers paramètres, **tableau 4.1**. En effet, les deux autres montées ont été réalisées pendant des phases où l'usine était en insuffisance de matières premières.

Sur les 8 bases de montée 2, seules 2 sont exploitables, difficile donc, de faire de l'estimation de paramètres cinétiques.

4.4.1.2 Zone d'observation.

Pour identifier les paramètres cinétiques et énergétiques, nous n'avons utilisé que des montées 1. Car c'est la phase au cours de laquelle nous pouvons constater une augmentation de la masse des cristaux dans la masse cuite, qui est clairement traduite à partir des mesures des différents Brix et de la pureté de la liqueur mère. De ce fait, les paramètres cinétiques recherchés sont extraits de l'évolution de la masse des cristaux.

La zone considérée commence bien après la phase de grainage. Pour les 4 bases utilisées, nous avons regroupé dans le **tableau 4.2**, les heures des différentes étapes de grainage, du début et de la fin de la montée, ce qui représente des durées de 2h00 environ.

Cuites	1	2	3	4
Grainage	22h15	13h11	18h28	16h20
Début de la montée	22h52	13h54	19h11	17h01
Fin de la montée	00h57	15h59	20h49	18h53

Tableau 4.2 : les zones d'observations.

Nous pouvons constater que le début de chaque montée commence à peu près 40 minutes après le grainage. A l'usine de Bois Rouge, c'est le temps estimé nécessaire pour l'organisation des micros cristaux dans la solution. Les micros cristaux vont croître correctement dans la masse cuite, par une étape importante d'organisation du pied de cuite qui est réalisée grâce aux phases de lavée et de ralliage, définis au **chapitre 2**.

Pour les 4 bases choisies, nous avons observé lors de la phase de montée 1 une augmentation de la teneur en cristaux. Ceci implique que dans la solution, les phénomènes de nucléation, d'agglomération et de croissance cristalline peuvent exister. La **figure 4.4** suivante représente une cuite complète effectuée sur la C540.

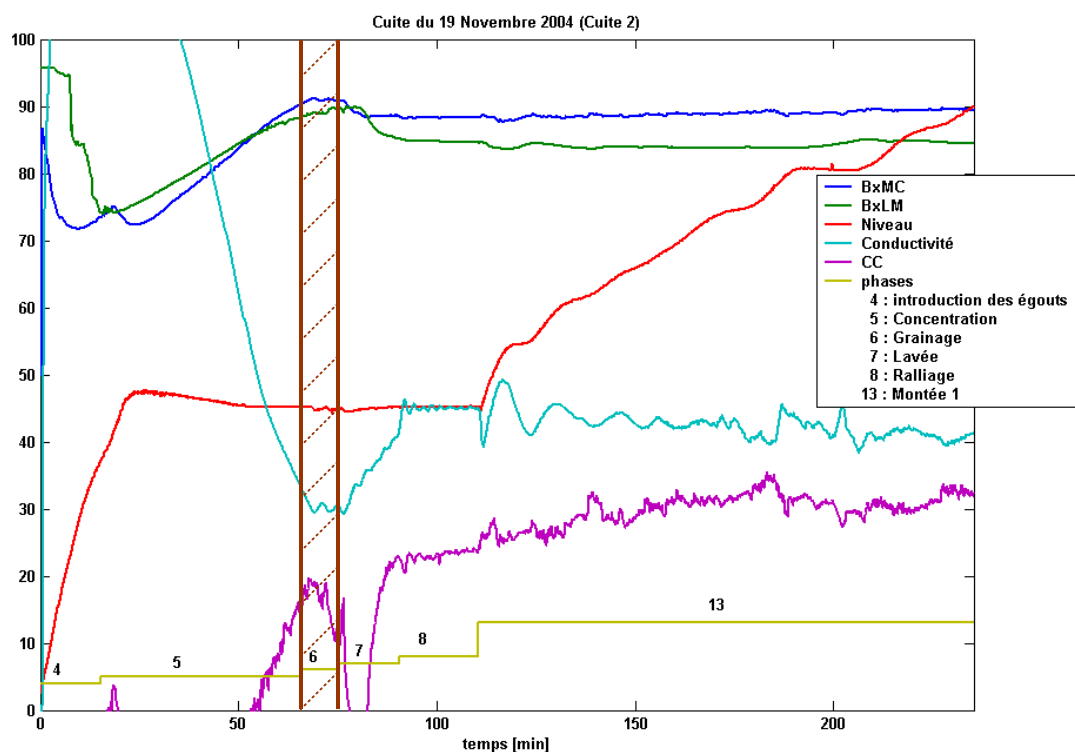


Figure 4.4 : exemple d'une cuite complète effectuée sur la C540.

4.4.1.3 Calcul de la masse des cristaux dans le cristalliseur C540.

Pour l'identification des modèles, nous avons utilisé la masse des cristaux M_C calculée :

$$M_C = CC.M_T \quad (4.1)$$

avec :

M_C est la masse des cristaux dans la solution [kg].

CC est la teneur en cristaux dans la solution [%].

M_T est la masse totale de la solution [kg].

La masse totale dans le cristalliseur augmente tout au long de la montée. Cette masse totale peut être estimée à partir de la mesure du niveau de la massecuite dans le cristalliseur, des deux Brix et de la pureté de la liqueur mère :

$$M_T = \rho_T \cdot V_T \quad (4.2)$$

avec :

$$V_T = \frac{\text{Niveau.540}}{1000} \quad (4.3)$$

$$\rho_T = f(Bx_{LM}, Bx_{MC}, Pte_{LM}) \quad (4.4)$$

V_T et ρ_T sont respectivement le volume total et la masse volumique de la massecuite (*annexe 5*). Du fait que la masse volumique de la massecuite dépend des Brix et de la pureté de la liqueur mère, nous pouvons dire qu'elle varie au cours d'une cuite, [Kadlec et al, 1981]. Les figures suivantes présentent l'évolution de la masse volumique de la massecuite et de la masse des cristaux dans le cristalliseur C540 au cours des quatre montées 1 choisies précédemment.

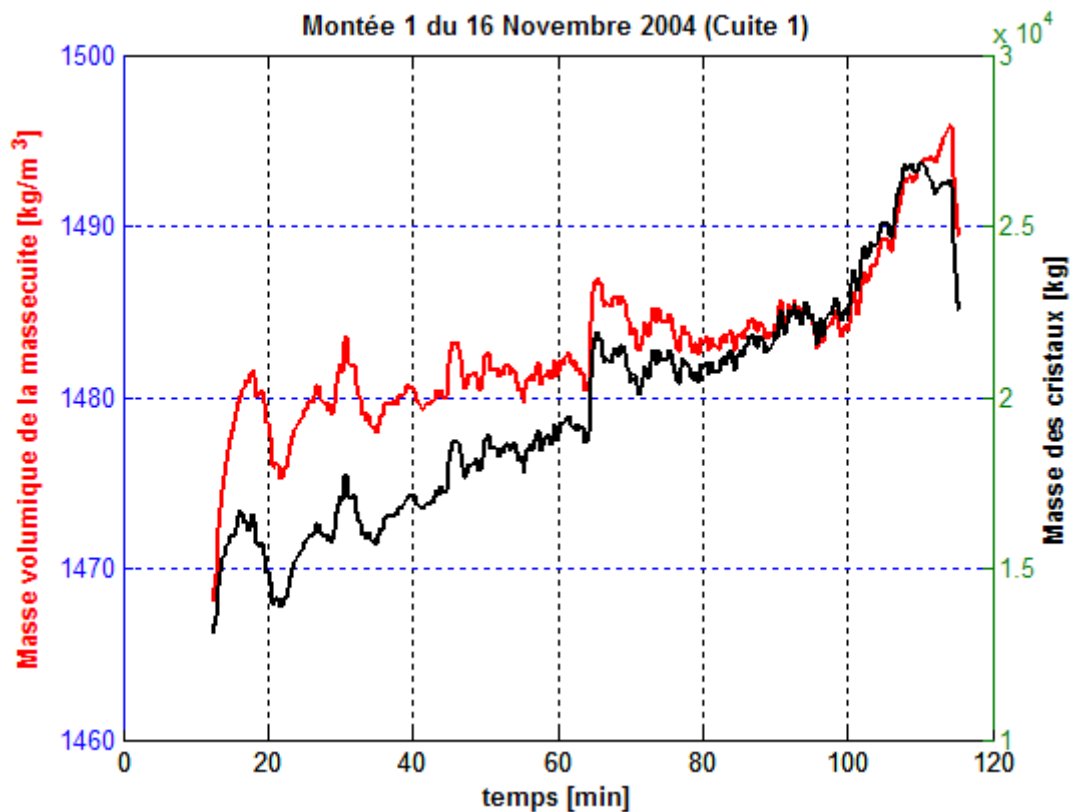


Figure 4.5 : évolutions de la masse volumique de la massecuite et de la masse des cristaux pour la cuite 1.

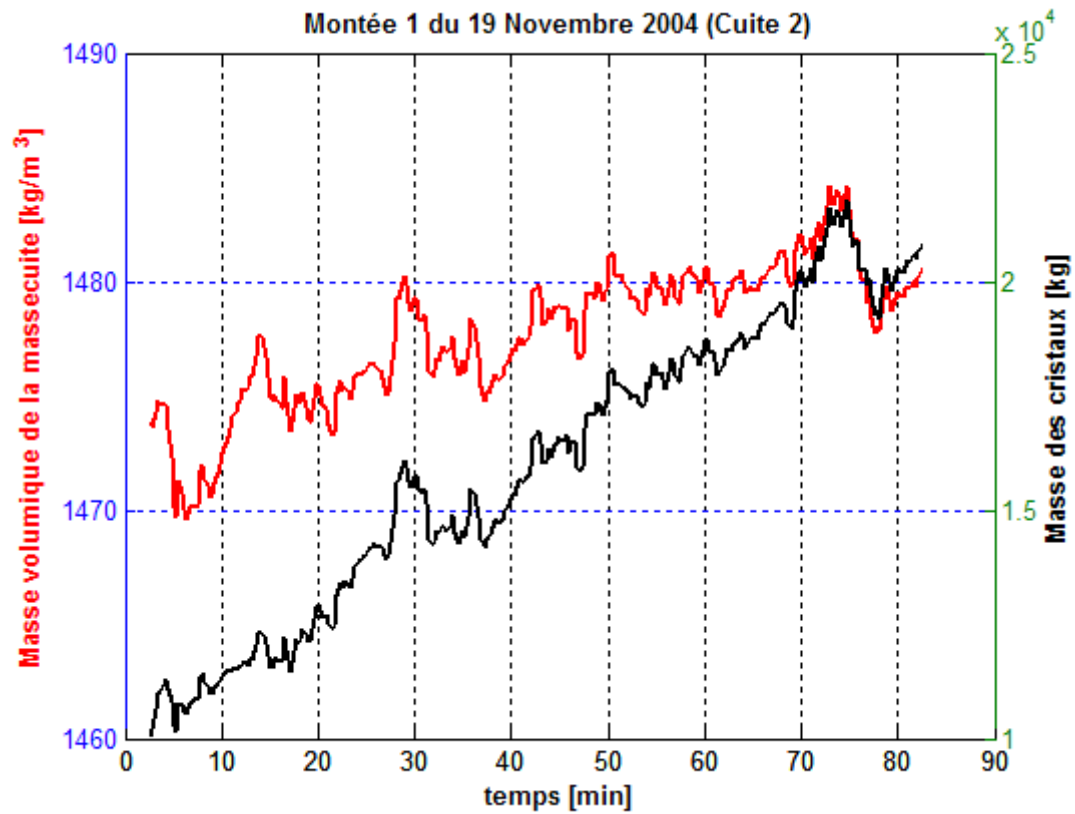


Figure 4.6 : évolutions de la masse volumique de la masse cuite et de la masse des cristaux pour la cuite 2.

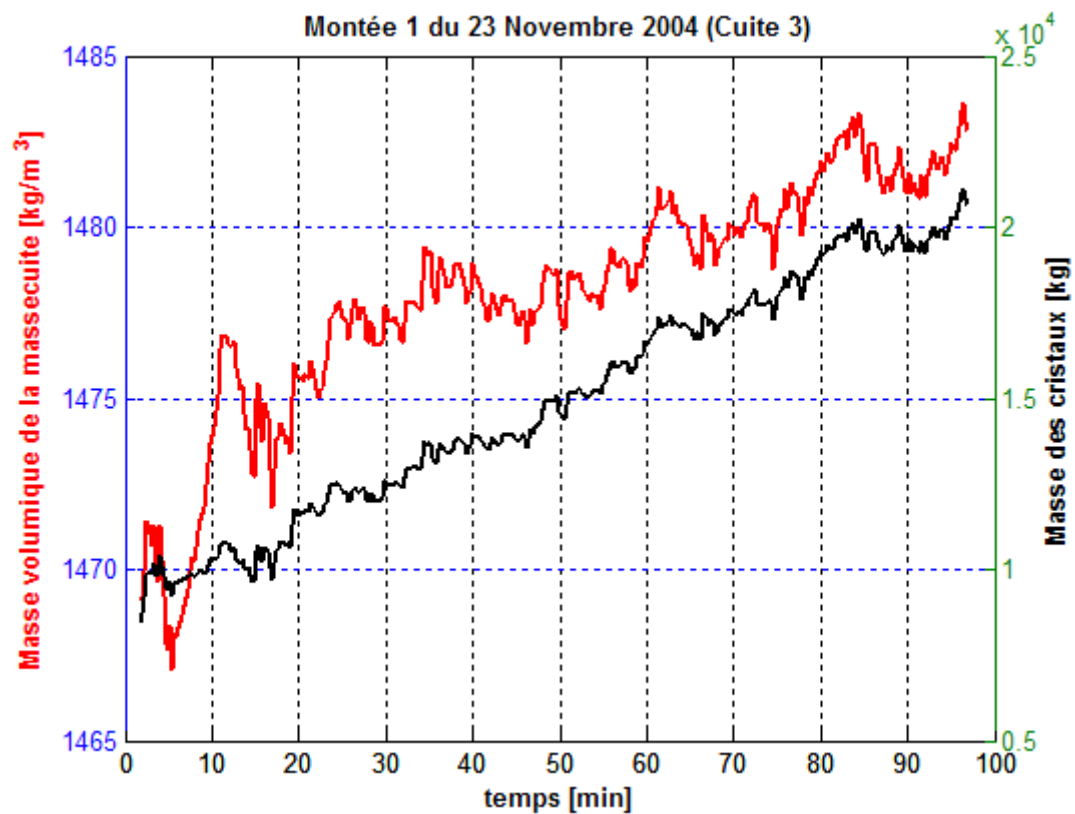


Figure 4.7 : évolutions de la masse volumique de la masse cuite et de la masse des cristaux pour la cuite 3.

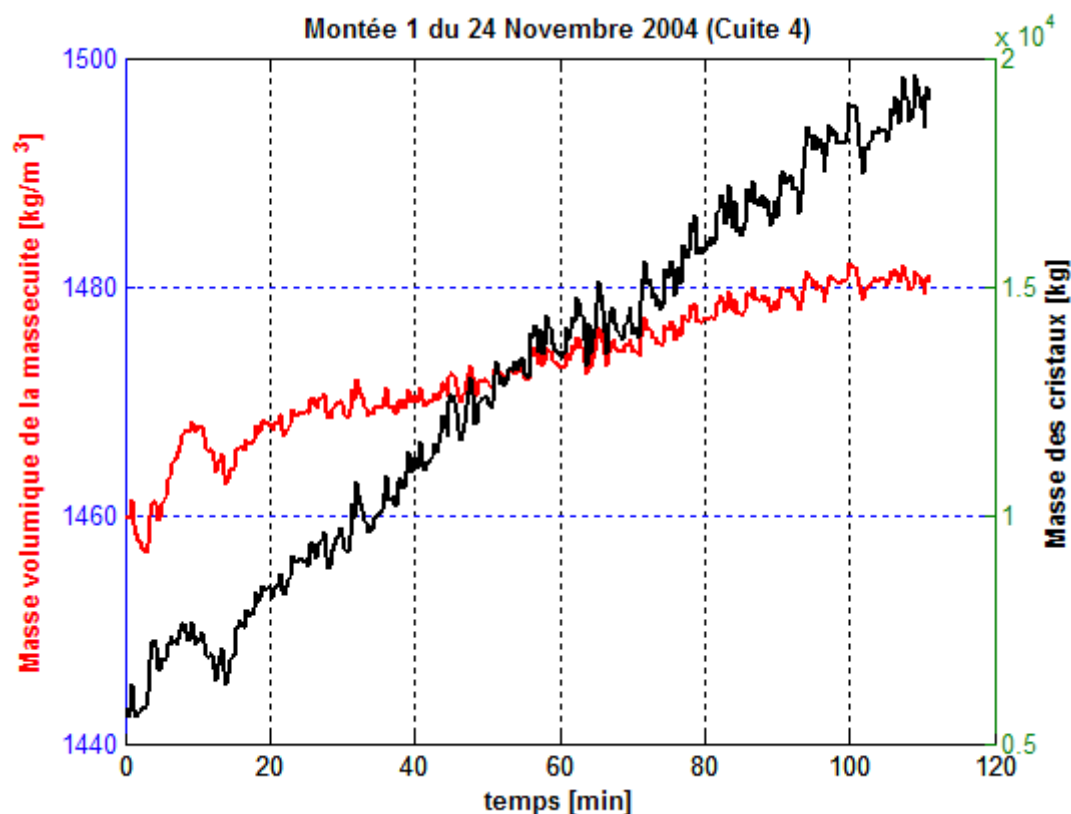


Figure 4.8 : évolutions de la masse volumique de la masse cuite et de la masse des cristaux pour la cuite 4.

Les 4 courbes précédentes donnent l'évolution de la masse des cristaux au cours temps. Nous constatons une évolution croissante de la masse des cristaux au cours de ces montées. Nous allons pouvoir en estimer les paramètres cinétiques, **figure 4.12**.

4.4.1.4 Filtrage des données industrielles.

La fréquence d'échantillonnage des données transmises par le serveur I-MEDIA est de 1,7 secondes en moyenne, et elles sont stockées dans des fichiers. Ces données ne sont pas filtrées avant leur enregistrement dans les bases de données. Avant tout traitement, nous avons donc filtré ces données afin de remplacer les enregistrements bruts par des valeurs lissées [Trystram, 1994].

Nous avons choisi pour cela de déterminer les caractéristiques du bruit en réalisant une analyse spectrale. Cette analyse nous renseigne à la fois sur la fréquence à partir de laquelle le signal est considéré comme du bruit, et sur les propriétés statistiques de ce bruit (en particulier sa variance).

Le message expérimental servant ici à l'identification des paramètres cinétiques est donné par l'observation de l'évolution de la masse des cristaux dans le cristalliseur. Cette évolution dépend des valeurs des Brix liqueur mère et masse cuite, de la pureté de la liqueur mère et du niveau de la masse cuite dans la cuve. L'analyse de la densité spectrale de ces mesures montre en première approximation, que le bruit de mesure se situe à partir de la fréquence 0.05 Hz et que sa variance est de $(200 \text{ kg})^2$, **figures 4.9 et 4.10**.

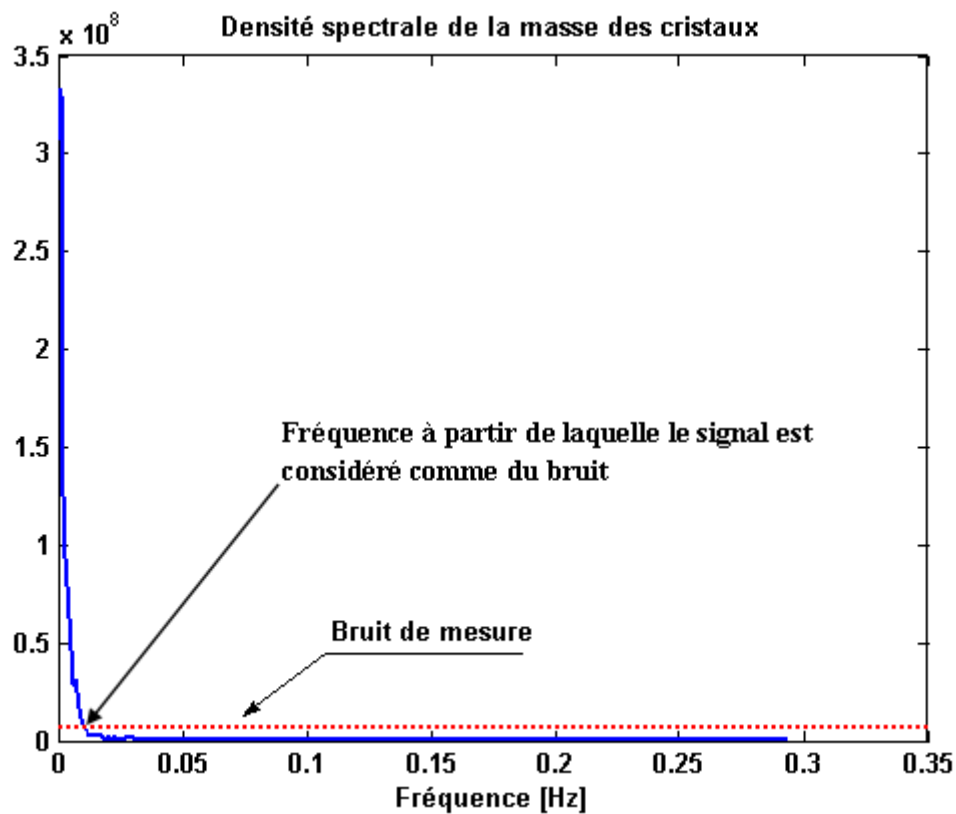


Figure 4.9 : densité spectrale de la masse des cristaux.

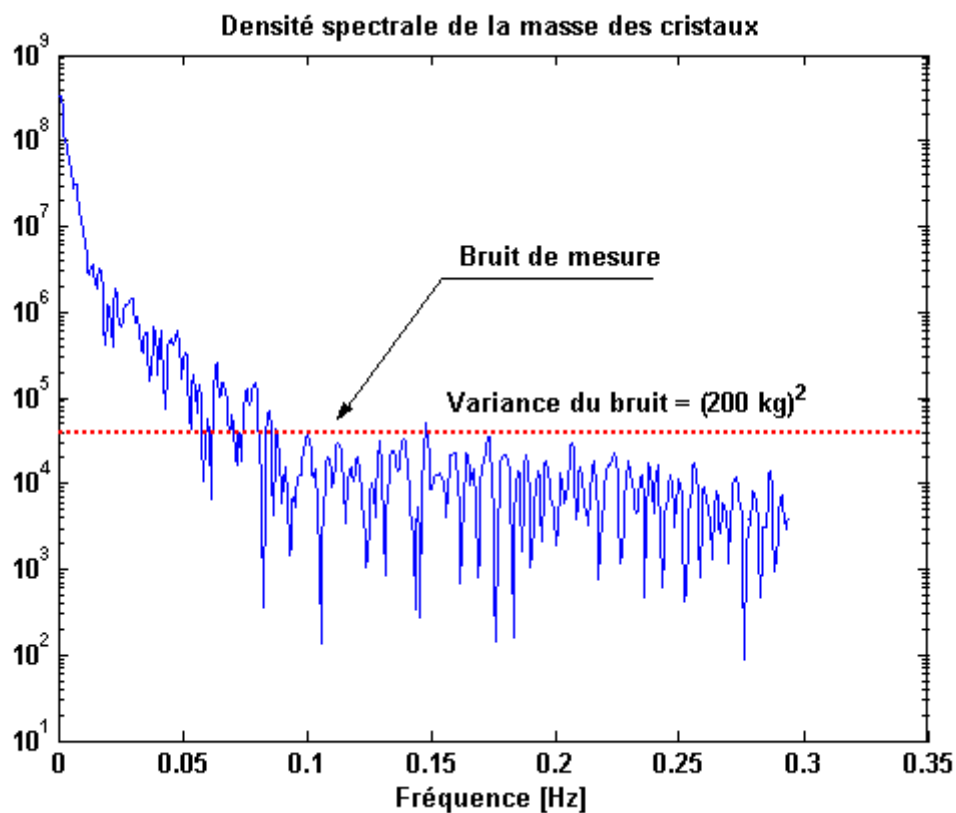


Figure 4.10 : représentation semi-logarithmique de la densité spectrale de la masse des cristaux.

Grâce à ces données, nous avons pu construire un filtre : c'est un filtre passe-bas du premier ordre, dont l'équation récurrente est donnée par [Corriou, 1996] :

$$y_f(n) = \alpha y(n) + (1 - \alpha) y_f(n-1) \quad (4.5)$$

avec :

y_f la sortie filtrée.

y la valeur signal.

Le coefficient α tient compte du spectre de fréquence du bruit de mesure puisque la constante de temps du filtre τ_f est l'inverse de la fréquence la plus basse du bruit.

$$0 < \alpha \leq 1 \text{ avec } \alpha = \frac{1}{\frac{\tau_f}{\Delta t} + 1}$$

$$\tau_f : \text{constante de temps du filtre [s], } \tau_f = \frac{1}{0,05} = 20s$$

$$\Delta t : \text{période d'échantillonnage [s], } \Delta t = 1,7s$$

A la **figure 4.11**, nous avons représenté les 4 observations de l'évolution de la masse des cristaux lors des différentes cuites et le filtrage de ces données par le filtre passe-bas défini précédemment.

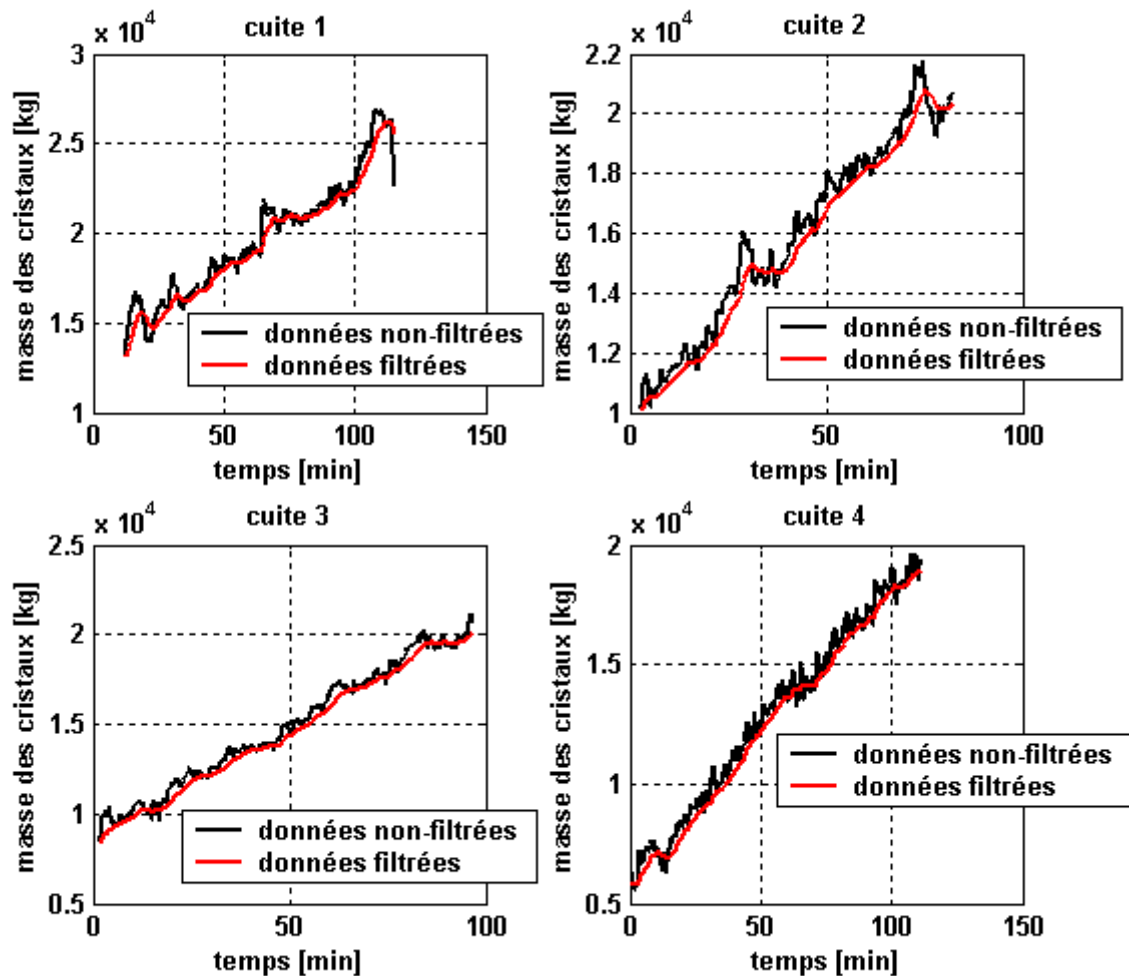


Figure 4.11 : représentations des filtrages de la masse des cristaux des 4 montées.

Ce filtre passe-bas est satisfaisant au sens où il conserve la dynamique des informations filtrées sans occasionner des pertes d'informations pénalisantes pour la démarche de modélisation.

4.4.2 Les diverses structures utilisées.

Dans la littérature, il existe des lois pour représenter les processus de nucléation, de croissance et d'agglomération des cristaux. Ces travaux, ont conduit à des expressions théoriques allant du niveau microscopique au niveau macroscopique, [Livk et al, 1995], [Sgualdino et al, 1996], [Leubner, 2000], [Gerstlauer et al, 2002], [Georgieva et al, 2003]. Certaines sont difficilement transposables au contexte industriel. Nous avons choisi des lois cinétiques moins complexes de type global pour représenter la vitesse de cristallisation [Maurandi et Rossi, 1983], [Garside, 1985], [Tavare, 1995], [Lauret, 1998].

Ainsi, confrontés à la grande complexité des phénomènes mis en jeu lors de la cristallisation C, nous nous sommes inscrit dans une approche systémique. En effet, nous avons utilisé des méthodes quantitatives globales et adaptées à nos besoins. Plus précisément, nous avons

utilisé plusieurs équations phénoménologiques pour décrire la nucléation, la croissance cristalline et l'agglomération, *chapitre 3*. Nous avons schématisé à la *figure 4.12* suivante, les différentes combinaisons des équations utilisées lors de nos modélisations du procédé de cristallisation C.

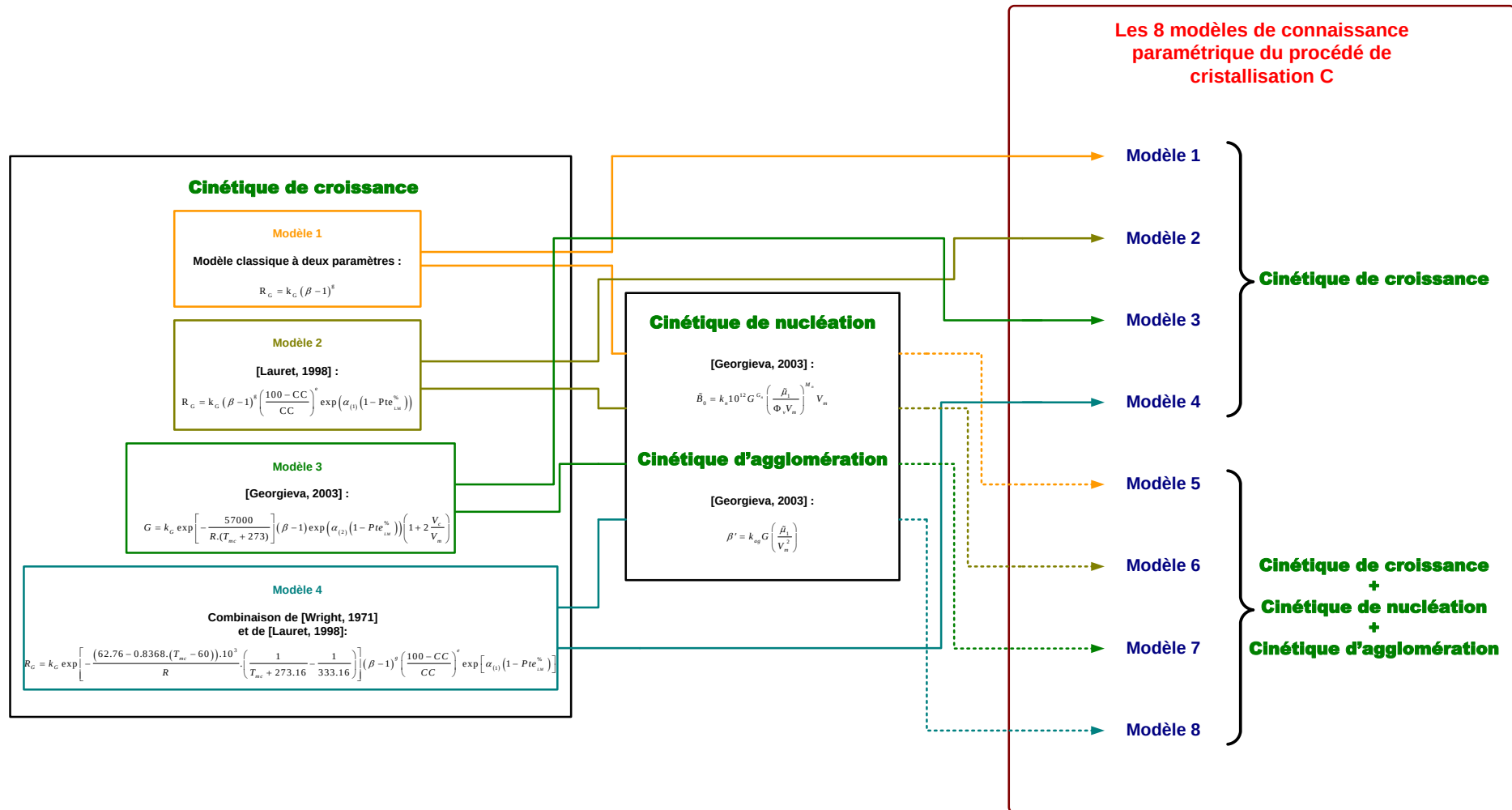


Figure 4.12 : les différents modèles de connaissance paramétrique identifiés pour la simulation du procédé de cristallisation C.

4.4.3 Estimation des paramètres du modèle.

4.4.3.1 Utilisation des méthodes de programmation non linéaire.

D'après Kramer [Kramer et al, 1990] les techniques de programmation non linéaire sont des outils puissants et adéquats pour estimer les paramètres cinétiques d'un modèle à partir de données récoltées en milieu industriel. Il souligne aussi que le choix de l'algorithme d'optimisation est un point très important.

Tavare [Tavare, 1995] précise que les méthodes basées sur des ajustements polynomiaux ont été souvent utilisées par le passé mais n'ont pas conduit à des estimations consistantes des paramètres cinétiques. Ainsi, il soutient que les méthodes de programmation qui utilisent des procédures d'optimisation non linéaire sont mieux adaptées et plus précises.

Févotte [Févotte, 1995] nous indique aussi, que les divers modèles cinétiques peuvent être identifiés de façon correcte par des méthodes d'optimisation non linéaire.

Georgieva [Georgieva et al, 2003], qui travaille sur la cristallisation du sucre, précise que toutes les estimations de ces paramètres, cinétiques et énergétiques, ont été réalisées grâce à une méthode de programmation utilisant des procédures d'optimisation non linéaire.

Nous pouvons constater que l'utilisation des méthodes de programmation non linéaire pour estimer les paramètres cinétiques de modèles, est commune. Nous avons choisi aussi d'utiliser les méthodes de programmation non linéaire pour identifier les paramètres cinétiques.

Estimation des paramètres cinétiques :

La variation de la masse des cristaux dans le temps est modélisée par une équation différentielle non linéaire du premier ordre. Sa solution représente l'évolution de la masse des cristaux dans le cristalliseur C540 au cours de la montée. Cette évolution est fonction du temps et des divers paramètres cinétiques suivant les modèles choisis. Ces différents paramètres peuvent être ajustés de sorte à faire tendre la réponse du modèle $(m_c)^{\text{mod}}$ vers l'observation expérimentale $(m_c)^{\text{obs}}$.

4.4.3.2 Schéma d'estimation.

Le schéma classique général d'estimation des paramètres selon Richalet [Richalet et al, 1971] est représenté à la **figure 4.13** suivante :

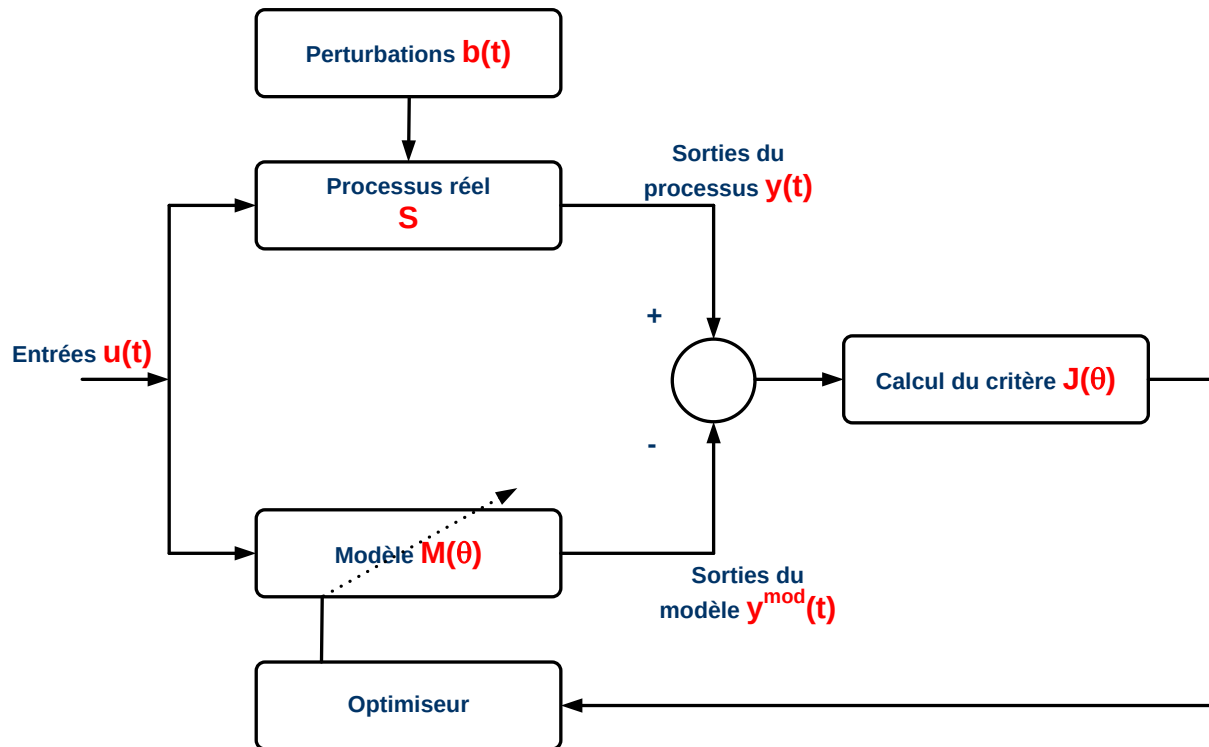


Figure 4.13 : schéma classique d'estimation de paramètres.

Le procédé S est accessible uniquement au travers de ses entrées $u(t)$ et de ses sorties $y(t)$.

Le vecteur $b(t)$ symbolise les perturbations qui sont dues :

- aux entrées non maîtrisées,
- aux erreurs de mesures,
- aux caractères approximatifs des modèles.

Il est à noter qu'un des points les plus importants est d'arriver à quantifier l'erreur d'estimation imputable aux perturbations $b(t)$. L'estimation des paramètres θ est basée sur la minimisation d'un critère quadratique $J(\theta)$.

Pour les paramètres cinétiques :

Une variante est introduite dans l'estimation des paramètres cinétiques car l'équation 3.8 doit être intégrée afin d'obtenir la réponse du modèle $(m_c)^{\text{mod}}$. A chaque itération, l'équation de bilan de matière sur m_c est résolue sur la base des paramètres estimés au cours des itérations précédentes. La fonction coût $J(\theta)$ peut alors être évaluée. La **figure 4.14** illustre cette méthodologie.

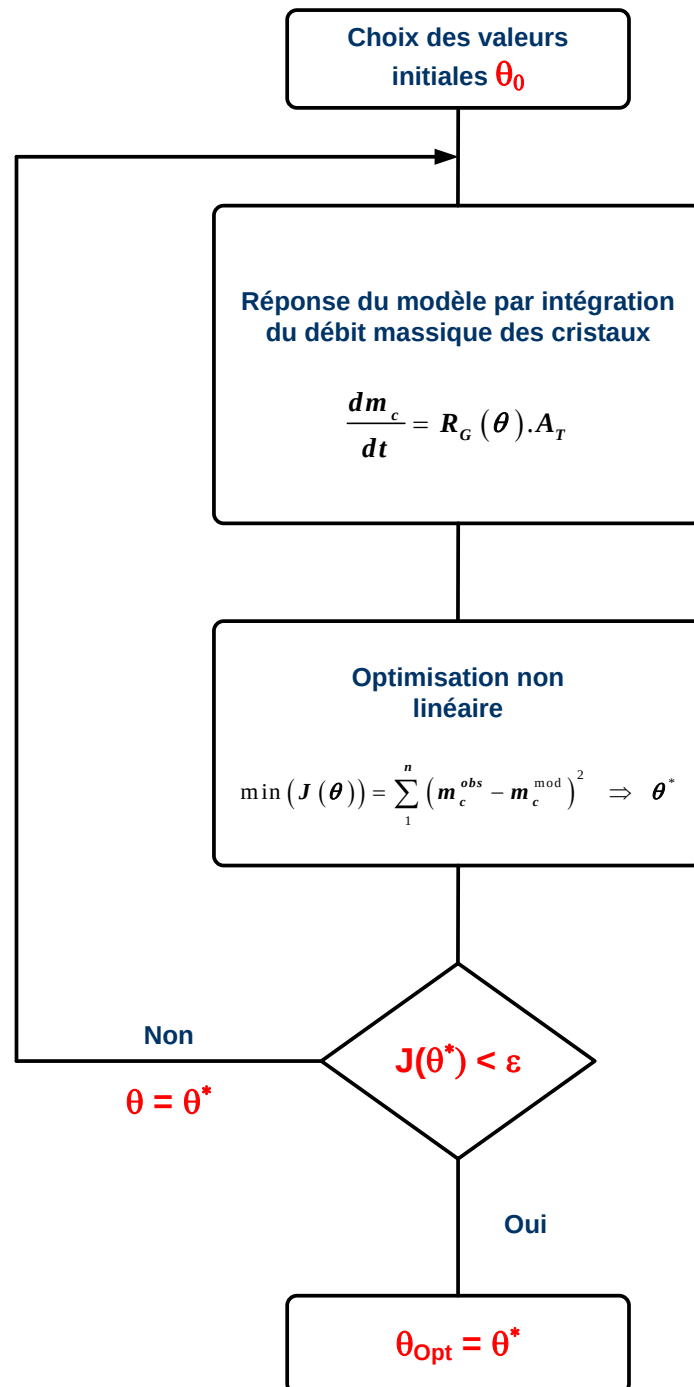


Figure 4.14 : méthodes utilisées pour extraire les paramètres cinétiques.

θ_{opt} est le vecteur des paramètres optimisés et θ^* est le vecteur résultant de l'itération courante.

Toutes les intégrations numériques des différentes équations différentielles ont été faites en utilisant une méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 disponible dans l'environnement **MATLAB**.

Optimisations cinétiques pour les modélisations classiques :

Les caractéristiques des problèmes d'optimisation cinétique sont résumées dans le **tableau 4.3** ci-dessous :

Modèle	Observations (entrées)	Paramètres
1	β	$\theta = [k_G, g]$
2	$\beta, CC, Pte_{LM}^{\%}$	$\theta = [k_G, g, e, \alpha_{(1)}]$
3	$\beta, V_C, T_{mc}, Pte_{LM}^{\%}$	$\theta = [k_G, \alpha_{(2)}]$
4	$\beta, CC, T_{mc}, Pte_{LM}^{\%}$	$\theta = [k_G, g, e, \alpha_{(1)}]$
5	β, V_C	$\theta = [k_G, g, k_n, G_n, M_n, k_{ag}]$
6	$\beta, CC, Pte_{LM}^{\%}, V_C$	$\theta = [k_G, g, e, \alpha_{(1)}, k_n, G_n, M_n, k_{ag}]$
7	$\beta, V_C, T_{mc}, Pte_{LM}^{\%}$	$\theta = [k_G, \alpha_{(2)}, k_n, G_n, M_n, k_{ag}]$
8	$\beta, CC, T_{mc}, Pte_{LM}^{\%}, V_C$	$\theta = [k_G, g, e, \alpha_{(1)}, k_n, G_n, M_n, k_{ag}]$

Tableau 4.3 : caractéristiques des différents problèmes d’optimisations cinétiques.

Pour chacun des 8 modèles identifiés, l’estimation est basée sur la minimisation du critère $\mathbf{J}(\theta)$, calculé à partir de la différence entre $(m_c)^{\text{mod}}$ et $(m_c)^{\text{obs}}$:

$$J(\theta) = \sum_1^n \left((m_c)^{\text{obs}} - (m_c)^{\text{mod}} \right)^2 \quad (4.6)$$

4.4.3.3 Algorithmes d’optimisation des paramètres.

Afin d’écartier tout soupçon relatif aux résultats obtenus (qualités reconnues) à un seul type d’algorithme, nous avons opté pour deux types d’algorithmes d’optimisation, disponibles aussi dans une des boîtes à outils de MATLAB. Le premier type d’algorithme utilise le calcul des dérivées du critère : les algorithmes de Gauss Newton dont la variante la plus utilisée est imputable à Levenberg-Marquardt. Le deuxième type s’appuie uniquement sur l’évaluation de la fonction coût $\mathbf{J}(\theta)$ et ne nécessite donc pas le calcul des dérivées du critère : l’algorithme Simplex Search par exemple [Nedler et Mead, 1964], [Press et al, 1989].

Ces méthodes sont essentiellement locales et ne peuvent garantir la convergence vers un optimum global, même si l’opération est effectuée à partir d’un grand nombre de vecteurs paramètres initiaux tirés au hasard [Walter et Pronzato, 1994].

Nous avons aussi utilisé les algorithmes génétiques (A.G) pour optimiser les paramètres. Les résultats obtenus *via* minimisation par A.G sont suffisamment proches des résultats obtenus par les méthodes classiques. De plus, l'expérience a confirmé que le temps de calcul était multiplié par deux voir trois. Nos travaux exigeant une importante quantité de simulations, nous avons opté pour des algorithmes de type 1 ou 2, moins coûteux en temps de calcul et présentant moins de difficultés numériques.

4.4.3.4 Choix des valeurs initiales.

Pour ces méthodes de programmation non linéaire, le processus est itératif et l'un des premiers problèmes est le choix des valeurs initiales.

Pour les paramètres cinétiques :

Les plages de valeurs typiques vues au **tableau 1.4** données par Tavaré [Tavare, 1995], nous ont tout d'abord permis de définir des domaines de variation des divers paramètres. Ensuite, plusieurs travaux plus spécifiques à la cristallisation du saccharose nous ont permis de circonscrire ces domaines, [Feyo de Azevedo et al, 1993 et 1994], [Guimãraes et al, 1995], [Lauret, 1998], [Tahal, 2000], [Georgieva et al, 2003]. La majorité des auteurs s'accordent à dire que l'ordre de la cinétique globale est généralement compris entre 1 et 2, **section 1.2.3.1**, du fait de la prédominance de la croissance diffusionnelle lors de la cristallisation (phénomène dû à la température de la solution). Nous avons regroupé dans le **tableau 4.4** suivant les valeurs initiales retenues et les ordres de grandeurs que nous avons utilisés pour les optimisations de paramètres.

Modèle	Paramètres	Ordre de grandeur	Valeur initiale
Croissance cristalline	k_G	$[5,0 \times 10^{-6}; 5,0 \times 10^{-4}]$	$3,0 \times 10^{-5}$
	g	$[0,5; 3,0]$	1,0
	e	$[0,0; 3,0]$	1,0
	$\alpha_{(1)}$	$[-3,0; 0,0]$	-1,0
	$\alpha_{(2)}$	$[-20,0; 0,0]$	-10,0
nucléation	k_n	$[0,5; 3,0]$	2,0
	G_n	$[0,5; 3,0]$	1,0
	M_n	$[0,5; 3,0]$	1,0
agglomération	k_{ag}	$[5,0 \times 10^{-6}; 3,0 \times 10^{-5}]$	$1,0 \times 10^{-5}$

Tableau 4.4 : les valeurs initiales et les ordres de grandeurs utilisées pour les optimisations de paramètres.

4.4.4 Evaluations des erreurs de modélisations.

Il nous a semblé pertinent de présenter les erreurs de modélisation du procédé étudié. En effet, nos résultats sont entachés d'erreurs, car il existe une perte d'information due au bruit de mesure. Nous devons garder à l'esprit que le procédé de cristallisation C à l'usine de Bois Rouge subit différentes perturbations d'une cuite à l'autre, et que nous avons aussi fait des approximations lors de la construction des différents modèles. Nous avons effectivement travaillé sur un procédé industriel en situation de production et nous ne maîtrisons pas l'ensemble des conditions opératoires. De ce fait, nous avons représenté pour chaque modélisation l'erreur absolue moyenne et l'écart type de l'erreur commise. En effet, nous avons représenté pour les modélisations du taux de production locale de cristaux les erreurs sur le calcul des masses des cristaux des quatre cuites. Nous avons aussi représenté les proportions des erreurs pour observer la fiabilité des modèles.

4.5 Modèle de connaissance paramétrique : modèle M1.

4.5.1 Introduction.

Cette section présente les résultats des identifications des lois cinétiques utilisées (nucléation, croissance linéaire et agglomération). Ces identifications sont basées sur les estimations des paramètres des lois cinétiques. Toutes les investigations dans ce domaine ont été confortées par des données industrielles collectées au cours de la campagne sucrière 2004. Les modèles ont été identifiés par des méthodes d'optimisation non linéaire.

Au cours de la campagne sucrière 2004, nous avons recueilli plusieurs bases de données, aussi bien en montée 1, qu'en montée 2. De part la variabilité des propriétés physico-chimiques des jus introduit dans les cuites C, il est évident de constater que pour chaque montée nous avons des résultats très contrastés. Ces résultats peuvent être très différents d'une montée à l'autre, bien qu'elle puisse se succéder dans le temps.

Nous avons pu constater que les algorithmes d'optimisations utilisés (Simplex Search, Gauss Newton, Levenberg-Marquardt, algorithme génétique) conduisent à des résultats proches. De plus, quelque soit la valeur initiale prise dans « l'intervalle de confiance » (ordre de grandeur), il y a toujours convergence vers la même valeur, et cela, quelque soit l'algorithme utilisé. Il est à noter que nous avons fait ces estimations de paramètres sur les quatre cuites décrites dans les sections précédentes.

Nous présentons tout d'abord les résultats de la modélisation de la cinétique de croissance linéaire puis nous présenterons les résultats de modélisation du couplage des trois cinétiques.

4.5.2 Modèle de connaissance du q_{cris} à l'aide du modèle de la cinétique de croissance.

Au vu des résultats des modélisations des Brix et de la température (**chapitre 5**), nous optons pour l'utilisation du **modèle 4** présenté dans les sections précédentes. En effet, cette modélisation nous donne en proportion de meilleurs résultats que les trois autres modèles. Cette modélisation classique de la cinétique de croissance linéaire repose sur les paramètres k_G , g , e et $\alpha_{(1)}$:

$$R_G = K_G (\beta - 1)^g \left(\frac{100 - CC}{CC} \right)^e \exp \left[\alpha_{(1)} (1 - Pte_{LM}^{\%}) \right] \quad (4.7)$$

avec :

$$K_G = k_G \exp \left[- \frac{(62,76 - 0,8368 \cdot (T_{mc} - 60)) \cdot 10^3}{R} \cdot \left(\frac{1}{T_{mc} + 273,16} - \frac{1}{333,16} \right) \right]$$

Les paramètres cinétiques estimés pour les 4 cuites sont :

Cuites	$k_G \times 10^{-5}$	g	e	$\alpha_{(1)}$
1	1,4957	1,2467	0,8262	-1,2418
2	1,6819	1,1079	0,9261	-1,1043
3	1,5310	1,2484	0,8263	-1,2403
4	1,5444	1,4220	0,7058	-1,4189
<i>min</i>	1,4957	1,1079	0,7058	-1,4189
<i>max</i>	1,6819	1,4220	0,9261	-1,1043
<i>moyenne</i>	1,5633	1,2563	0,8211	-1,2513
<i>Ecart type (σ)</i>	0,0817	0,1286	0,0901	0,1290

Tableau 4.5 : résultats d'optimisation des paramètres cinétiques avec la méthode Levenberg-Marquardt.

Nous pouvons constater que les valeurs des paramètres sont sensiblement les mêmes pour les 4 cuites. Notons que l'ordre cinétique comme prévu est proche de l'unité. Ce qui confirme bien la prédominance du processus de transfert (**section 1.2.3**) lors de la cristallisation.

Les quatre **figures 4.15 à 4.18** montrent les résultats obtenus lorsqu'on utilise l'algorithme de Levenberg-Marquardt pour obtenir une estimation de la masse des cristaux. Sur ces figures, nous représentons les prédictions relatives à la masse des cristaux dans l'appareil à cuire C540, la cinétique de croissance linéaire associée, les erreurs absolues de modélisation et leurs proportions.

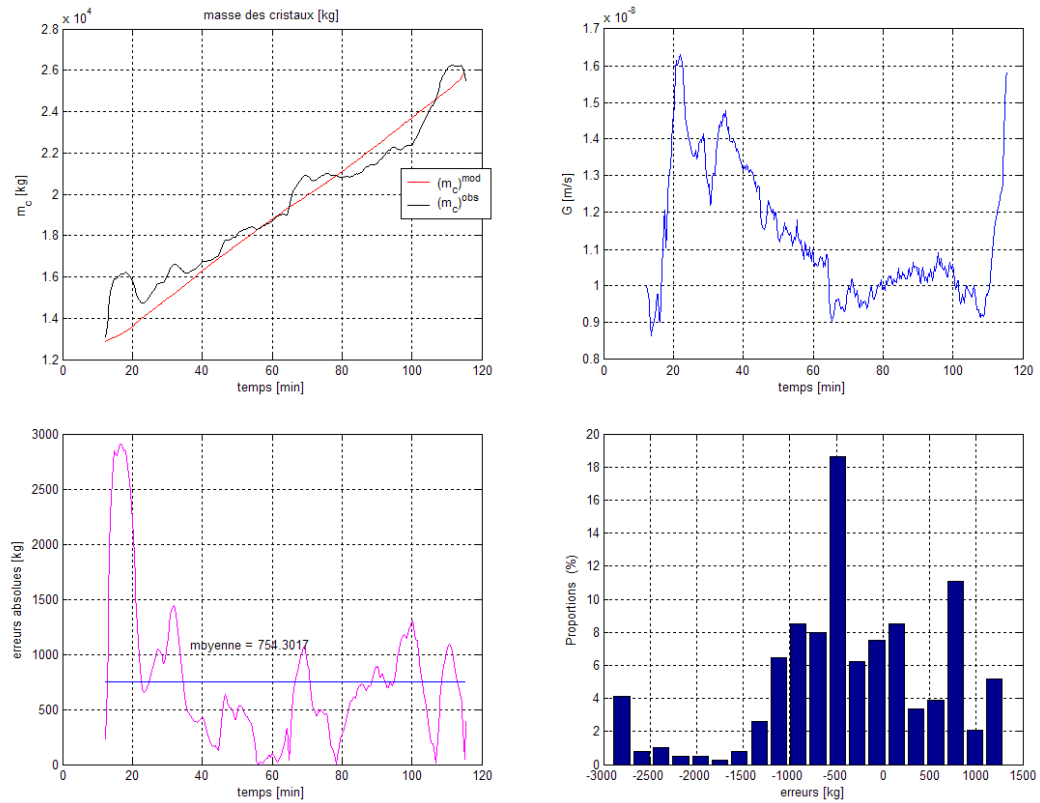


Figure 4.15 : optimisation cinétique de la cuite 1.

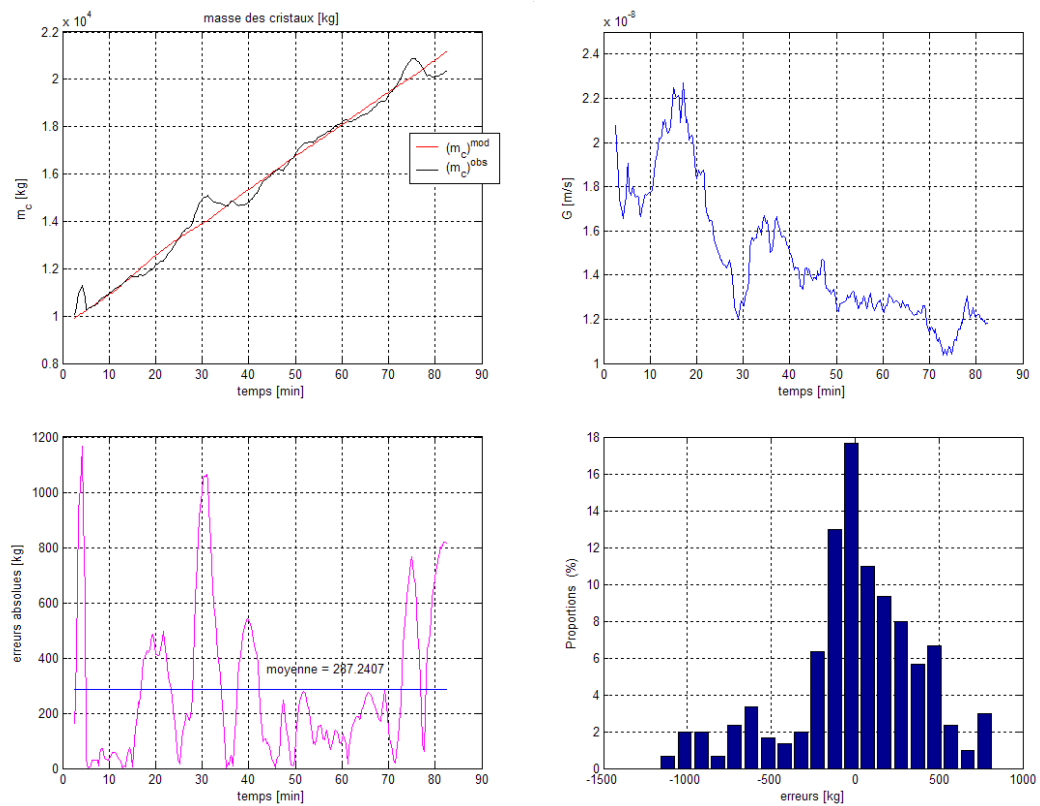


Figure 4.16 : optimisation cinétique de la cuite 2.

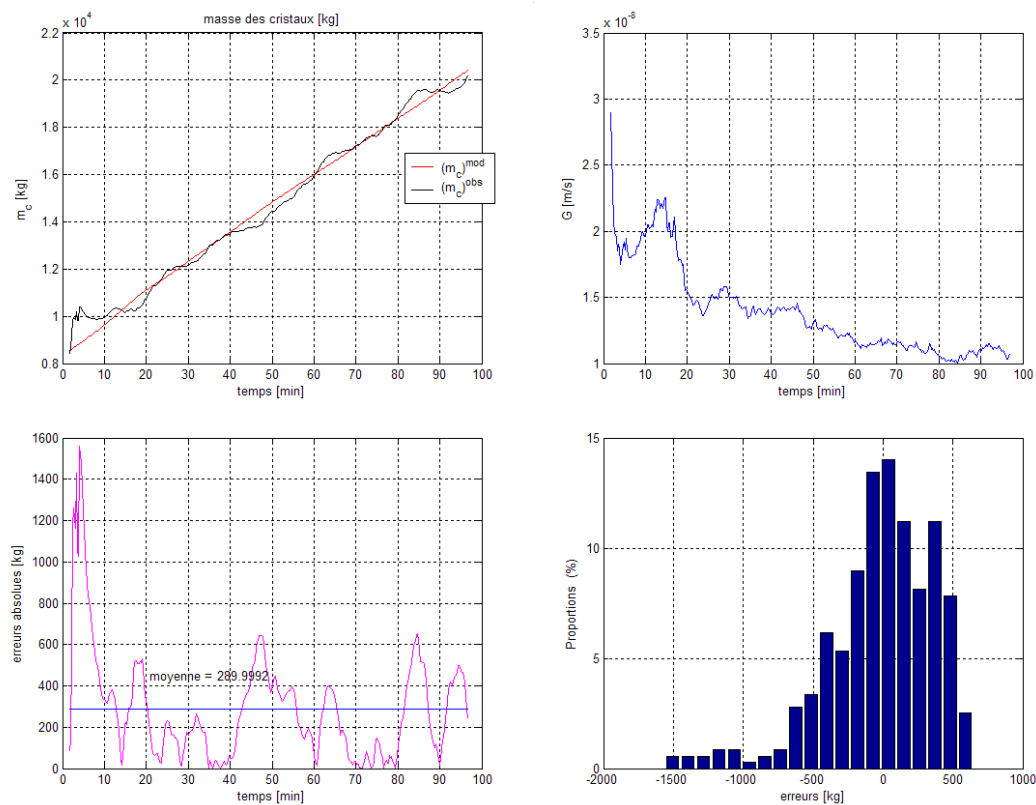


Figure 4.17 : optimisation cinétique de la cuite 3.

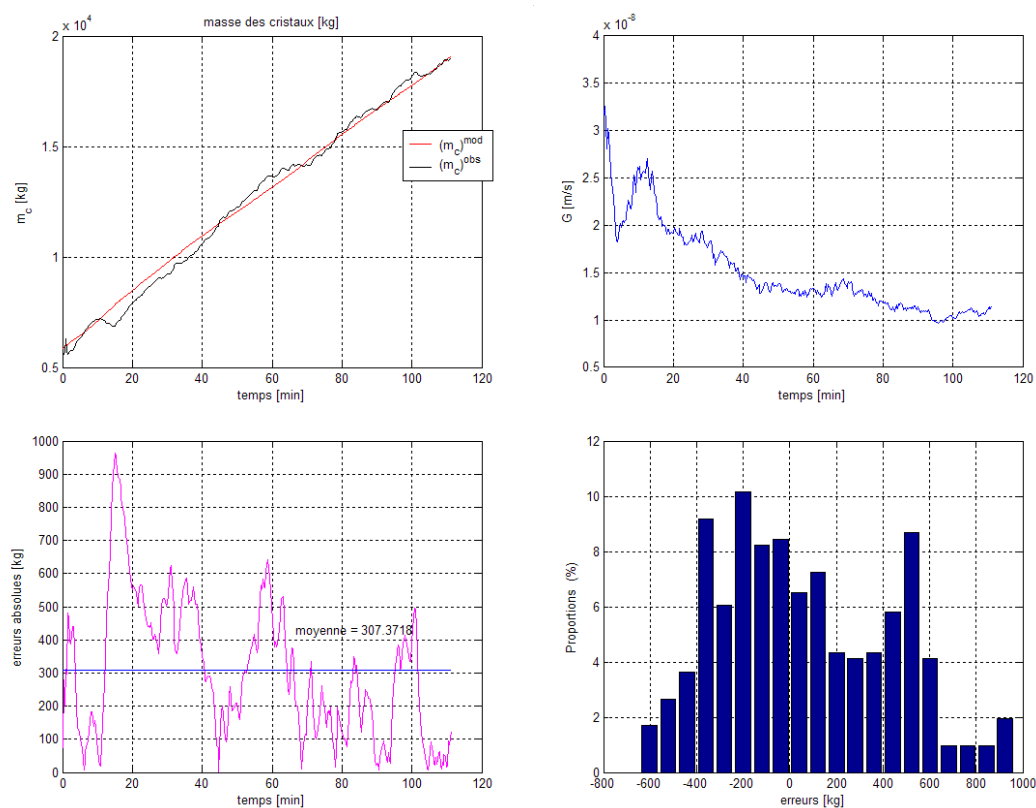


Figure 4.18 : optimisation cinétique de la cuite 4.

Nous n'avons ici considéré que la cinétique de croissance linéaire et nous pouvons constater que les résultats des optimisations sont plutôt satisfaisants dans le cadre d'un simulateur industriel. En effet, la masse des cristaux estimée lors de chaque montée est voisine de celle attendue. De plus, l'erreur absolue moyenne de chaque simulation est environ égale à 500 kg pour une masse totale d'environ 25 tonnes de cristaux contenus dans la cuve.

4.5.3 Modélisation du q_{cris} à partir de modèles empiriques des cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération.

Afin d'obtenir un modèle global de la cristallisation C le plus précis possible, nous avons comparé les résultats obtenus à partir des 4 modèles 5, 6, 7 et 8, définis à la **figure 4.12**. Au regard des résultats obtenus pour l'estimation des Brix et des températures à la section suivante, nous avons opté pour l'utilisation du **modèle 8**. Ce choix est dû au fait que cette approche présente les meilleurs résultats, voir les **tableaux 5.3** et **5.4**.

L'expression de la cinétique de croissance linéaire est la même que celle proposée pour le **modèle 4** défini précédemment. Les cinétiques de nucléation et d'agglomération sont définies par les relations suivantes :

$$\tilde{B}_0 = k_n 10^{12} G^{G_n} \left(\frac{\tilde{\mu}_1}{\Phi_v V_{mc}} \right)^{M_n} V_{mc} : \text{nucléation.} \quad (4.8)$$

et

$$\beta' = k_{ag} G \left(\frac{\tilde{\mu}_1}{V_{mc}^2} \right) : \text{agglomération.} \quad (4.9)$$

Les paramètres cinétiques estimés sont regroupés dans le tableau suivant :

Cuites	$k_G \times 10^{-5}$	g	e	$\alpha_{(1)}$	k_n	G_n	M_n	$k_{ag} \times 10^{-5}$
1	2,0048	1,2032	0,7993	-1,2071	2,0000	0,9976	1,0007	3,0000
2	2,2692	1,1911	0,8127	-1,1921	2,0000	0,9972	1,0000	0,5517
3	1,5996	1,1970	0,8025	-1,2014	2,0000	1,0028	1,0000	0,5009
4	1,1415	1,2010	0,7955	-1,1981	2,0000	0,9898	0,9973	0,5000
min	1,1415	1,1911	0,7955	-1,2071	2,0000	0,9898	0,9973	0,5000
max	2,2692	1,2032	0,8127	-1,1921	2,0000	1,0028	1,0007	3,0000
moyenne	1,7538	1,1981	0,8025	-1,1997	2,0000	0,9969	0,9995	1,1382
σ	0,4924	0,0053	0,0074	0,0063	0,0000	0,0053	0,0015	1,2415

Tableau 4.6 : résultats d'optimisation des paramètres cinétiques avec la méthode Levenberg-Marquardt.

Nous pouvons constater que les valeurs des paramètres sont sensiblement les mêmes pour les 4 cuites considérées. Comme dans le cas de la modélisation classique de la croissance linéaire, l'ordre cinétique est comme attendu très proche de l'unité.

Les quatre **figures 4.19 à 4.22** montrent les résultats obtenus lorsqu'on utilise l'algorithme de Levenberg-Marquardt pour obtenir une estimation de la masse des cristaux. Sur ces figures, nous représentons les résultats obtenus pour la masse des cristaux, les cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération associées, et ainsi que les erreurs absolues de modélisation et leurs proportions.

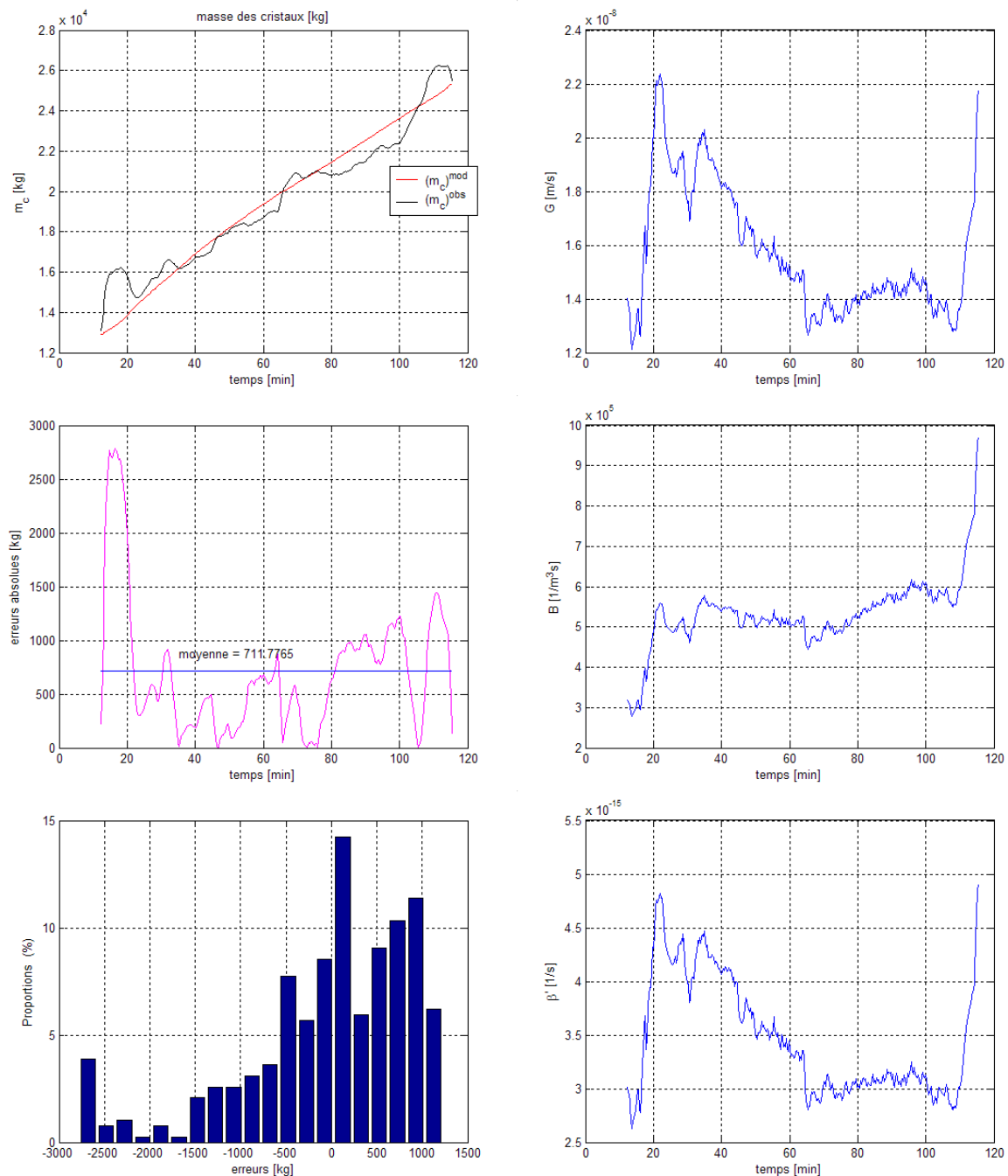


Figure 4.19 : optimisation des cinétiques de la cuite 1.

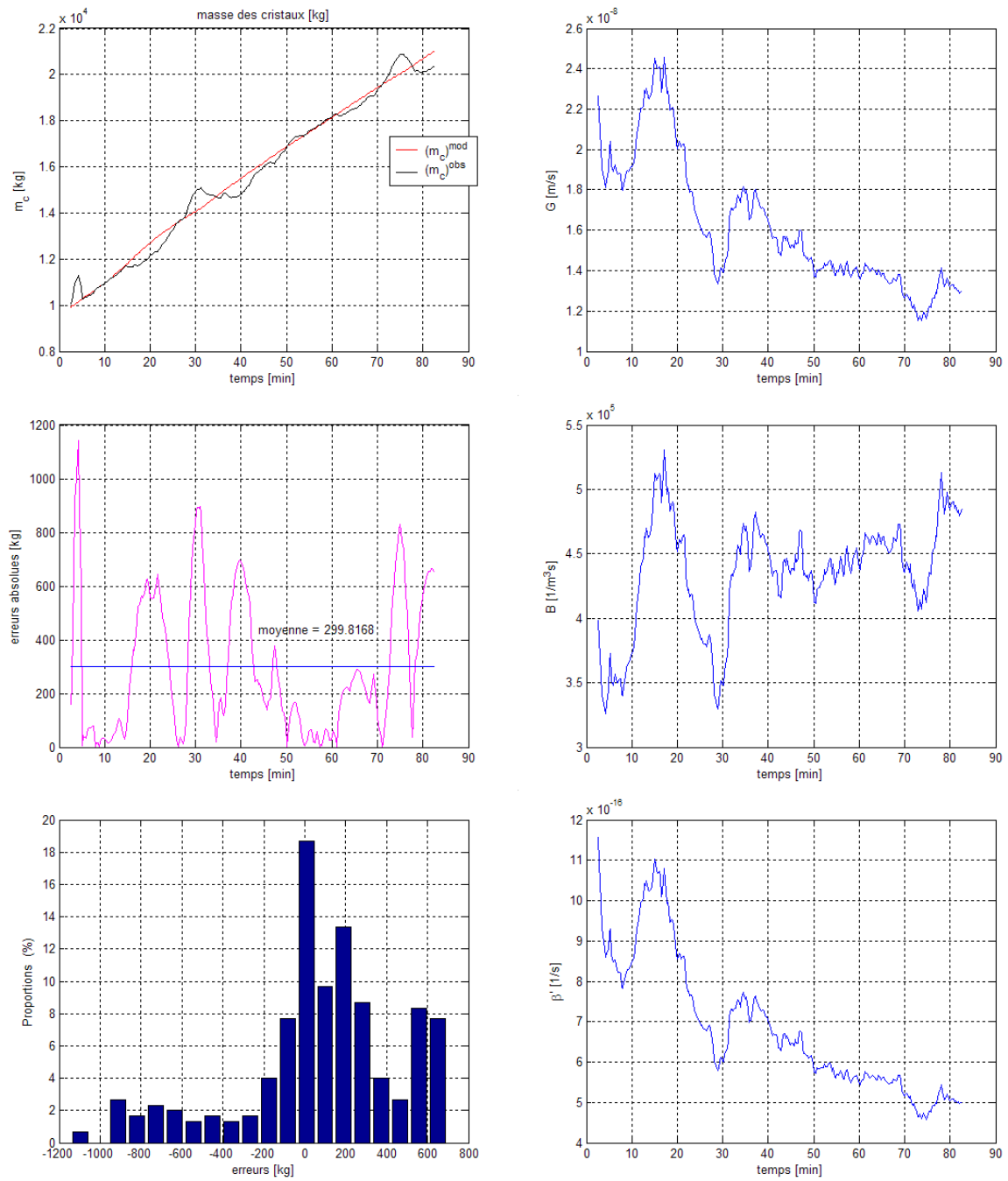


Figure 4.20 : optimisation des cinétiques de la cuite 2.

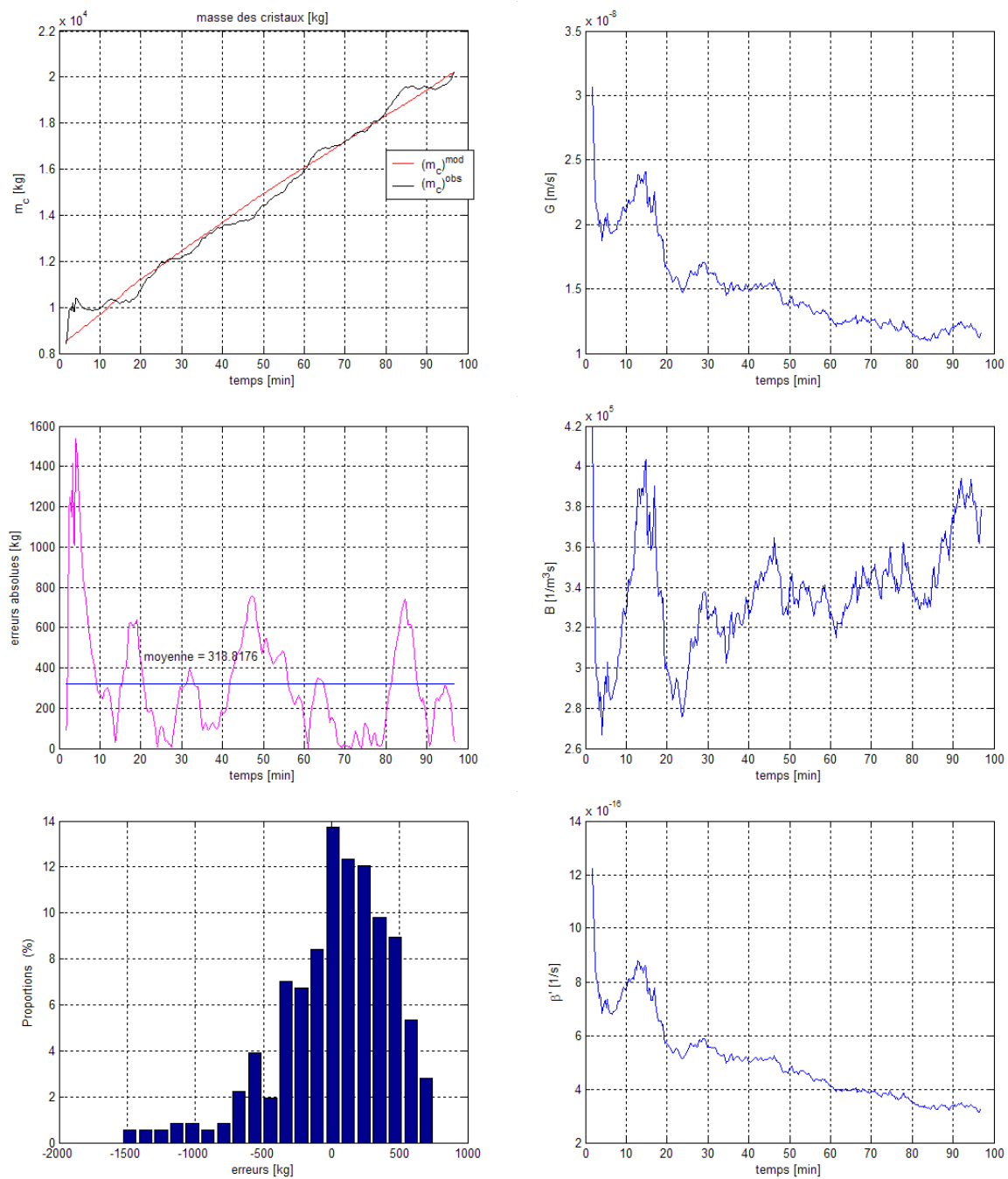


Figure 4.21 : optimisation des cinétiques de la cuite 3.

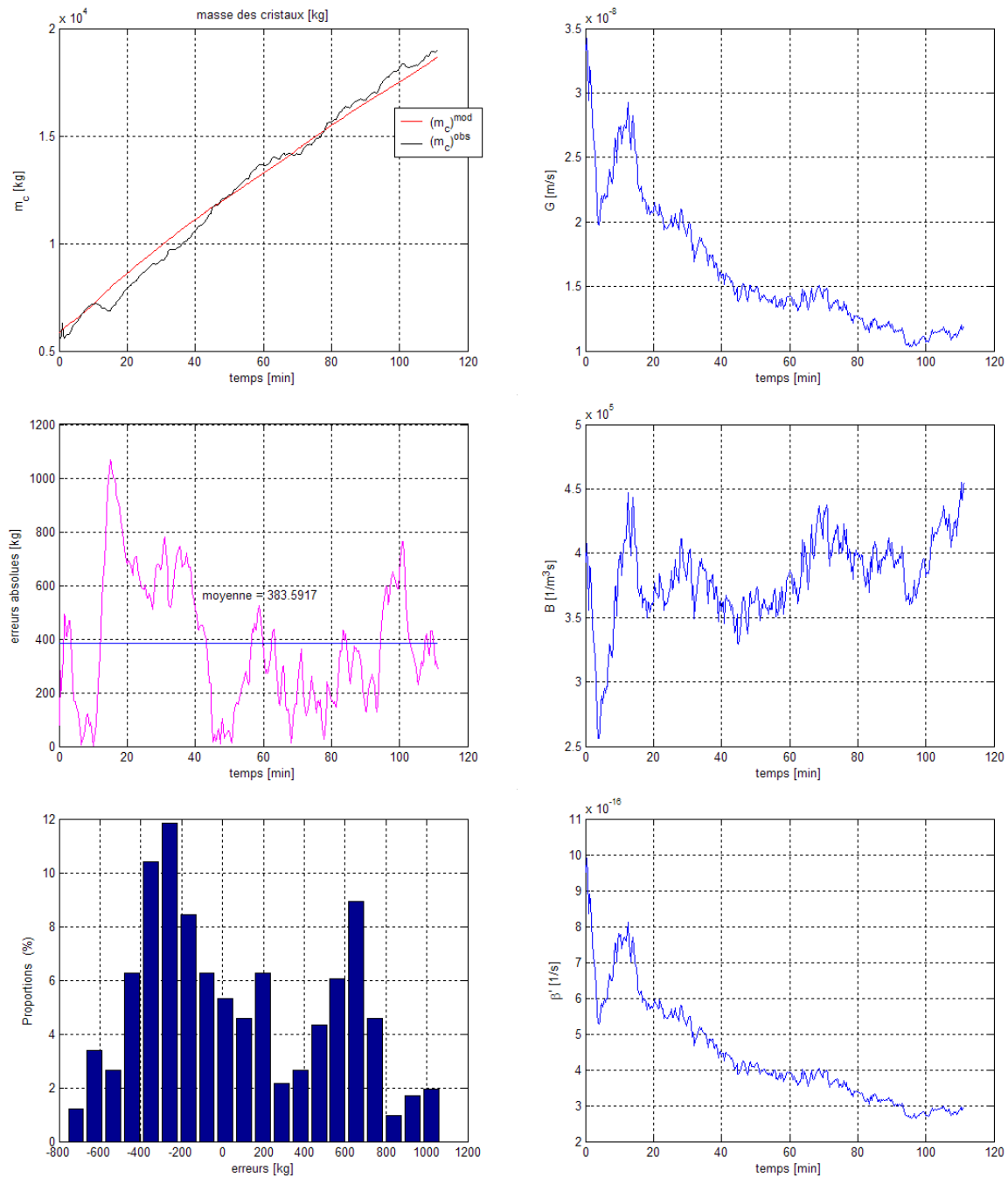


Figure 4.22 : optimisation des cinétiques de la cuite 4.

Ici, nous considérons l'existence des cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération au sein de la masse cuite. Nous constatons que les résultats d'optimisation sont plutôt satisfaisants, du fait que l'estimation de la masse des cristaux de chaque montée est proche de celle calculée expérimentalement.

4.6 Représentation du taux de cristaux q_{cris} par un modèle aux différences finies temporelles : modèle M2.

4.6.1 Introduction.

Nous présentons dans cette section les résultats de la modélisation réalisée à partir de différences finies temporelles du taux de cristaux dans l'appareil à cuire C540. Nous allons comparer les valeurs de $(m_c)^{\text{mod}}$ obtenues par simulation aux valeurs calculées à partir des mesures expérimentales $(m_c)^{\text{obs}}$.

De même que pour la modélisation paramétrique, nous avons constaté au cours de la modélisation par différences finies temporelles, les algorithmes d'optimisations (Levenberg-Marquardt, algorithme génétique, etc.) conduisent sensiblement aux mêmes résultats. Ainsi, par soucis de gain de temps, nous avons opté pour l'utilisation de la méthode Simplex Search pour l'optimisation des paramètres.

4.6.2 Modélisation par différences finies temporelles du débit massique de cristaux.

La modélisation par différences finies temporelles du débit massique de cristaux est une approche simplifiée des modélisations classiques présentées dans la section précédente. En effet, cette approche ne nécessite pas de faire appel aux modèles cinétiques qui décrivent les phénomènes pouvant exister dans la masse cuite au cours d'une montée. Ainsi, ce modèle ne nécessite pas la résolution du bilan de population. Il faut effectuer (voir **chapitre 3**) le calcul de la variation de la masse des cristaux Δm_c contenue dans l'appareil à cuire pendant une période de temps Δt . La formule est donnée par :

$$q_{\text{cris}} = \frac{\Delta m_c}{\Delta t} = \frac{\Delta(CC.m_T)}{\Delta t} \quad (4.10)$$

Les **figures 4.23 à 4.26** suivantes présentent l'évolution de la masse de cristaux $(m_c)^{\text{obs}}$ dans le cristalliseur C540 pendant les phases de montées. Nous représentons aussi les estimations obtenues par le modèle aux différences finies $(m_c)^{\text{mod}}$, les erreurs absolues de modélisation et leurs proportions.

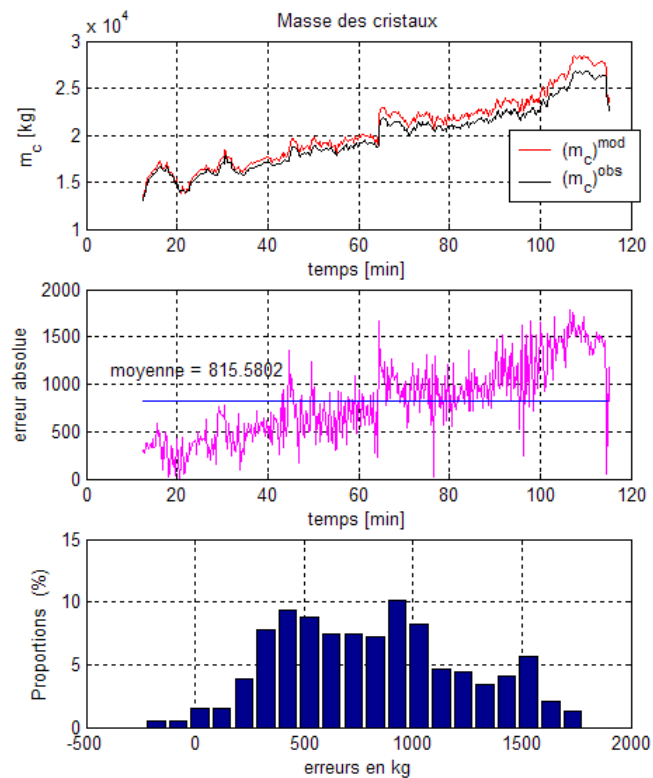


Figure 4.23 : modélisation de la masse des cristaux de la cuite 1.

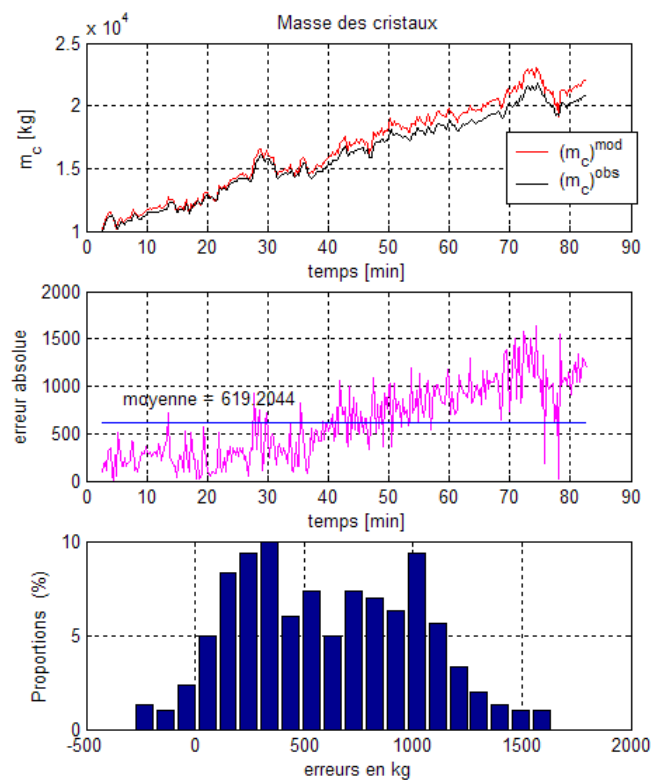


Figure 4.24 : modélisation de la masse des cristaux de la cuite 2.

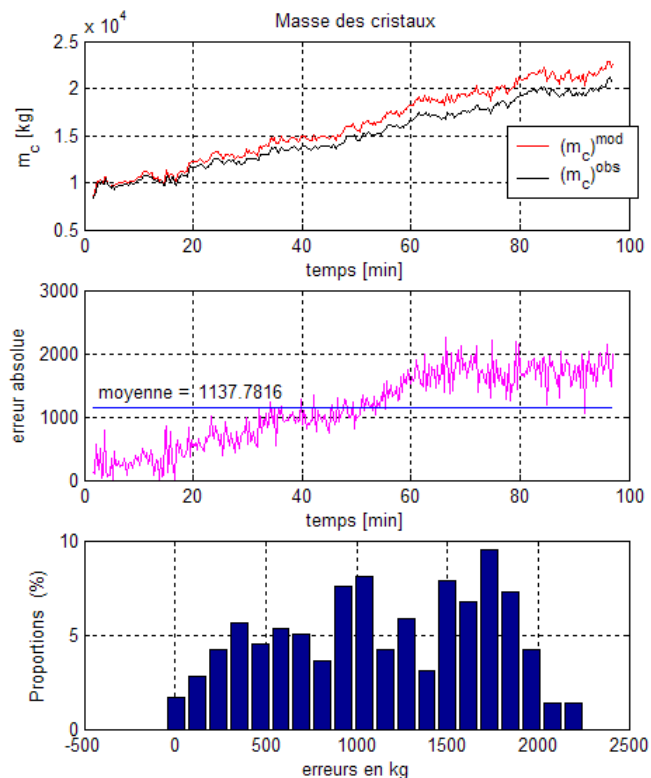


Figure 4.25 : modélisation de la masse des cristaux de la cuite 3.

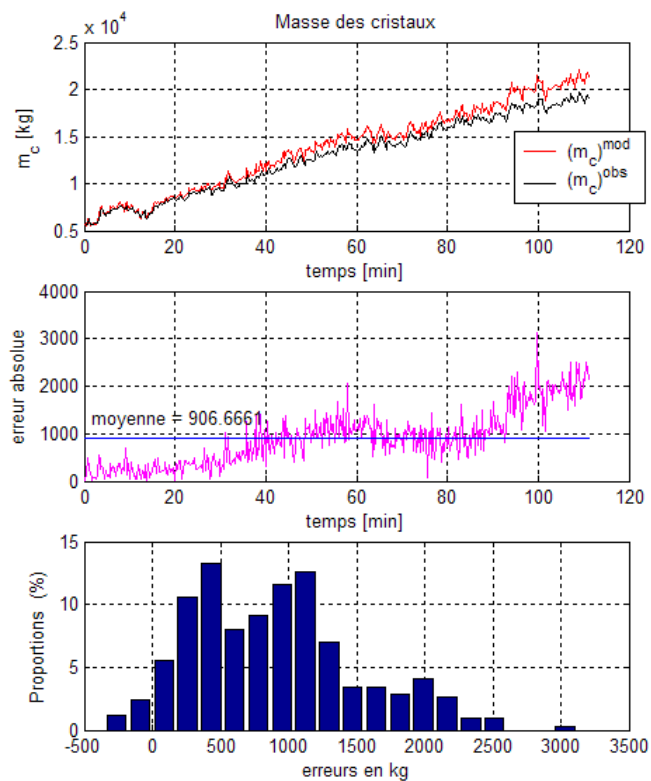


Figure 4.26 : modélisation de la masse des cristaux de la cuite 4.

Nous constatons que les masses de cristaux estimées sont voisines des valeurs calculées expérimentalement. Nous remarquons aussi, que nous avons la même dynamique.

4.7 Modélisation du q_{cris} à l'aide de modèles hybrides : modèle M3.

4.7.1 Introduction.

Nous avons pu déterminer à la **section 4.5** les paramètres des lois cinétiques représentant les phénomènes de nucléation, de croissance cristalline et d'agglomération dans les conditions industrielles de l'usine de Bois Rouge au niveau du cristalliseur C540. Nous avons pu constater que les valeurs obtenues pour les différents paramètres sont en accord avec les données de la littérature. Néanmoins, ces valeurs affichent une certaine variation d'une cuite à l'autre. Cette variabilité rend difficile la détermination de valeurs. Ainsi, les modèles développés pour chaque cuite sont spécifiques à l'opération en cours et sont par conséquent locaux. De ce fait, figer les paramètres cinétiques limite les capacités du modèle en généralisation.

Dans cette autre approche, nous voulons identifier différents modèles de cinétiques de nucléation, de croissance cristalline et d'agglomération qui présentent une précision satisfaisante sur un domaine (de validité) étendu. En effet, nous voulons des modèles de cinétiques qui soient le plus précis possible dans les conditions opératoires observées en milieu industriel. Par conséquent, ces modèles doivent être le plus flexible que possible. Aussi, de par les travaux déjà effectués dans ce domaine, nous avons choisi d'utiliser les réseaux de neurones pour modéliser les différentes cinétiques.

En effet, les réseaux de neurones présentent de réelles capacités à modéliser des fonctions non linéaires et peuvent apporter cette flexibilité que nous recherchons. Cependant, nous verrons que dans notre cas, pour permettre l'apprentissage du réseau neuronal, il sera nécessaire de coupler le réseau de neurones à l'équation de débit massique des cristaux. Ce couplage de modèles permet d'envisager différentes stratégies de modélisation hybride [Lauret, 1998], [Georgieva et al, 2003], ce qui présente un double avantage :

- la flexibilité que nous recherchons,
- la réduction des efforts de modélisations des cinétiques.

4.7.2 Position du problème.

Les précurseurs dans le domaine de la modélisation hybride de procédés (bioprocédés) sont Psychogios et Ungar [Psychogios et Ungar, 1992]. En effet, ils proposent une stratégie de modélisation hybride relative à un bioprocédé. Le modèle hybride combine un modèle de connaissance qui inclue toute la connaissance *a priori* disponible sur le procédé, et un réseau de neurones qui sert à estimer des paramètres difficiles à estimer. Ils montrent que le modèle hybride est plus flexible que les modèles classiques basés sur des techniques de programmation non linéaire. De plus cette procédure conduit à l'identification de modèles

ayant des capacités d'interpolation et d'extrapolation intéressantes. En fait, la partie connaissance du modèle hybride est composée des classiques bilans de matières. En complément, un réseau de neurones est utilisé pour modéliser la cinétique d'une transformation pour laquelle aucun modèle de connaissance n'est identifié, **figure 4.27** :

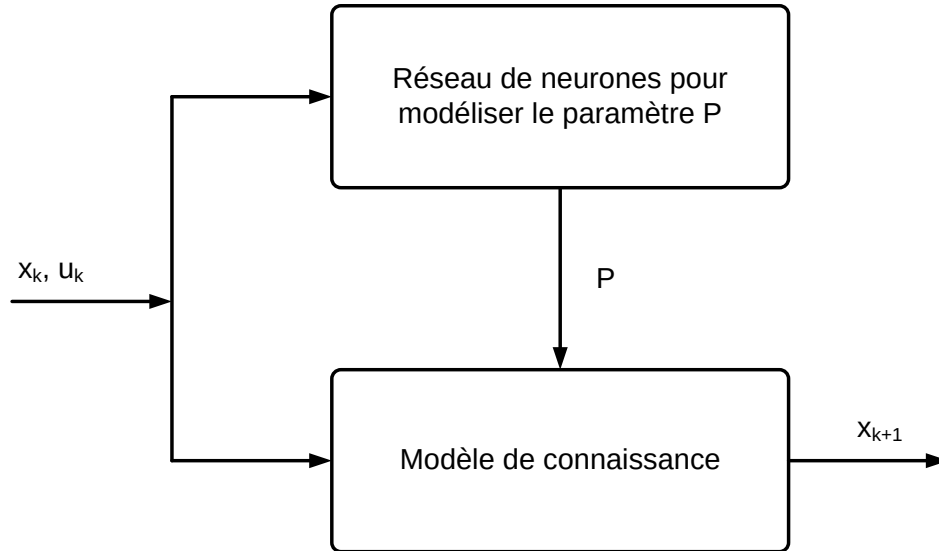


Figure 4.27 : modèle hybride selon Psychogios et Ungar [Psychogios et Ungar, 1992].

La sortie du réseau de neurones constitue une entrée du modèle de connaissance. En fait, à ce schéma correspond la représentation générale du système dynamique suivant :

$$\frac{dx}{dt} = f(x, u, p) \quad (4.11)$$

$$p = g(x, u) \quad (4.12)$$

x : vecteur d'état.

u : vecteur d'entrée.

p : vecteur des paramètres du procédé.

Le vecteur p représente généralement les paramètres cinétiques.

Face à la complexité des phénomènes de cristallisation et au lieu d'utiliser les expressions globales phénoménologiques pour modéliser les cinétiques de cristallisation. Rawlings [Rawlings et al, 1993] suggère l'utilisation des réseaux de neurones pour modéliser ces divers processus. Selon Rawlings, les réseaux de neurones présentent des propriétés de flexibilité, ce qui se révèle très intéressant dans l'optique de la mise en œuvre d'une commande à base de modèle interne.

Ploix et Dreyfus [Ploix et Dreyfus, 1995] introduisent une méthodologie appelée « **modélisation neuronale basée sur de la connaissance** » qui permet d'utiliser la

connaissance physique ou mathématique disponible dans les stratégies hybrides, tout en tirant profit de la flexibilité de ces outils.

Agarwal [Agarwal, 1997] propose une approche plus générale et plus formelle. Il présente différentes architectures qui toutes combinent la capacité de modélisation des réseaux de neurones à de la connaissance *a priori*. Ce concept est ensuite appliqué à l'identification et au contrôle des procédés et semble offrir d'intéressantes perspectives dans le cadre de la commande à base de modèle. Les figures suivantes présentent les trois schémas fondamentaux proposés par Agarwal dans le cadre de l'identification.

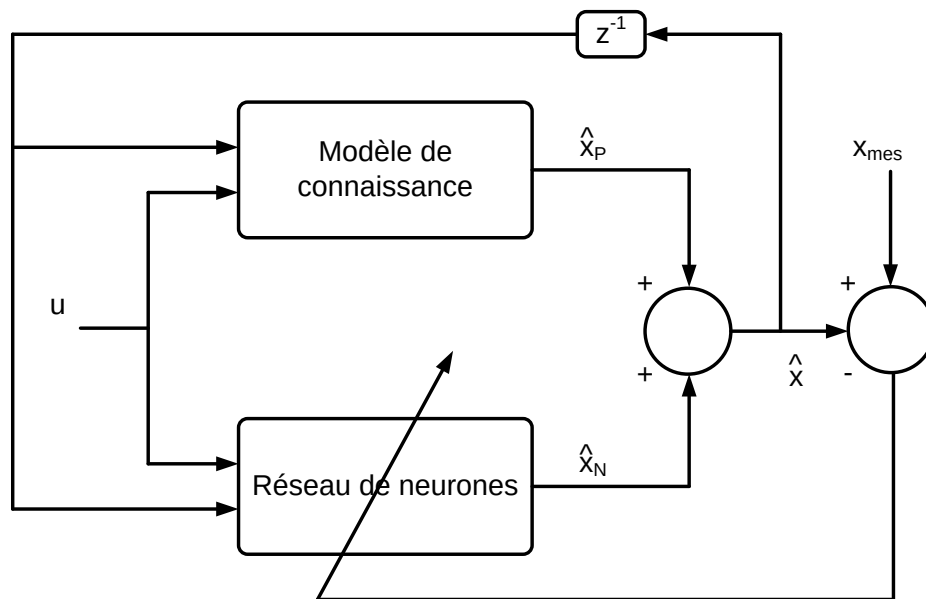


Figure 4.28 : modèle hybride type A.

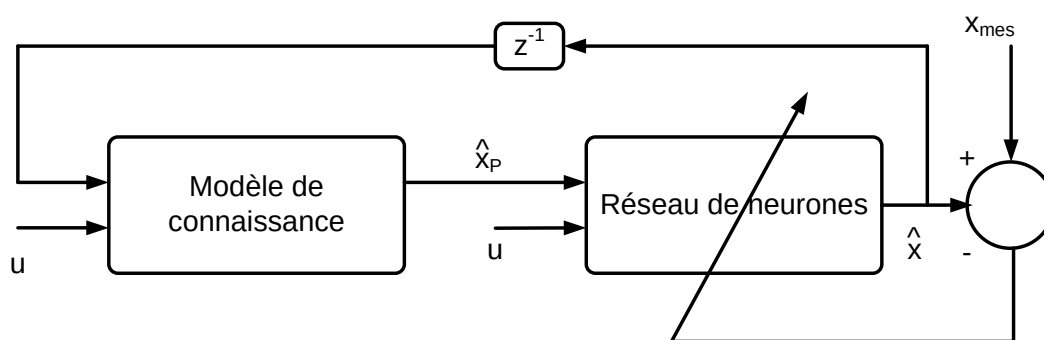


Figure 4.29 : modèle hybride type B.

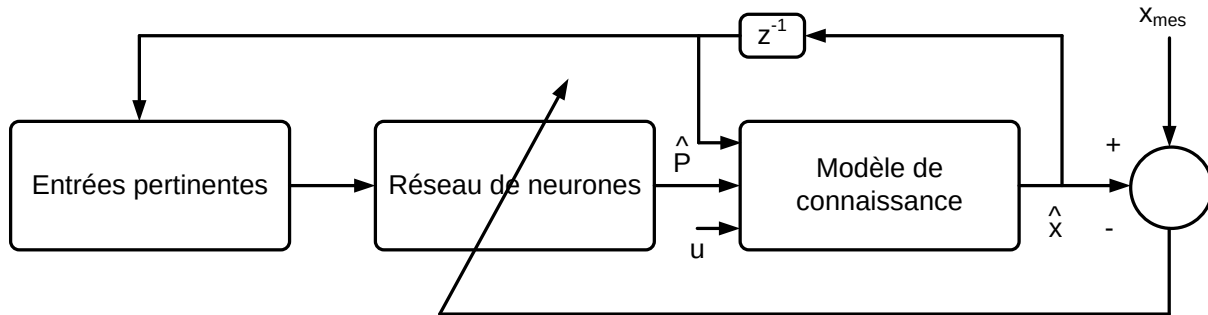


Figure 4.30 : modèle hybride type C.

Le schéma C correspond à celui présenté par Psychogios [Psychogios et Ungar, 1992]. Notre travail s'inscrit également dans ce schéma. Selon Agarwal ce schéma est très général et permet de riches variations pour le paramètre inconnu P . Ce dernier peut ainsi être soit simplement un paramètre soit une fonction inconnue. L'avantage du schéma C est que le modèle résultant garde la structure du modèle de connaissance et par conséquent peut être directement utilisé dans les architectures de commande à base de modèle interne.

Lauret [Lauret, 1998] utilise aussi la méthodologie appelée « **modélisation hybride basée sur de la connaissance** » qui permet d'utiliser la connaissance de la masse des cristaux dans la massecuite. Il utilise le schéma de type C présenté par Agarwal, pour identifier un modèle de la cinétique de croissance des cristaux, l'estimation des paramètres étant réalisée à partir de mesures faites sur le procédé du premier jet.

En 2003, Georgieva [Georgieva et al, 2003] fait également de la « **modélisation hybride basée sur de la connaissance** » de type C [Agarwal, 1997] en utilisant aussi la connaissance de la masse des cristaux. Son modèle plus complet lui permet d'identifier les cinétiques de nucléation, de croissance cristalline et d'agglomération.

Grâce à tous ces travaux déjà effectués dans le domaine de la modélisation hybride, nous pouvons dire que les réseaux de neurones constituent une alternative viable pour la modélisation des processus dynamiques non linéaire. Ces outils sont aussi particulièrement intéressants dans le cas où la compréhension théorique des phénomènes est insuffisante [Trélea, 1997]. Il est à noter que l'identification de tels modèles repose sur des bases de données expérimentales, riches et variées, pour la phase d'apprentissage du réseau de neurones.

4.7.3 Modélisations des cinétiques par réseaux de neurones.

Ainsi, pour nos modélisations, l'utilisation des réseaux de neurones semble tout à fait indiquée. Du fait de la complexité des phénomènes mis en jeu et de l'insuffisance des connaissances théoriques dans ce domaine, les cinétiques de nucléation, de croissance et

d'agglomération sont difficiles à modéliser. Cette complexité est illustrée par les nombreuses corrélations proposées dans la littérature. Nous avons vu que de nombreux facteurs interdépendants perturbent l'ensemble des cinétiques. Ce sont leurs comportements non linéaires qui rendent les modélisations difficiles. Toutefois, ces variables sont connues, et ainsi, l'espace des entrées du réseau de neurones peut être aisément précisé.

En ce qui concerne les données expérimentales nécessaires à l'apprentissage hybride du réseau de neurones, l'importante base de données de mesures industrielles que nous avons constituée au cours de la campagne sucrière 2004 à l'usine de Bois Rouge répond à ce besoin. Nous verrons, à la différence des approches classiques, que les réseaux de neurones ne requièrent pas, d'hypothèses *a priori* sur le type de relations existant entre les facteurs d'influence en entrée et les vitesses en sortie. Autrement dit, ils ne nécessitent pas d'hypothèses sur les mécanismes internes. Ce sont des outils qui offrent la possibilité d'une structure de modèle très générale.

4.7.4 Principe de la modélisation neuronale.

Cette section présente brièvement le principe de la modélisation neuronale. Une présentation plus détaillée des **Réseaux de Neurones Artificiels (RNA)** est donnée dans **[Bishop, 1994]**.

Les RNA sont des outils de modélisation très performants capables d'établir une relation non linéaire entre des données d'entrées et de sorties. Il existe plusieurs types de structure de réseaux de neurones. Pour modéliser les cinétiques qui nous intéressent, nous choisissons la structure du perceptron multi-couches, qui est constituée :

- d'une **couche d'entrée**, alimentées par les entrées du modèle.
- d'une ou plusieurs **couches cachées**, où se situent des éléments non linéaires : les neurones cachés. Ces derniers sont caractérisés par des fonctions d'activation non linéaire, qui peuvent être la fonction d'Heaviside, la fonction logistique, la fonction tangente hyperbolique.... D'après Bishop **[Bishop, 1994]**. La fonction tangente hyperbolique permet une convergence plus rapide des algorithmes d'apprentissage. C'est donc celle que nous choisissons pour nos modélisations :

$$f(x) = \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}} \quad (4.13)$$

- d'une **couche de sortie** où se situent les sorties du modèle, généralement affectée de la fonction linéaire.

Des connexions, auxquelles sont associés **des poids et des biais**, caractérisés par les vecteurs (**w**) et (**b**) lient les différents éléments de ces couches. La **figure 4.31** présente la structure d'un perceptron multi-couche à une couche cachée, et à une sortie :

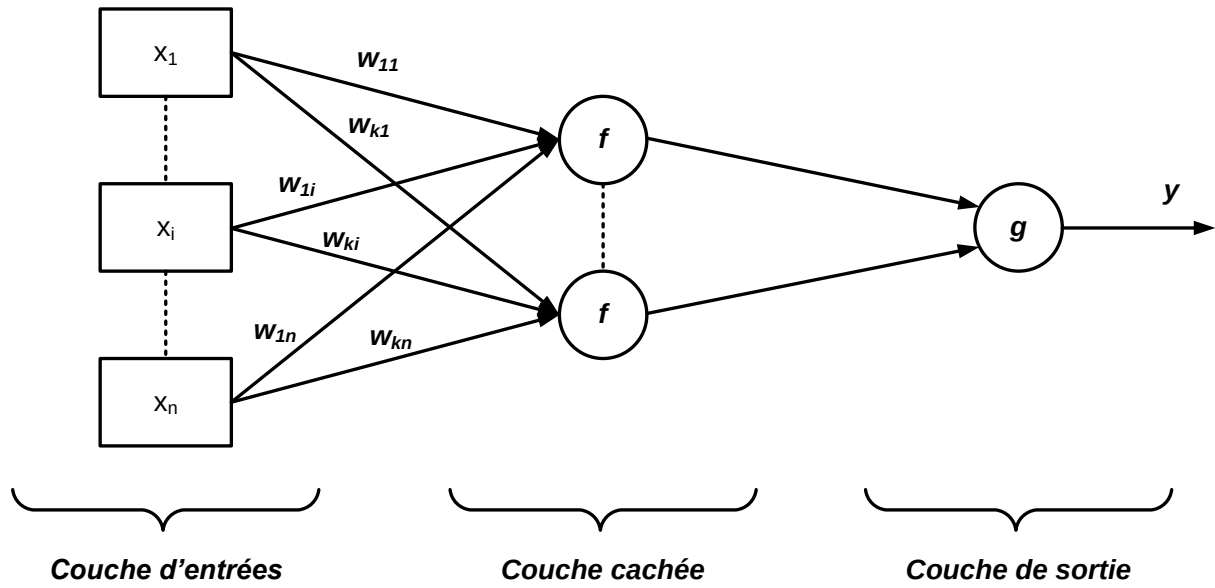


Figure 4.31 : structure d'un perceptron multi-couche à une couche cachée.

La structure du perceptron multi-couche produit une relation non linéaire entre les entrées, x_i , et la sortie, y . Dans le cas d'un RNA à une couche cachée, où la fonction d'activation des neurones cachés est la fonction tangente hyperbolique, et la fonction du neurone de sortie la fonction linéaire, la relation liant les entrées x_i et la sortie y est la suivante :

$$y = y(x; \mathbf{w}) = \sum_{j=1}^k \left[\mathbf{w}_j \cdot \tanh \left(\sum_{i=1}^n \mathbf{w}_{ji} \cdot x_i + b_{1j} \right) \right] + b_2 \quad (4.14)$$

Où :

k est le nombre de neurones cachés.

n est le nombre d'entrées.

Les poids ($\mathbf{w}$) et biais ($\mathbf{b}$) sont estimés lors de la phase d'apprentissage. Après plusieurs itérations sur la base d'apprentissage, le réseau apprend la relation entre les entrées et les sorties. Cette relation est définie par la structure du réseau (topologie et fonction d'activation), et par les valeurs des poids et biais. Les valeurs supposées optimales de ces paramètres sont ajustées en minimisant une fonction erreur, qui est habituellement la somme des erreurs quadratiques entre la sortie expérimentale, t_i , et la sortie du réseau $y(x_i; \mathbf{w})$:

$$E_d(\mathbf{w}) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \{y(x_i; \mathbf{w}) - t_i\}^2 \quad (4.15)$$

Où N est le nombre d'exemples.

La minimisation de $E_d(\mathbf{w})$ est obtenue en calculant les dérivées de $E_d(\mathbf{w})$ par rapport aux paramètres du réseau (poids et biais) : c'est la **rétropropagation du gradient**. Des algorithmes

d'optimisation sont utilisés pour la minimisation de $E_d(\mathbf{w})$ comme les plus utilisés : *l'algorithme Quasi-Newton*, *l'algorithme des gradients conjugués linéarisés* plus connu sous le sigle SCG pour « *scaled-conjugate gradients* » [Bishop, 1994] et *l'algorithme Levenberg-Marquardt*. Ce dernier sera utilisé pour toutes nos modélisations.

Les réseaux de neurones sont considérés comme des **approximateurs universels**, Hornik [Hornik et al, 1989] a en effet démontré qu'un perceptron multicouches avec une seule couche cachée, pourvue d'un nombre suffisant de neurones, peut approcher n'importe quelle fonction bornée suffisamment régulière, avec la précision souhaitée. Néanmoins, cette propriété présente un inconvénient : un apprentissage trop prononcé peut amener à reproduire le bruit contenu dans les données, on parle alors de **sur-apprentissage**. Le sur-apprentissage peut avoir deux origines :

- soit le nombre de passages sur base d'apprentissage est trop important.
- soit le modèle est trop complexe (le nombre de neurones cachés est trop élevé).

Différentes méthodes permettent de contrôler la complexité du modèle neuronal. Ainsi, **la technique de régularisation, dite du weight-decay** [Bishop, 1994] contribue à éviter le sur-apprentissage en ajoutant un terme de pénalité (le terme de weight-decay), à la fonction coût précédente (*équation 4.23*) :

$$S(\mathbf{w}) = E_d(\mathbf{w}) + \lambda E_w \quad (4.16)$$

avec :

$$E_w = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^p w_i^2 \quad (4.17)$$

Où p est le nombre total de poids et biais, et λ le coefficient de *weight-decay*.

L'expression de E_w vient de la constatation [Bishop, 1994] que de faibles valeurs pour les poids et biais favorisent la mise en place d'une fonction lissée (et évitent ainsi le sur-apprentissage).

Le coefficient de weight-decay contrôle le degré de régularisation : si la valeur de λ est trop importante, le modèle ne tient pas compte des données de la base d'apprentissage. Inversement, si la valeur de λ est trop faible, le sur-apprentissage peut survenir. Il existe donc une valeur optimale qui offre le meilleur compromis entre sur-apprentissage et sous-apprentissage.

Notons que le nombre de neurones cachés optimal et la valeur optimale de λ sont déterminés, dans l'approche classique, par une méthode de validation croisée (appelée également Cross-Validation).

4.7.5 Modélisations hybrides des différentes cinétiques.

4.7.5.1 Structures des modèles Hybrides Basés sur de la Connaissance (HBC).

Nous avons vu dans les sections précédentes que nous pouvions calculer les masses des cristaux contenus dans le cristalliseur C540. Dans ce qui suit, nous proposons une architecture qui combine un réseau de neurones à de la connaissance *a priori*, laquelle sera représentée par le débit massique des cristaux dans le cristalliseur.

Nous avons vu aussi à la **section 3.3.4.1.4** que ce débit massique pouvait s'écrire :

$$\frac{dm_c}{dt} = q_{cris} \quad (4.18)$$

avec :

$$q_{cris} = 3(\rho_c k_v \mu_0)^{1/3} (m_c)^{2/3} G \quad (4.19)$$

Plusieurs modèles de connaissance ont été présentés aux sections précédentes avec des entrées et des sorties différentes :

Entrées :

- Sursaturation β , pureté de la liqueur mère Pte_{LM} , température de la masse cuite T_{MC} et la teneur en cristaux CC ou le volume en cristaux VC .

Sorties :

- Cinétique de croissance linéaire G ou combinaison des trois cinétiques : nucléation B , croissance G et agglomération β' .

Nous avons voulu être cohérent avec cette démarche et nous avons pour cela développé plusieurs modèles hybrides avec les mêmes entrées-sorties, **figure 4.32**. Il sera donc possible de comparer les approches.

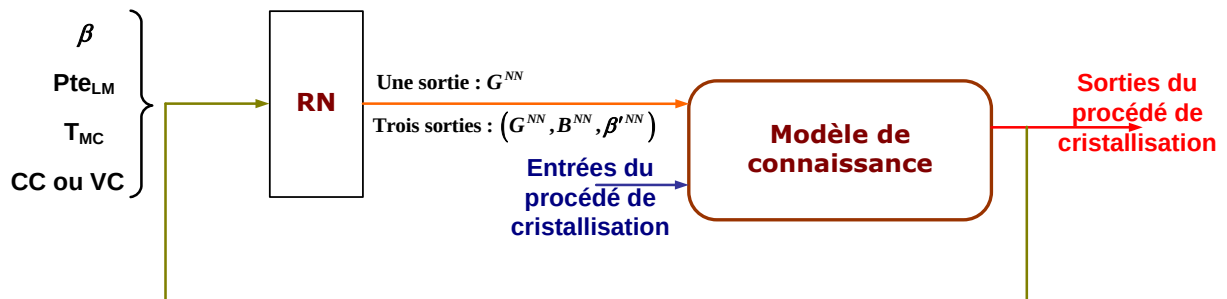


Figure 4.32 : structures des modèles Hybrides Basés sur de la Connaissance (HBC).

4.7.5.2 Procédure d'apprentissage hybride.

Cette procédure nous conduit à un apprentissage spécifique qui est appelé hybride. L'erreur observée E^{obs} entre la prédiction du modèle hybride et la masse des cristaux mesurée est rétro-propagée dans le modèle du débit massique des cristaux. Cette erreur est ainsi convertie en un signal d'erreur adéquat pour l'apprentissage E^{app} du réseau de neurones. Cet apprentissage hybride est décrit à la **figure 4.33** suivante :

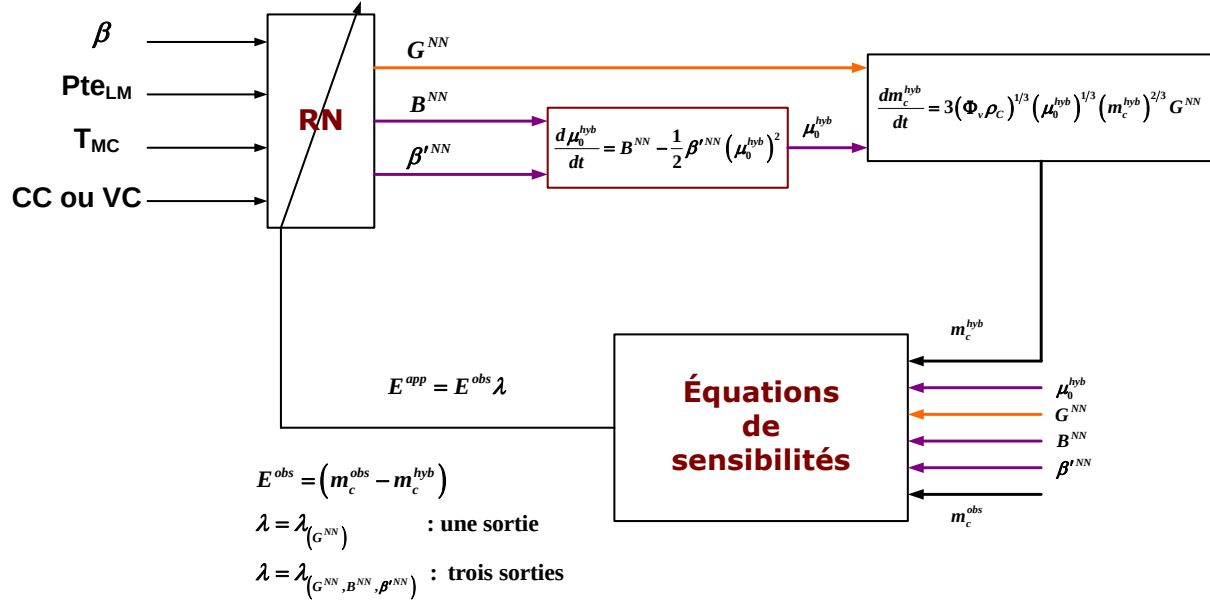


Figure 4.33 : procédure d'apprentissage hybride.

En fait, ce signal d'erreur adéquat est la multiplication de l'erreur observée E^{obs} par le vecteur λ dont les composantes traduisent la sensibilité du modèle aux paramètres cinétiques G , B et β' :

$$E^{app} = E^{obs} \lambda \quad (4.20)$$

avec :

$$E^{obs} = m_c^{obs} - m_c^{hyb} \quad (4.21)$$

En d'autres termes, les poids du réseau de neurones sont modifiés proportionnellement à leur effet sur la masse des cristaux. Suivant les modèles choisis, les composantes de λ sont calculées en intégrant les équations différentielles de sensibilités.

Si nous considérons que nous n'avons qu'une seule sortie au réseau de neurones, c'est-à-dire la cinétique de croissance linéaire, alors la sensibilité λ est définie par λ_G , avec (**cf. annexe 7**) :

$$\frac{d\lambda_G}{dt} = 3(\phi, \mu_0, \rho_c)^{1/3} \left((m_c^{hyb})^{2/3} + \frac{2}{3} (m_c^{hyb})^{-1/3} \lambda_G G^{NN} \right) \quad (4.22)$$

Par contre si nous considérons que nous avons trois sorties au réseau de neurones, les cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération alors nous pouvons calculer le signal d'erreur adéquat grâce à la résolution du système d'équations différentielles de sensibilité suivante :

$$\frac{d\chi_B}{dt} = 1 - \beta^{iNN} \mu_0^{hyb} \chi_B \quad (4.23)$$

$$\frac{d\chi_{\beta'}}{dt} = -\mu_0^{hyb} (\beta^{iNN} \chi_{\beta'} + 0.5\mu_0^{hyb}) \quad (4.24)$$

$$\frac{d\lambda_G}{dt} = (\phi_V \mu_0^{hyb} \rho_c)^{1/3} \left(2(m_c^{hyb})^{-1/3} G^{NN} \lambda_G + 3(m_c^{hyb})^{2/3} \right) \quad (4.25)$$

$$\frac{d\lambda_B}{dt} = (\phi_V \rho_c)^{1/3} G^{NN} \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{2/3} \left(2 \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{-1} \lambda_B + \chi_B \right) \quad (4.26)$$

$$\frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} = (\phi_V \rho_c)^{1/3} G^{NN} \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{2/3} \left(2 \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{-1} \lambda_{\beta'} + \chi_{\beta'} \right) \quad (4.27)$$

De plus amples détails sur ces calculs sont repris à l'**annexe 7**.

Il est à noter que la mise en œuvre de ces procédures d'apprentissage hybride a été possible en modifiant l'algorithme d'apprentissage de Levenberg-Marquardt disponible dans la boîte à outils MATLAB. La fonction tangente sigmoïde a été choisie pour l'ensemble des neurones cachés. Toutes les données expérimentales ont été normalisées entre 0,1 et 0,9, afin d'éviter les zones de saturation de la sigmoïde et de ramener les différentes variables à la même échelle. Nous avons utilisé un apprentissage de type batch, c'est-à-dire que les poids du réseau de neurones sont mis à jour après une présentation complète de la base d'apprentissage.

La base d'apprentissage est constituée des observations de sursaturation, de la pureté de la liqueur mère, de la température de la masse cuite et de la teneur en cristaux ou de la fraction volumique des cristaux. Les valeurs normalisées de ces variables d'entrée sont propagées à travers le réseau de neurones. Suivant les sorties choisies, il s'agit soit d'une estimation de la cinétique de croissance linéaire (*une sortie*), soit d'une estimation des cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération (*trois sorties*). Après dénormalisation, ces sorties sont injectées dans le bilan de matière, (**figure 4.33**). Comme dans l'approche classique, les équations différentielles sont intégrées par une méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 afin d'obtenir les réponses du modèle. L'erreur entre l'estimation du modèle et la masse des cristaux observée peut être alors calculée et convertie en une erreur appropriée pour l'apprentissage par intégration de l'équation de sensibilité.

Pour arriver à une structure convenable, nous avons effectué plusieurs apprentissages. Les meilleures structures obtenues résultent d'un compromis entre le niveau de flexibilité et la capacité de généralisation. La propriété de parcimonie est vérifiée car la couche cachée des

différents réseaux de neurones ne comporte que 5 ou 10 neurones cachés suivant les modèles, présentés ci-après :

Entrées du réseau de neurones	Nombre de neurones sur la couche cachée	Sorties du réseau de neurones
$\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, VC$	5	G^{NN}
$\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, CC$	5	G^{NN}
$\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, VC$	10	$G^{NN}, B^{NN}, \beta^{NN}$
$\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, CC$	10	$G^{NN}, B^{NN}, \beta^{NN}$

Tableau 4.7 : nombre de neurones cachés suivant le modèle choisi.

4.7.5.3 Modélisation de la cinétique de croissance linéaire.

Nous avons pu remarquer au cours des modélisations des cinétiques, que les résultats étaient sensiblement les mêmes suivant que le réseau est alimenté en entrée par la combinaison $(\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, CC)$, **mod1**, ou la combinaison $(\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, VC)$, **mod2**, **figure 4.34**, ce qui est naturel puisque :

$$VC = \frac{\rho_{mc}}{\rho_c} CC \quad (4.28)$$

Une analyse de sensibilité aurait montré que ces entrées sont corrélées (à condition de les avoir mises en même temps). Donc l'utilisation de CC ou VC en entrée de modèle suffit à modéliser les cinétiques.

Ainsi, nous ne présenterons que les résultats comportant en entrée de modèle la combinaison $(\beta, Pte_{LM}^{\%}, T_{MC}, CC)$.

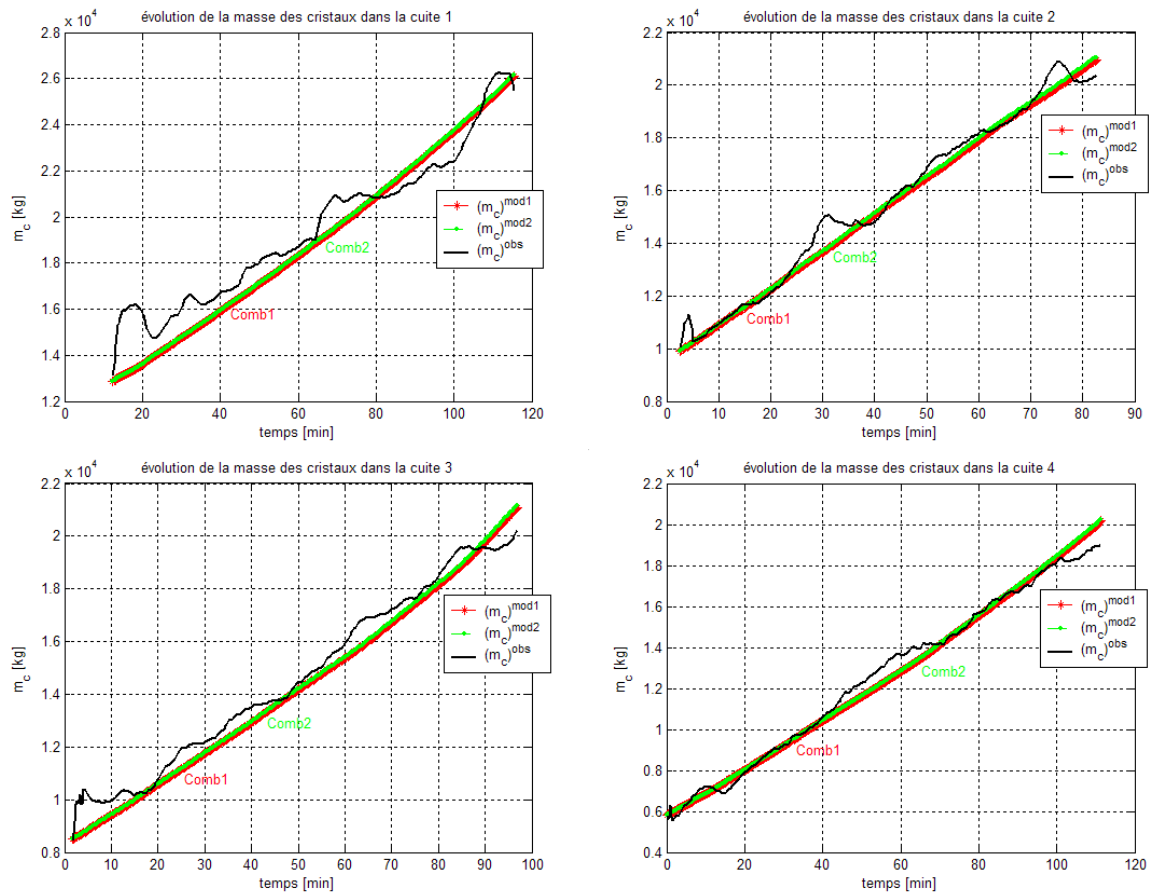


Figure 4.34 : résultats des modélisations avec les entrées *mod1* et *mod2*.

4.7.5.3.1 Résultats de la phase d'apprentissage.

Pour la phase d'apprentissage hybride du réseau de neurones, la cuite 4 a été choisie comme cuite de référence. Ce choix est dû au fait que la plage de fonctionnement des variables englobe les plages de fonctionnement de ces mêmes variables pour les cuites 1, 2 et 3. Ainsi, l'utilisation d'une base suffisamment « riche », en apprentissage, permet d'améliorer les capacités de généralisation.

Sur la **figure 4.35**, nous représentons les résultats de la modélisation de la masse des cristaux, la cinétique de croissance linéaire hybride G^{NN} , calculée par le modèle hybride.

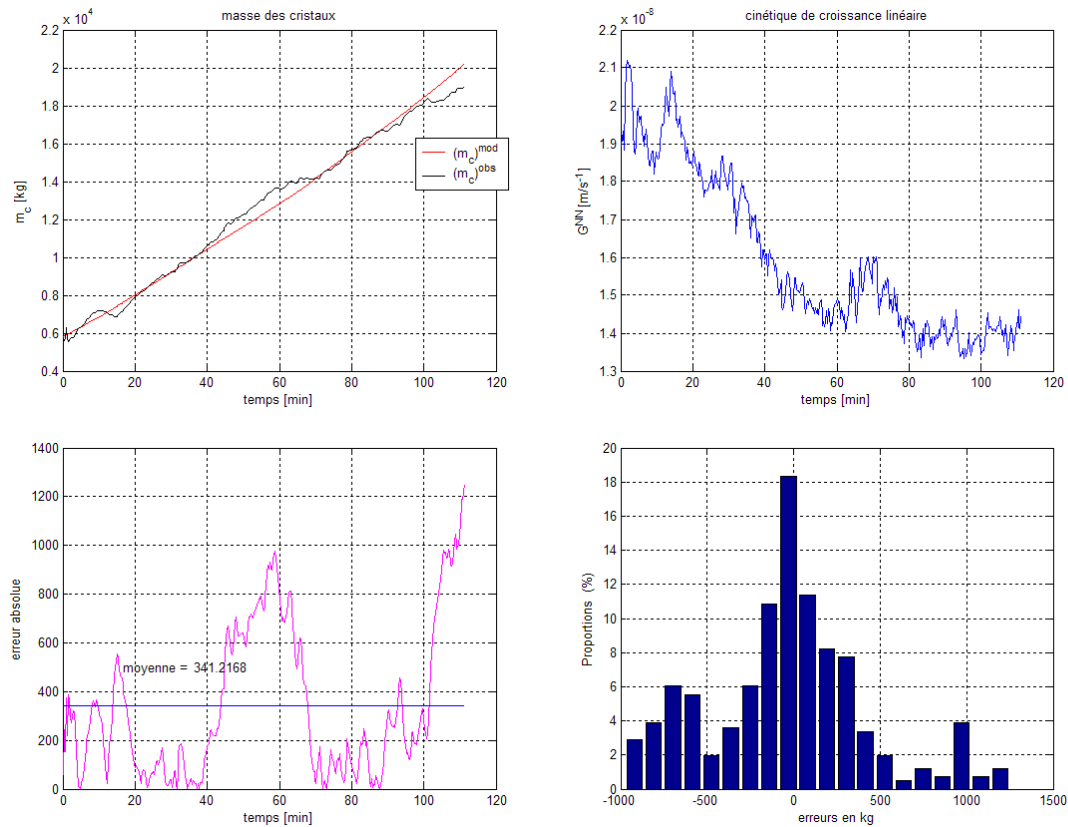


Figure 4.35 : résultats de l'apprentissage du modèle hybride.

4.7.5.3.2 Résultats de la phase de généralisation.

Pour la phase de généralisation les valeurs des poids et biais du RNA sont figés. Ainsi, nous pouvons tester le réseau de neurones sur les trois autres cuites 1, 2 et 3. Sur les **figures 4.36 à 4.38** qui suivent, nous représentons successivement les résultats de modélisation de la masse des cristaux et de la cinétique de croissance linéaire hybride.

Résultats des modélisations des cinétiques :

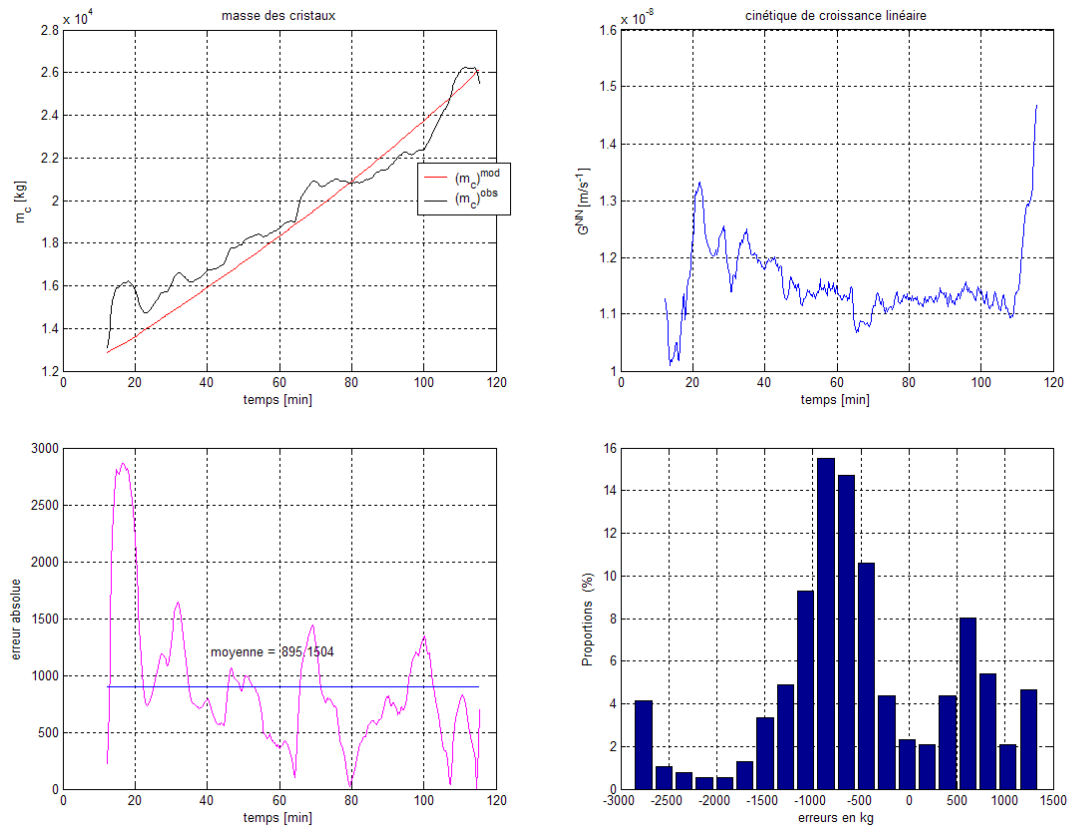


Figure 4.36 : résultats de la généralisation sur la cuite 1.

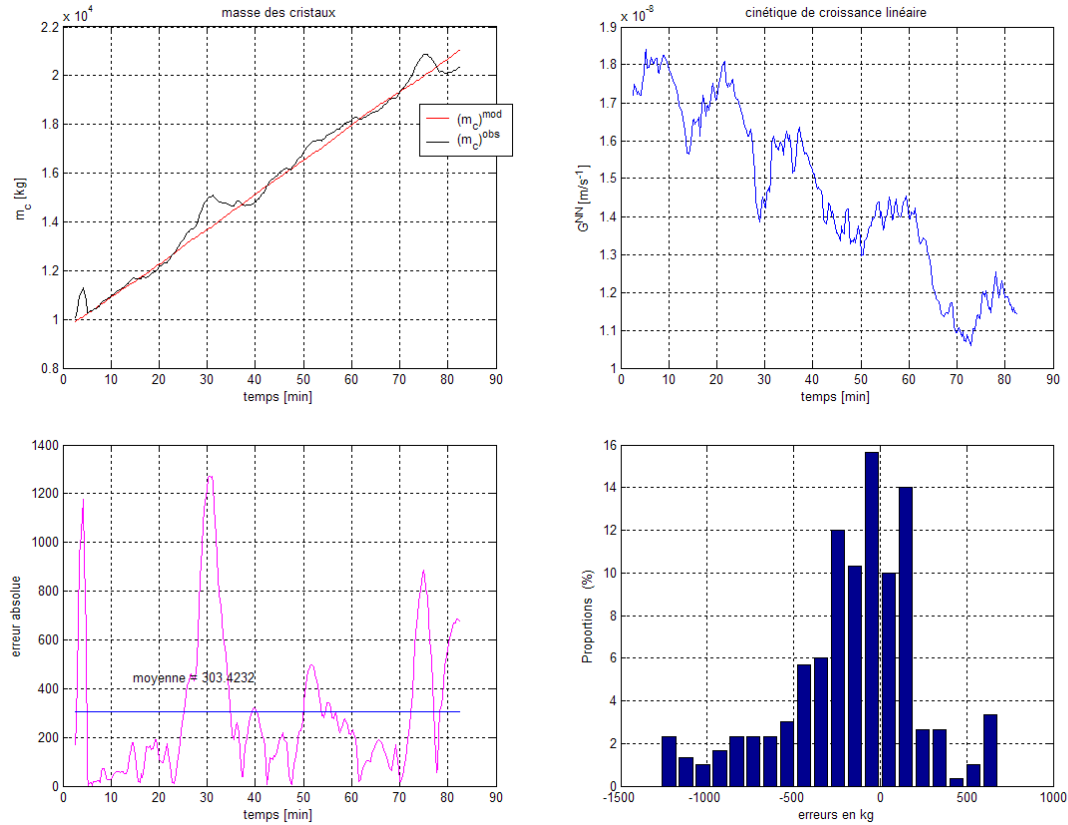


Figure 4.37 : résultats de la généralisation sur la cuite 2.

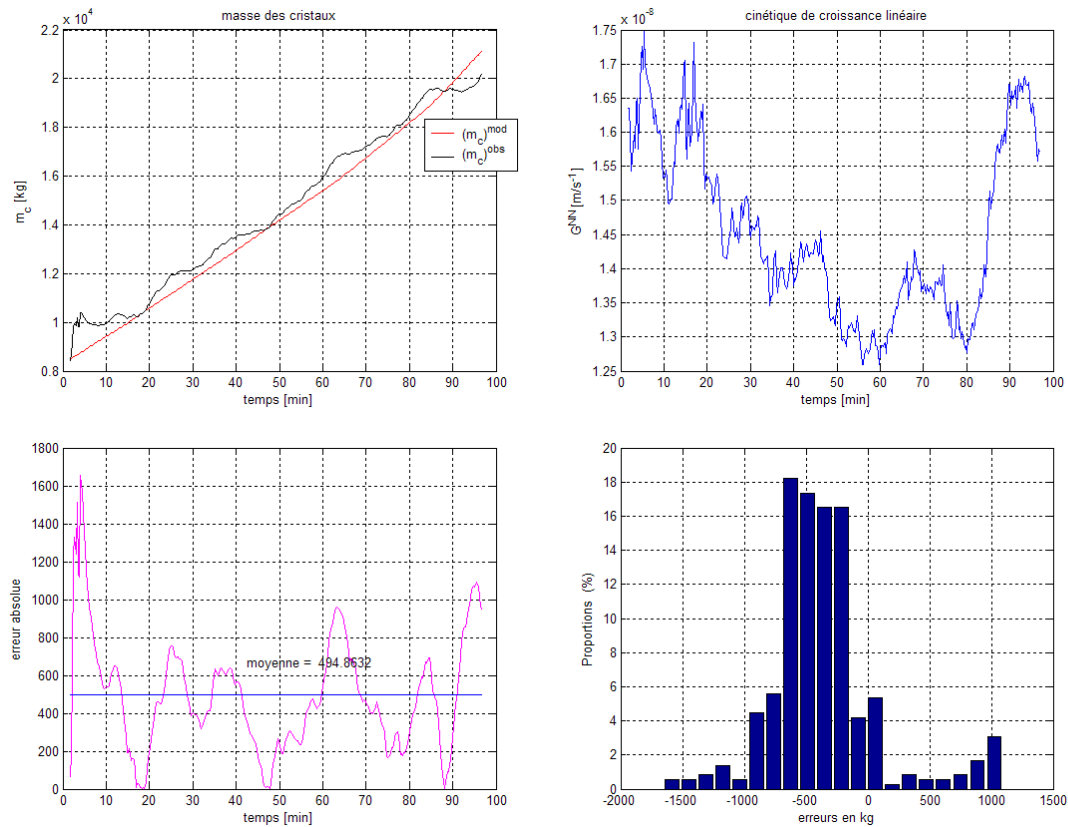


Figure 4.38 : résultats de la généralisation sur la cuite 3.

Ici, le réseau de neurones calcule la cinétique de croissance linéaire : les résultats des simulations sont plutôt satisfaisants dans le cadre d'un simulateur industriel. En effet, l'estimation de la masse des cristaux lors de chaque montée est proche de celle calculée expérimentalement.

4.7.5.4 Modélisation des cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération.

4.7.5.4.1 Résultats de la phase d'apprentissage.

Ici encore, pour la phase d'apprentissage hybride, la cuite 4 a été choisie comme cuite de référence pour les mêmes raisons évoquées dans la **section 4.7.5.3.1**.

Sur la **figure 4.39** suivante, nous représentons les résultats de la modélisation de la masse des cristaux, les cinétiques de nucléation B^{NN} , de croissance linéaire G^{NN} et d'agglomération β^{1NN} , calculées par le modèle hybride.

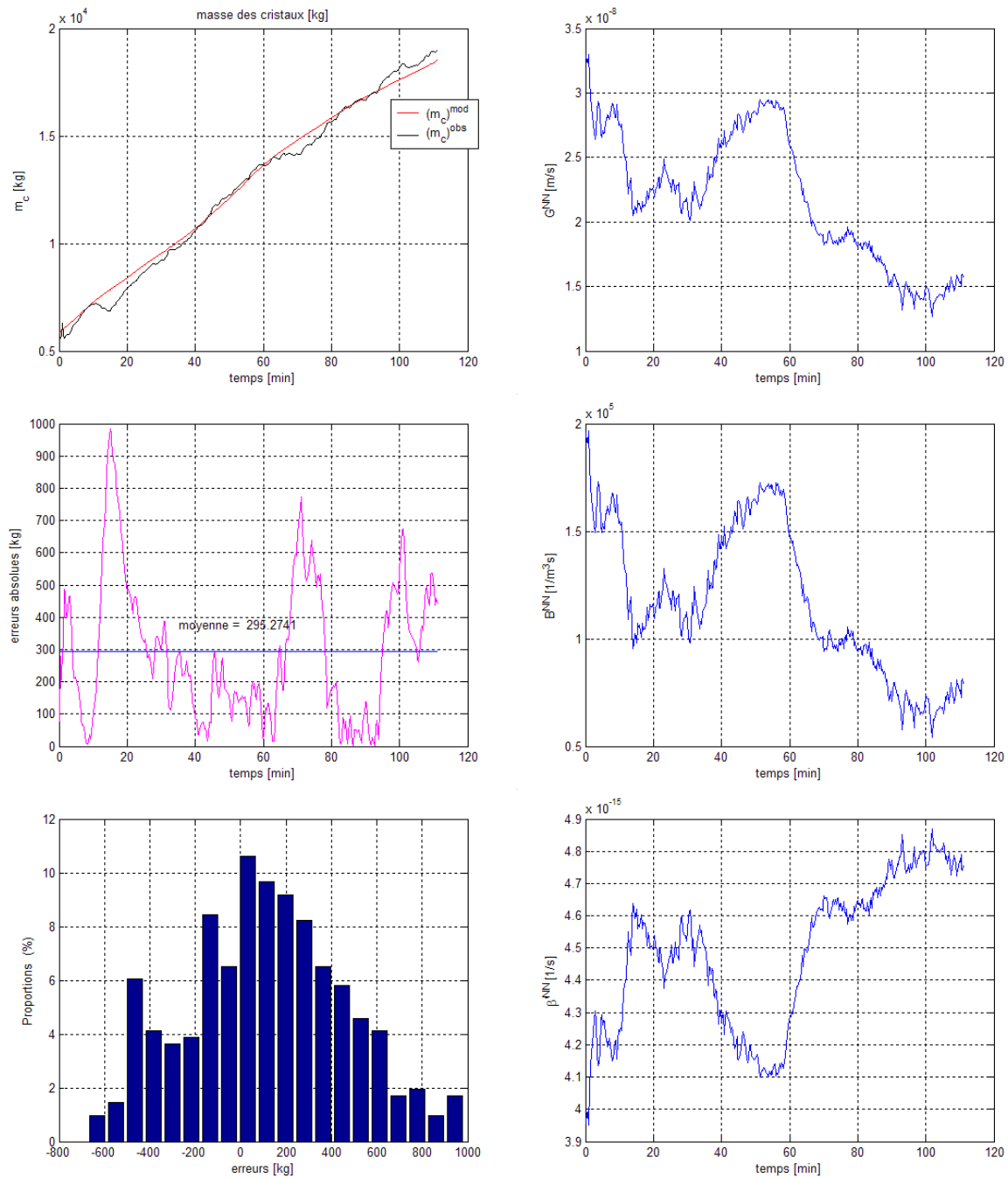


Figure 4.39 : résultats de l'apprentissage du modèle hybride.

4.7.5.4.2 Résultats de la phase de généralisation.

Dans cette nouvelle étape de généralisation, nous représentons sur les **figures 4.40 à 4.42**, les résultats de modélisation de la masse des cristaux et des paramètres cinétiques.

Résultats de modélisation des cinétiques et des masses de cristaux :

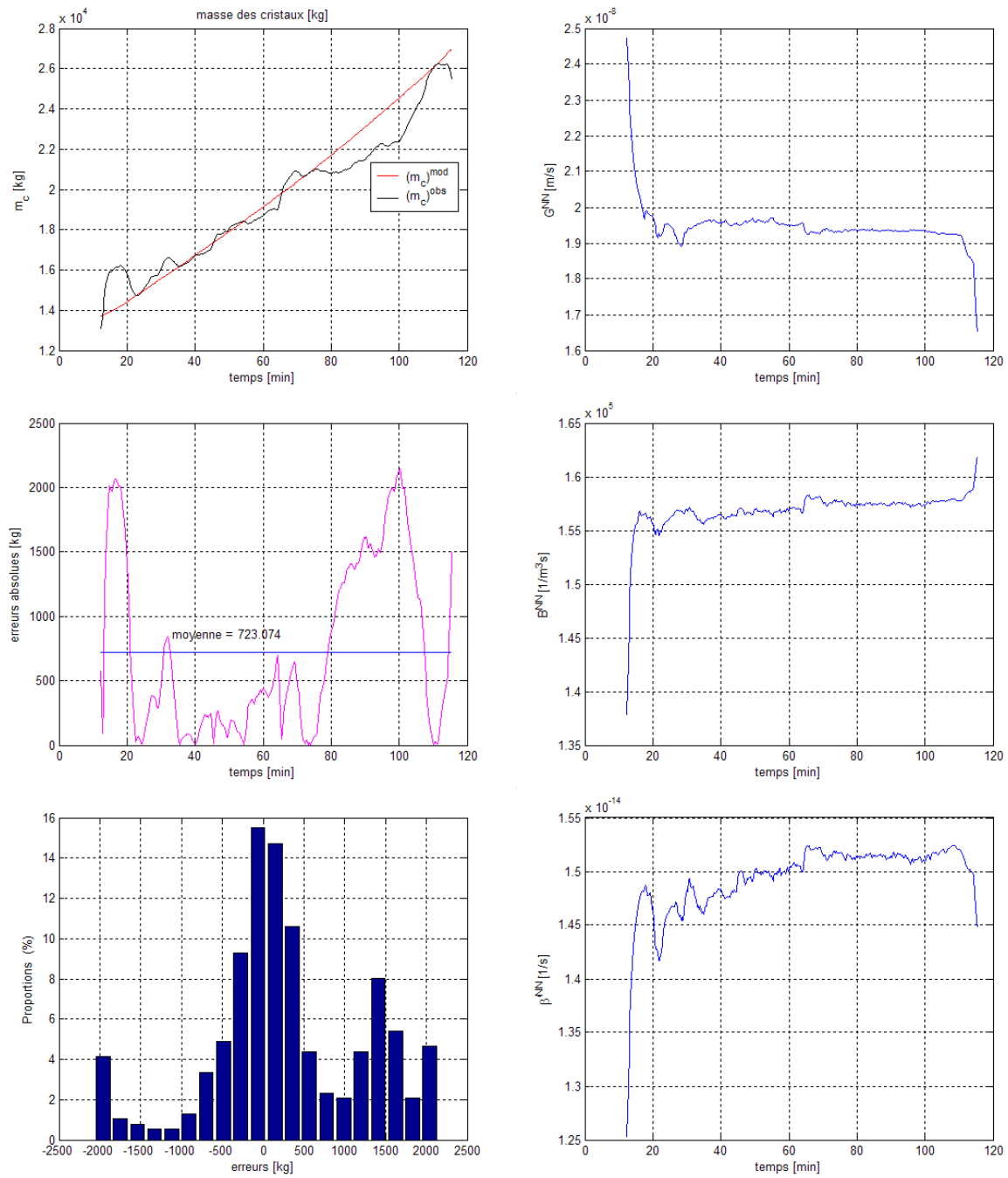


Figure 4.40 : résultats de la généralisation sur la cuite 1.

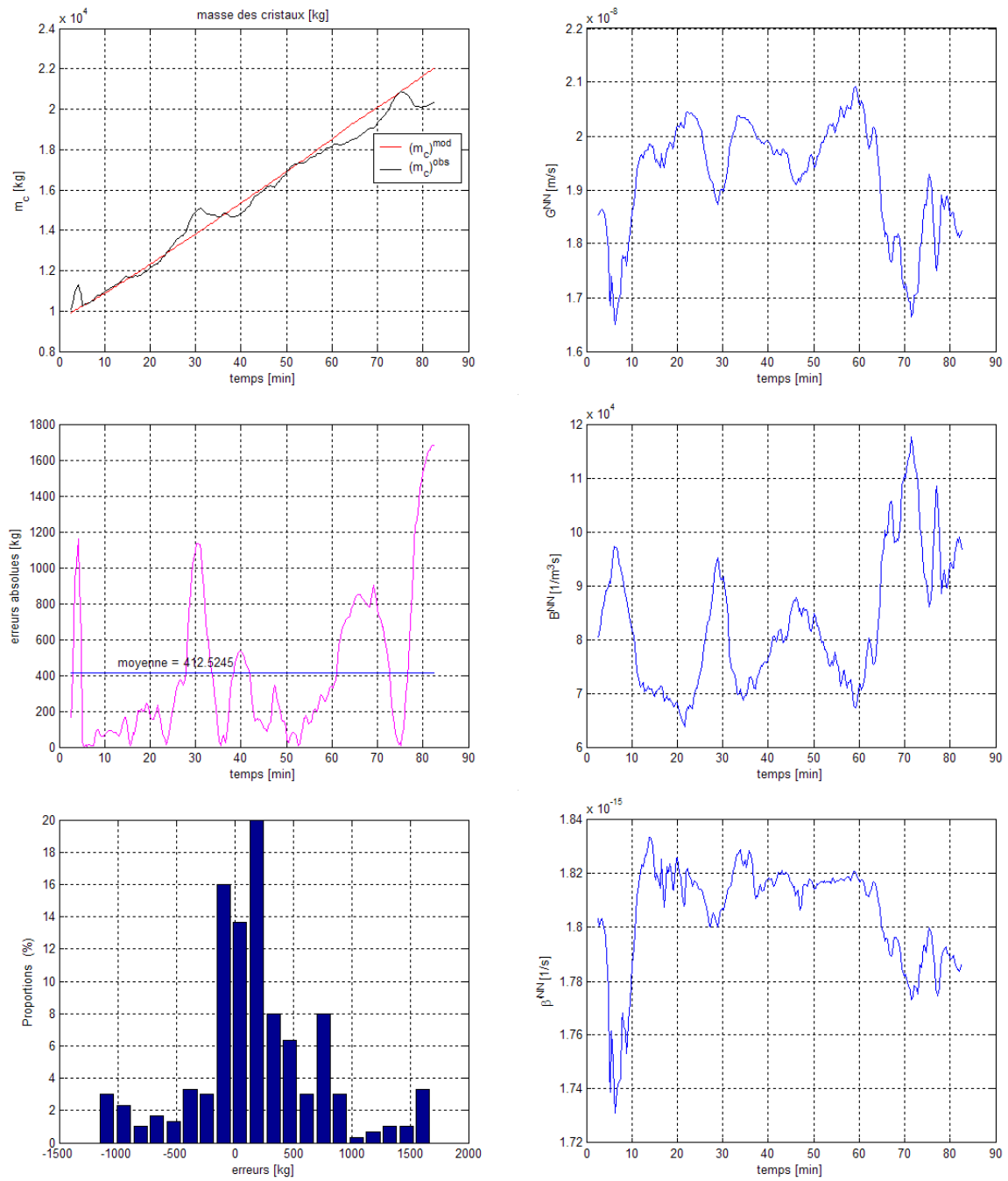


Figure 4.41 : résultats de la généralisation sur la cuite 2.

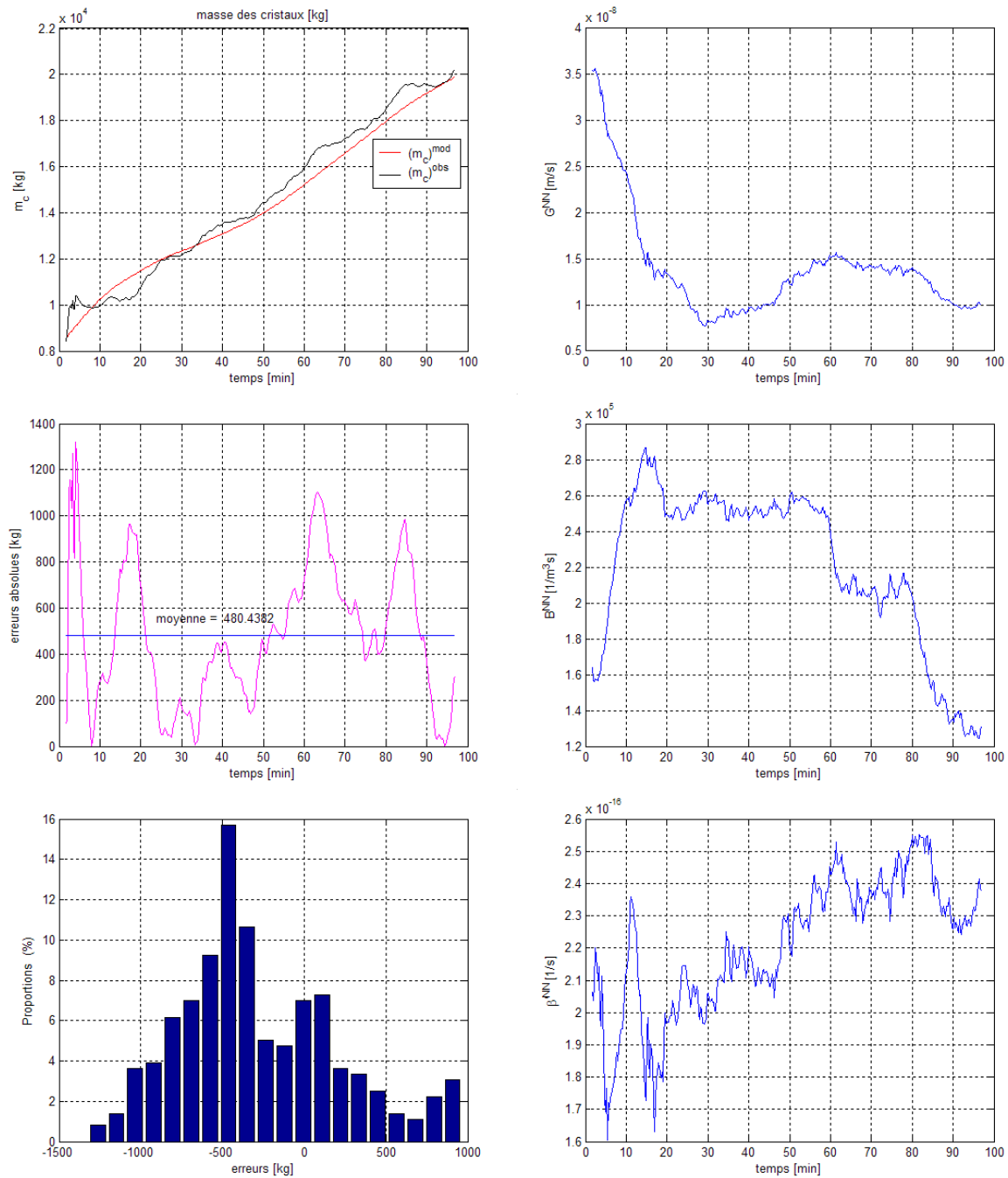


Figure 4.42 : résultats de la généralisation sur la cuite 3.

Nous avons modélisé les cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération. Nous constatons que les résultats sont convenables. En effet, l'estimation de la masse des cristaux lors de chaque montée est voisine de celle calculée expérimentalement.

4.7.5.5 Résumé sur les modélisations hybrides des différentes cinétiques.

Dans l'ensemble, les stratégies de modélisation hybride permettent d'obtenir de meilleurs résultats que les modèles de connaissance paramétriques. La modélisation hybride offre une plus grande capacité de généralisation pour différentes conditions opératoires contrairement

aux modèles de connaissance paramétriques, dont le comportement dépend très fortement des conditions locales.

Il est important de rappeler que la modélisation hybride permet de ne faire aucune hypothèse sur le type de relation existant entre les cinétiques considérées dans la solution et les variables d'entrées (les grandeurs physiques). Ainsi, il nous est nécessaire de préciser simplement les entrées du modèle.

4.8 Synthèse des résultats de modélisation.

Dans les tableaux suivants, nous avons reporté les erreurs absolues moyennes obtenues lors des modélisations des masses des cristaux sur les quatre cuites. Tout d'abord, nous présentons les résultats des modèles de connaissance paramétriques, puis les résultats de la modélisation par différences finies temporelles et enfin ceux des modèles hybrides.

Modèles de connaissance paramétrique : Modèle 1

	Cinétique de croissance				Cinétiques de nucléation + croissance + agglomération			
	Cuites				Cuites			
	1	2	3	4	1	2	3	4
1^{er} cas	754,3	287,2	290,0	307,3	711,8	299,8	318,8	383,5
2^{ème} cas	2153,3	3130,7	2028,8	307,3	2084,9	3056,4	1973,5	383,5
3^{ème} cas	778,0	1961,7	296,6	4421,7	817,2	1681,8	382,8	3590,8

Tableau 4.8 : valeurs des erreurs absolues moyennes (en kg) faites lors des modélisations des masses des cristaux par les modèles de connaissance paramétrique.

1^{er} cas : résultats de simulations faites en utilisant les valeurs des paramètres optimisés de chacune des cuites (**tableaux 4.5 et 4.6**).

2^{ème} cas : résultats de simulations faites en utilisant les valeurs des paramètres optimisés de la cuite 4 (**tableaux 4.5 et 4.6**).

3^{ème} cas : résultats de simulations faites en utilisant la valeur moyenne de chaque paramètre (**tableaux 4.5 et 4.6**).

Notons que les calculs des erreurs absolues moyennes sont ici obtenus par la comparaison entre les données expérimentales et les résultats des simulations des masses des cristaux par les modèles de connaissance paramétriques. Par soucis de clarté, nous n'avons pas présenté les résultats des simulations effectuées grâce aux valeurs des paramètres optimisés de la cuite 4 et aux valeurs moyennes des paramètres cinétiques (**2^{ème} et 3^{ème} cas**).

Modélisation par différences finies temporelles : Modèle 2

Cuites			
1	2	3	4
815,6	619,2	1137,8	906,7

Tableau 4.9 : valeurs des erreurs absolues moyennes (en kg) faites lors des modélisations des masses des cristaux par modélisation par différences finies temporelles.

Nous constatons, dans l'ensemble, que les valeurs d'erreur absolue moyenne obtenues par la modélisation par différences finies temporelles sont plus importantes que les valeurs obtenues par les deux autres types de modélisation (*modèles connaissance paramétrique (1^{er} cas) et hybride*), ce qui est confirmé par les **tableaux 4.8, 4.9 et 4.10**.

Ceci est dû au fait qu'il est nécessaire, pour ce type de modélisation, de réactualiser l'initialisation des variables d'entrée : la température de la masse cuite et les deux Brix (mesures en ligne), et la valeur de la pureté de la liqueur mère (mesure faite en laboratoire). En pratique ceci ne poserait aucun problème, ces réactualisations pouvant se faire à des intervalles de temps relativement long (45 minutes).

Modèles hybrides : Modèle 3

Cinétique de croissance (modélisation neuronale à une sortie)				Cinétiques de nucléation + croissance + agglomération (modélisation neuronale à trois sorties)			
Cuites				Cuites			
1	2	3	4	1	2	3	4
895,2	303,4	494,9	341,2	723,1	412,5	480,4	295,3

Tableau 4.10 : valeurs des erreurs absolues moyennes (en kg) faites lors des modélisations des masses des cristaux par les modèles hybrides.

L'observation des erreurs absolues moyennes calculées sur les masses des cristaux simulées et calculées expérimentalement, montre une précision accrue des approches hybrides. En effet, en comparant les résultats des **tableaux 4.8 et 4.10**, nous constatons une nette amélioration des valeurs des erreurs de simulation. Ceci confirme bien que la modélisation hybride offre une plus grande capacité de généralisation pour différentes conditions opératoires.

4.9 Conclusion.

Comme nous avons pu le voir dans la dernière partie de ce chapitre, les réseaux de neurones présentent un avantage majeur pour la modélisation. En effet, les structures des différents modèles ne sont pas imposées ainsi que leur paramétrisation. Notons aussi que le modèle hybride donne de meilleurs résultats comparés aux deux autres types de modèles et de meilleures capacités de généralisation.

Plusieurs travaux [Lauret, 1998], [Georgieva et al, 2003] ont montré que l'approche hybride est intéressante à chaque fois qu'un paramètre difficilement modélisable se trouve inclus dans une structure de modèle de connaissance. Cette structure est représentée par des bilans de matières et d'énergie. Le paramètre à modéliser est généralement un terme de transfert de matière ou de chaleur (**chapitre 5**). L'estimation de ce dernier est complexe car les fonctionnelles à la base de son calcul présentent de fortes non linéarités. Pour estimer ce paramètre, nous utilisons souvent des expressions qui contiennent un grand nombre de paramètres à ajuster par diverses méthodes de programmations non linéaires.

Au-delà de ces avantages, la modélisation neuronale présente cependant un inconvénient. En effet lorsqu'on introduit un réseau de neurones pour estimer des paramètres utilisés dans un modèle de connaissance, la convergence de l'ensemble peut-être longue.

Dans notre cas de figure, nous avons dû attendre environ 5 à 6 jours de simulations avant d'avoir les résultats.

*« Le savant doit ordonner ;
on fait la Science avec des faits
comme une maison avec des pierres ;
mais une accumulation de faits n'est pas plus
une science qu'un tas de pierres n'est une maison. »*

*Henri Poincaré,
1854-1912*

CHAPITRE 5

Identifications des modèles et simulations : résultats expérimentaux

5	IDENTIFICATIONS DES MODELES ET SIMULATIONS : RESULTATS EXPERIMENTAUX....	187
5.1	Introduction.....	187
5.2	Identification des modèles.....	187
5.2.1	Estimation des paramètres énergétiques	187
5.2.1.1	Schéma d'estimation	188
5.2.1.2	Choix des valeurs initiales des paramètres énergétiques	190
5.2.2	Evaluations des erreurs de modélisations	190
5.3	Identification et simulation du modèle M1	190
5.3.1	Introduction.....	190
5.3.2	Estimation des paramètres énergétiques	191
5.3.3	Résultats de simulation de la température de la masse cuite et des Brix	192
5.3.3.1	Résultats de simulation pour les modèles 1 à 4	192
5.3.3.2	Résultats de simulation pour les modèles 5 à 8	197
5.4	Identification et simulation du modèle M2	202
5.4.1	Introduction.....	202
5.4.2	Estimations des paramètres énergétiques.....	202
5.4.3	Résultats de simulation de la température de la masse cuite et des Brix	203
5.5	Identification et simulation du modèle M3	208
5.5.1	Introduction.....	208
5.5.2	Estimation des paramètres énergétiques	208
5.5.3	Résultats de simulations de la température de la masse cuite et des Brix.....	209
5.5.3.1	Résultats de simulation obtenus grâce à l'utilisation de la cinétique de croissance linéaire.	209
5.5.3.1.1	Phase d'apprentissage	209
5.5.3.1.2	Phase de généralisation.....	211
5.5.3.2	Résultats de simulation obtenus grâce à l'utilisation des cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération.....	214
5.5.3.2.1	Phase d'apprentissage	214
5.5.3.2.2	Phase de généralisation.....	216
5.5.4	Résumé des modélisations de type M3	219
5.6	Synthèse des résultats obtenus lors des différentes modélisations	220
5.7	Conclusion.....	222

5 Identifications des modèles et simulations : résultats expérimentaux

5.1 Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les résultats de simulations de la température de la masse cuite et des deux Brix (liqueur mère et masse cuite) au cours des différentes montées 1. Ces montées sont désignées au chapitre précédent par les cuites 1 à 4.

La structure globale des modèles que nous utilisons pour ces simulations est identique. Comme nous avons vu précédemment, nous avons utilisé trois types d'approches pour modéliser le taux de variation de la masse des cristaux dans le cristalliseur. Tout d'abord nous présentons les résultats de modélisation :

- du modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué par une corrélation : **M1**,
- du modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué à l'aide de mesures en ligne par une différence finie temporelle : **M2**,
- du modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué par une relation hybride à l'aide d'un réseau de neurones : **M3**.

Nous présentons la démarche d'identification des modèles avant de présenter les résultats des simulations associés.

5.2 Identification des modèles

L'identification de nos modèles se déroule en six étapes définies à la **figure 4.3**.

5.2.1 Estimation des paramètres énergétiques

Nous avons utilisé des méthodes de programmation non linéaire pour estimer les paramètres cinétiques des modèles (**chapitre 4**). Ainsi, ayant estimé correctement les paramètres cinétiques des modèles de cristallisation, nous précisons alors les paramètres énergétiques α_Q et α_{vap} définis à la **section 3.3.4 (équation 3.3 et 3.17)**.

Cette étape d'estimation des paramètres énergétiques se retrouvera dans les étapes d'identifications des modèles développés, c'est-à-dire **M1**, **M2** et **M3**.

Le bilan de matières et le bilan d'énergie, **section 3.3.4**, sont des équations différentielles ordinaires non linéaires du premier ordre. Les solutions de ces bilans précisent les évolutions des masses d'eau, d'impuretés, de saccharose en solution, des cristaux de saccharose et l'évolution de la température de la masse cuite. Le critère d'erreur utilisé :

$$J(\theta) = \sum_1^n \left(\left((Bx_{LM}^{\%})^{obs} - (Bx_{LM}^{\%})^{mod} \right) + \left((Bx_{MC}^{\%})^{obs} - (Bx_{MC}^{\%})^{mod} \right) + \left((T_{mc})^{obs} - (T_{mc})^{mod} \right) \right)^2 \quad (5.1)$$

est construit à partir des variables de sortie du modèle : la température de la masse cuite, les masses d'eau, d'impuretés, de saccharose en solution et des cristaux de saccharose.

5.2.1.1 Schéma d'estimation

Nous reprenons le schéma classique général d'estimation des paramètres de Richalet [Richalet et al, 1971] (*figure 4.13*).

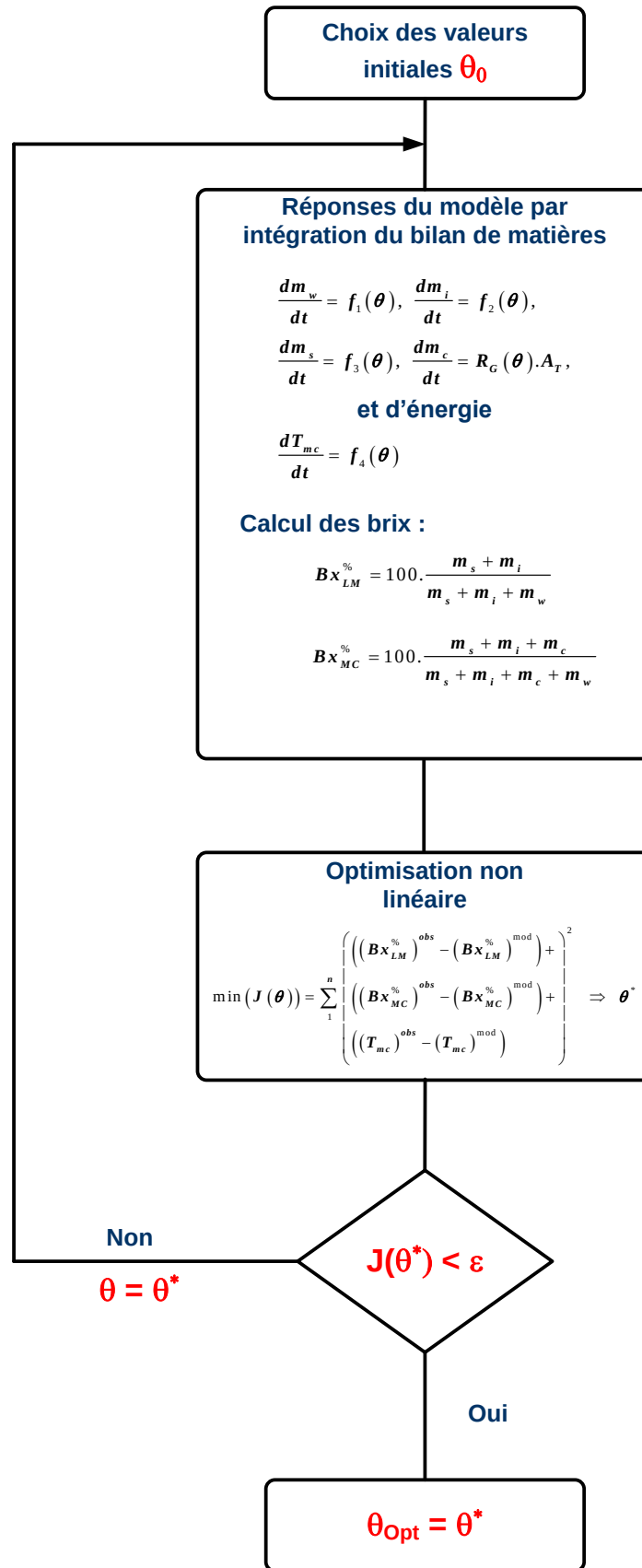


Figure 5.1 : schéma d'estimation des paramètres énergétiques.

θ_{opt} est le vecteur des paramètres optimisés et θ^* est le vecteur résultant de l'itération courante. Les intégrations numériques des équations différentielles ordinaires ont été faites en utilisant une méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 disponible dans l'environnement **MATLAB**.

5.2.1.2 Choix des valeurs initiales des paramètres énergétiques

La littérature ne précise pas les ordres de grandeurs des paramètres énergétiques utilisés pour effectuer les modélisations. Ainsi, les valeurs initiales des paramètres énergétiques que nous avons utilisé proviennent des différentes études et compréhensions du procédé de cristallisation C faites à l'usine de Bois Rouge [Lauret, 1998], [Benne, 1999]. Aussi, pour palier ce manque d'informations, nous avons tout simplement testé par méthode « essai erreur » différentes valeurs initiales de nos paramètres θ . Ainsi, nous avons pu constater que les valeurs des paramètres énergétiques étaient à chaque nouvelle estimation sensiblement les mêmes.

5.2.2 Evaluations des erreurs de modélisations

Comme pour la partie cinétique, nous présentons les erreurs de modélisation du procédé de cristallisation. Ainsi, nous calculons pour chaque modélisation les erreurs absolues moyennes et aussi les écarts types de ces erreurs. Nous représentons pour chaque modélisation du procédé de cristallisation les erreurs sur la température de la masse cuite et les deux Brix (liqueur mère et masse cuite). Il est à noter que nous avons accès à d'autres grandeurs (masse de l'eau, du saccharose en solution, des impuretés etc.) physiques dans la masse cuite. On représente, ici aussi, les proportions des erreurs pour voir la fiabilité des modèles. Pour cela, nous avons considéré pour les mesures des Brix une erreur de plus ou moins 0,5 Brix près et pour la température de la masse cuite une erreur de plus ou moins 1,0°C près.

5.3 Identification et simulation du modèle M1¹

5.3.1 Introduction

Dans cette section, nous présentons les résultats des estimations des paramètres énergétiques α_Q et α_{vap} . Pour cela, nous utilisons les mêmes bases de données des précédents chapitres.

Nous présentons les résultats des simulations de la température de la masse cuite, puis celle du Brix liqueur mère et enfin le Brix de la masse cuite. Nous comparons ces résultats aux données expérimentales.

¹ Modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué par une corrélation.

5.3.2 Estimation des paramètres énergétiques

Pour les optimisations des paramètres énergétiques, nous utilisons plusieurs méthodes de programmation non linéaire (Simplex Search, Levenberg-Marquardt, A.G). Les résultats obtenus sont sensiblement les mêmes. Les résultats de ces calculs sont dans les **tableaux 5.1** et **5.2**.

Coefficient α_Q :

MODELES ²	VALEURS DES PARAMETRES OPTIMISEES DES CUITES				MIN	MAX	MOYENNE	σ
	1	2	3	4				
1	1,8792	1,9055	2,2854	1,8113	1,8113	2,2854	1,9704	0,2138
2	1,8808	1,9072	2,2496	1,8455	1,8455	2,2496	1,9708	0,1876
3	1,8965	1,7415	2,2185	1,8874	1,7415	2,2185	1,9360	0,2013
4	1,8375	1,8483	2,3037	1,8791	1,8375	2,3037	1,9672	0,2251
5	1,8479	1,9428	2,2202	1,8077	1,8077	2,2202	1,9547	0,1859
6	1,8425	1,8752	2,2398	1,7276	1,7276	2,2398	1,9213	0,2216
7	1,8624	1,8023	2,1299	1,8785	1,8023	2,1299	1,9183	0,1448
8	1,8858	1,8763	2,1896	1,7575	1,7575	2,1896	1,9273	0,1844
MIN	1,8375	1,7415	2,1299	1,7276	1,7276	2,1299	1,8591	0,1870
MAX	1,8965	1,9428	2,3037	1,8874	1,8874	2,3037	2,0076	0,1989
MOYENNE	1,8666	1,8624	2,2296	1,8243	1,8243	2,2296	1,9457	0,1902
σ	0,0221	0,0645	0,0546	0,0593	0,0221	0,0645	0,0501	0,0191

Tableau 5.1 : paramètre α_Q pour chaque modèle et cuite.

Coefficient α_{vap} :

MODELES	VALEURS DES PARAMETRES OPTIMISEES DES CUITES				MIN	MAX	MOYENNE	σ
	1	2	3	4				
1	1,4641	1,5480	1,6246	1,6749	1,4641	1,6749	1,5779	0,0921
2	1,4571	1,4856	1,6711	1,6505	1,4571	1,6711	1,5661	0,1103
3	1,4881	1,5784	1,6563	1,5832	1,4881	1,6563	1,5765	0,0689
4	1,4068	1,3039	1,7344	1,7065	1,3039	1,7344	1,5379	0,2152
5	1,4469	1,5723	1,6323	1,6462	1,4469	1,6462	1,5744	0,0909
6	1,4429	1,4713	1,6532	1,5424	1,4429	1,6532	1,5275	0,0937
7	1,4297	1,3925	1,5903	1,6034	1,3925	1,6034	1,5040	0,1084
8	1,4429	1,2398	1,6302	1,5096	1,2398	1,6302	1,4556	0,1634
MIN	1,4068	1,2398	1,5903	1,5096	1,2398	1,5903	1,4366	0,1512
MAX	1,4881	1,5784	1,7344	1,7065	1,4881	1,7344	1,6269	0,1148
MOYENNE	1,4473	1,4490	1,6491	1,6146	1,4473	1,6491	1,5400	0,1070
σ	0,0240	0,1263	0,0423	0,0673	0,0240	0,1263	0,0650	0,0446

Tableau 5.2 : paramètre α_{vap} pour chaque modèle et cuite.

² Modèles définis à la **figure 4.12**.

Nous retenons les deux valeurs moyennes suivantes pour nos modèles :

$$\alpha_Q = 1,9457 \quad (5.2)$$

et

$$\alpha_{vap} = 1,5400 \quad (5.3)$$

5.3.3 Résultats de simulation de la température de la masse cuite et des Brix

5.3.3.1 Résultats de simulation pour les modèles 1 à 4

Les **figures 5.2 à 5.5** présentent les meilleurs résultats des quatre premiers modèles proposés à la **figure 4.12**. En effet, nous avons reporté dans le **tableau 5.3** suivant, les valeurs des erreurs absolues moyennes commises lors des simulations.

	CUITES	MODELE 1	MODELE 2	MODELE 3	MODELE 4
$moy_{abs}(T_{mc})^*$	1	1,16	1,16	3,09	1,08
	2	1,19	1,13	2,46	1,21
	3	2,50	2,48	4,18	2,43
	4	3,21	3,40	1,34	3,55
$moy_{abs}(Bx_{LM}^{\%})^*$	1	0,72	0,56	2,44	0,54
	2	0,67	0,52	2,40	0,54
	3	0,23	0,35	1,77	0,22
	4	0,40	0,26	1,92	0,20
$moy_{abs}(Bx_{MC}^{\%})^*$	1	0,24	0,24	0,24	0,24
	2	0,26	0,26	0,26	0,26
	3	0,51	0,51	0,51	0,51
	4	0,28	0,28	0,28	0,28

Tableau 5.3 : erreurs absolues moyennes commises lors des simulations.

Nous constatons que le 4^{ème} modèle donne de meilleurs résultats. Ceci s'explique du fait que ce modèle est l'un des plus complet et précis. En effet, certains paramètres de la cinétique de croissance cristalline sont explicités de façon à faire intervenir des grandeurs physiques comme la température de la masse cuite.

* $moy_{abs}(x) = moyenne\left(abs\left|(x)^{mod} - (x)^{obs}\right|\right)$

Nous représentons sur les **figures 5.2 à 5.5** suivantes, l'évolution du Brix liqueur mère, du Brix et de la température de la masse cuite. Nous représentons aussi les erreurs de modélisation par le biais des valeurs des erreurs absolues et de la distribution de ces erreurs.

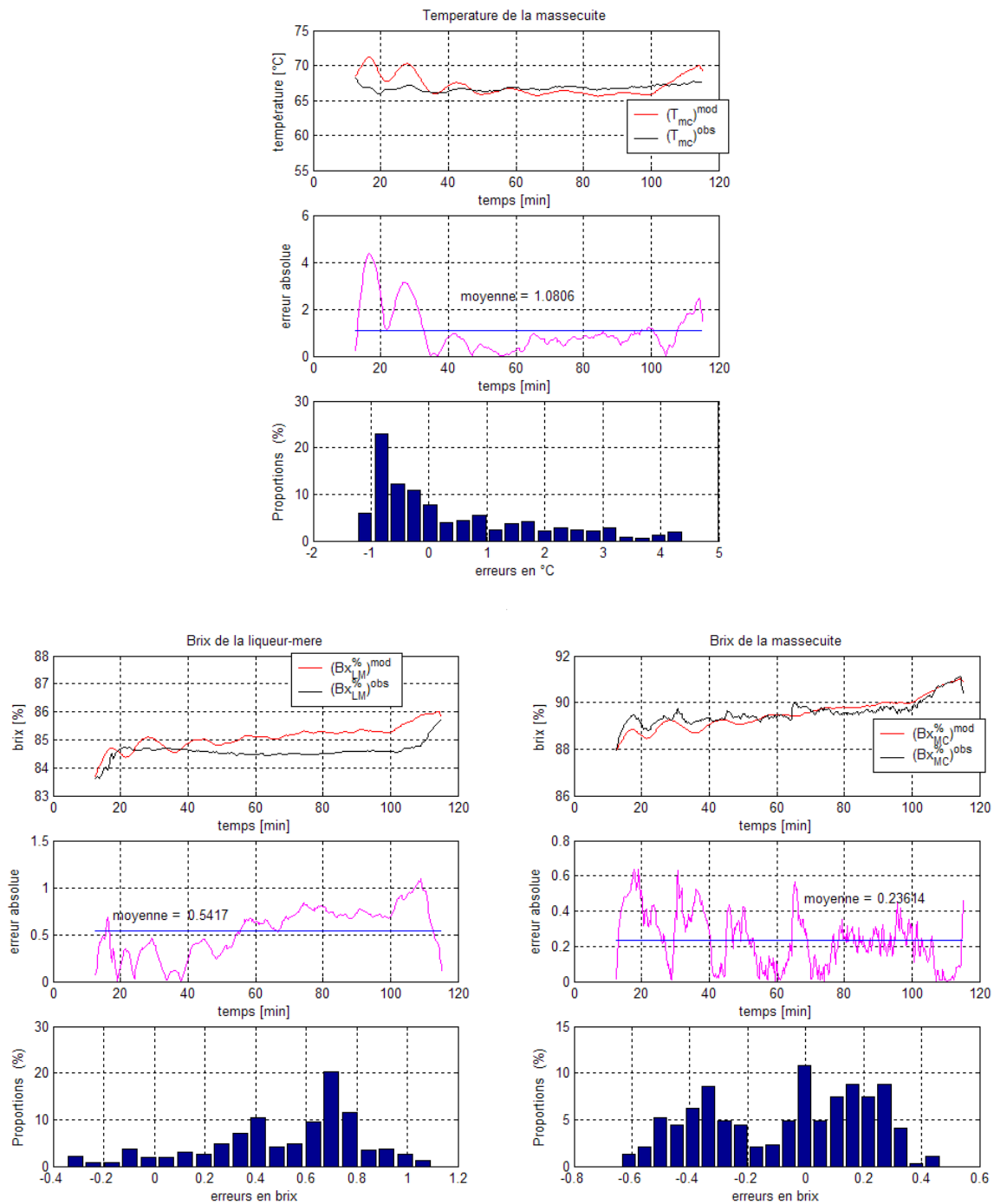


Figure 5.2 : résultats de simulation énergétique de la cuite 1.

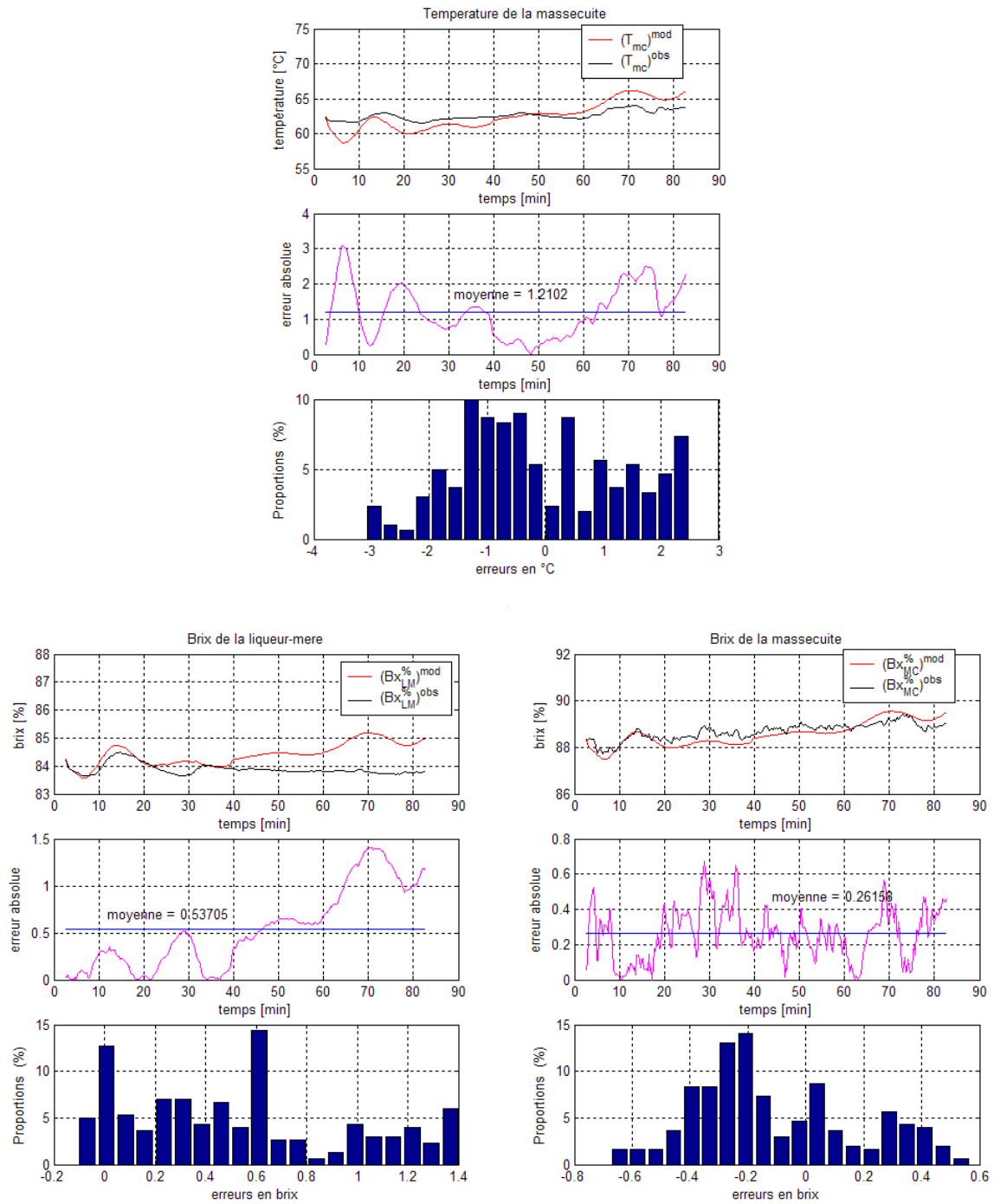


Figure 5.3 : résultats de simulation énergétique de la cuite 2.

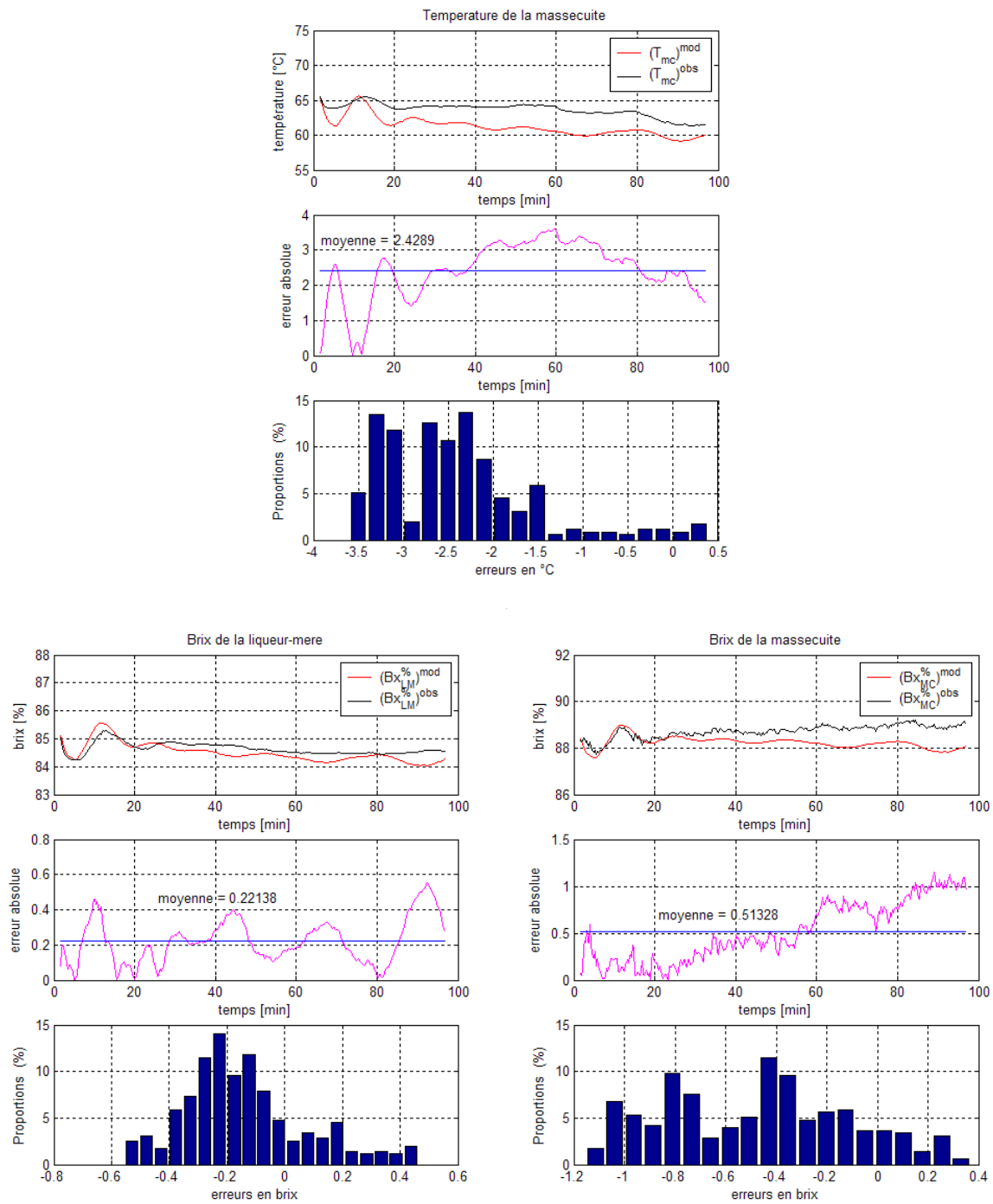


Figure 5.4 : résultats de simulation énergétique de la cuite 3.

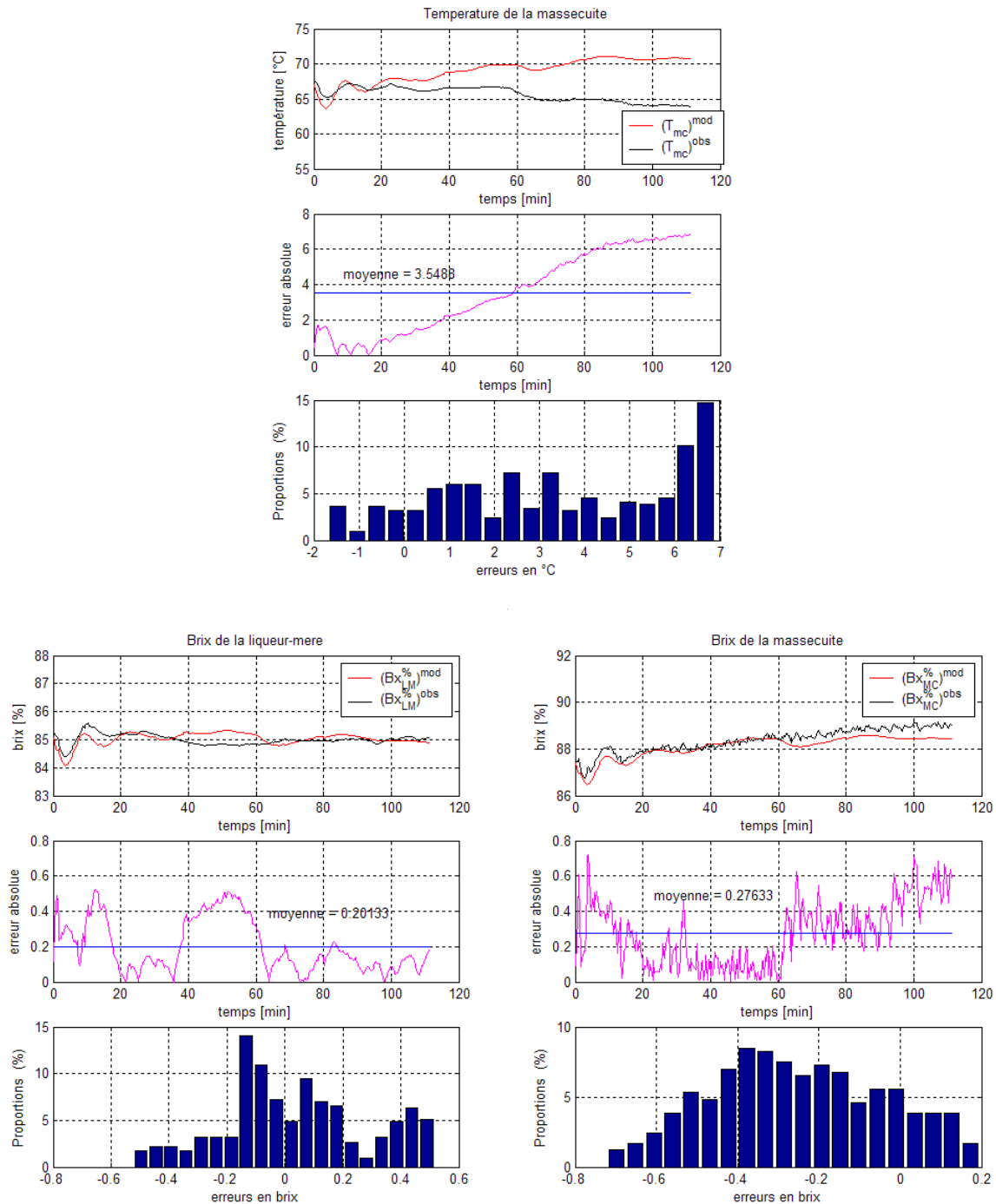


Figure 5.5 : résultats de simulation énergétique de la cuite 4.

Nous constatons que les simulations des trois grandeurs physiques Brix de la liqueur-mère, Brix et température de la massecuite respectent bien les dynamiques observées lors des montées.

Dans l'ensemble les erreurs absolues moyennes sont acceptables (dans le cadre d'un simulateur industriel) du fait que les paramètres énergétiques α_Q et α_{vap} sont des valeurs moyennes.

5.3.3.2 Résultats de simulation pour les modèles 5 à 8

Les **figures 5.6 à 5.9** présentent les meilleurs résultats des quatre **modèles 5, 6, 7 et 8**. En effet, nous avons reporté dans le **tableau 5.4** suivant, les valeurs des erreurs absolues moyennes obtenues lors des modélisations.

	CUITES	MODELE 5	MODELE 6	MODELE 7	MODELE 8
$moy_{abs}(T_{mc})$ (°C)	1	1,12	1,12	1,18	1,12
	2	1,07	1,09	1,19	1,17
	3	2,41	2,29	2,67	2,44
	4	3,20	3,36	3,44	3,51
$moy_{abs}(Bx_{LM}^{\%})$ (% BRIX)	1	0,63	0,52	0,64	0,52
	2	0,78	0,53	0,66	0,53
	3	0,23	0,33	0,12	0,21
	4	0,39	0,30	0,25	0,21
$moy_{abs}(Bx_{MC}^{\%})$ (% BRIX)	1	0,24	0,24	0,24	0,24
	2	0,26	0,26	0,26	0,26
	3	0,51	0,51	0,51	0,51
	4	0,28	0,28	0,28	0,28

Tableau 5.4 : erreurs absolues moyennes commises lors des simulations.

Nous constatons que le 8^{ème} modèle donne de meilleurs résultats. Comme nous avons pu le voir précédemment, ceci est dû au fait que les modèles proposés sont plus ou moins précis.

Les **figures 5.6 à 5.9** suivantes représentent l'évolution du Brix liqueur mère, du Brix et de la température de la masse cuite. Elles représentent aussi les erreurs obtenues lors des simulations, par le biais des valeurs des erreurs absolues et de la distribution de ces erreurs.

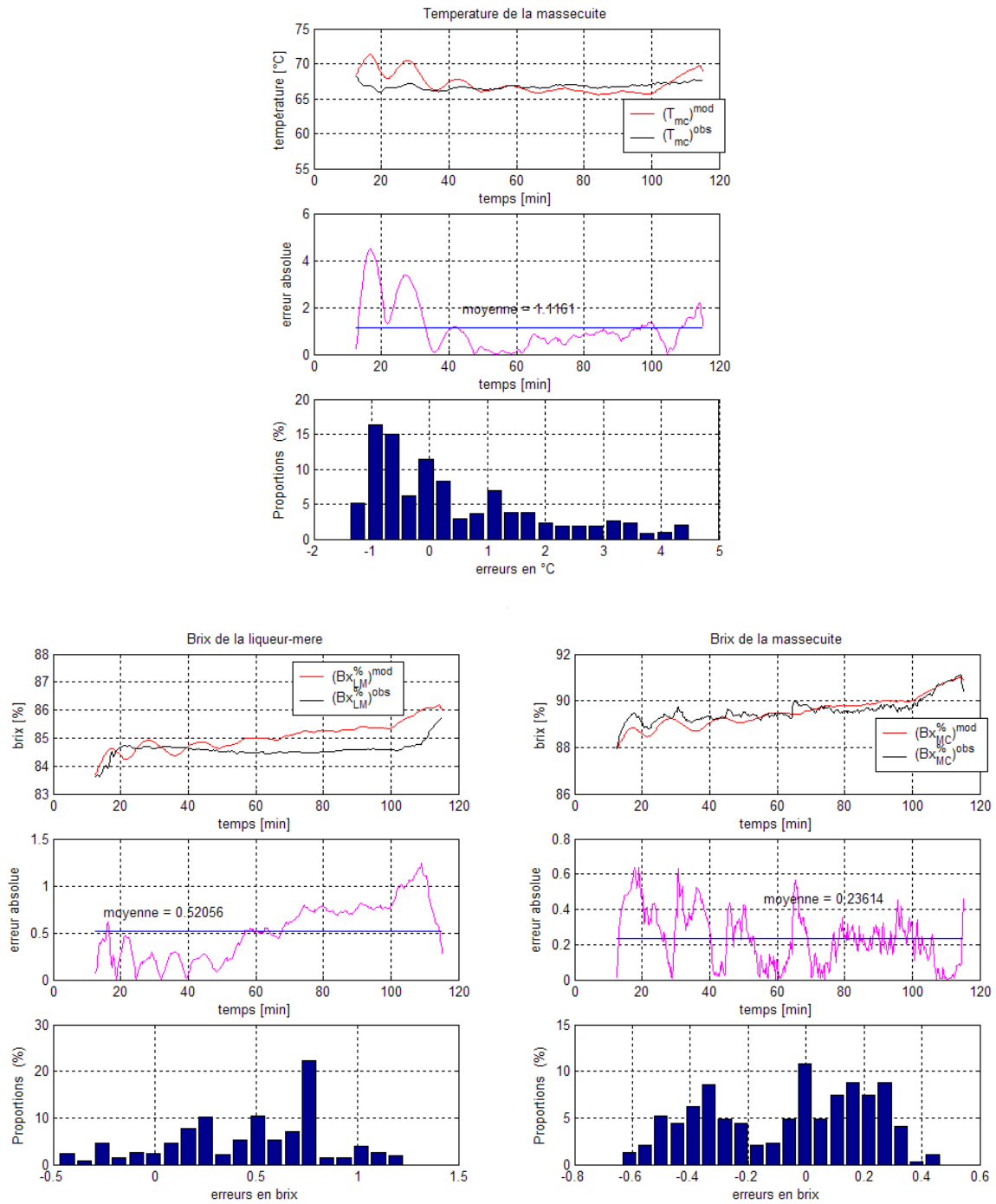


Figure 5.6 : résultats de simulation énergétique de la cuite 1.

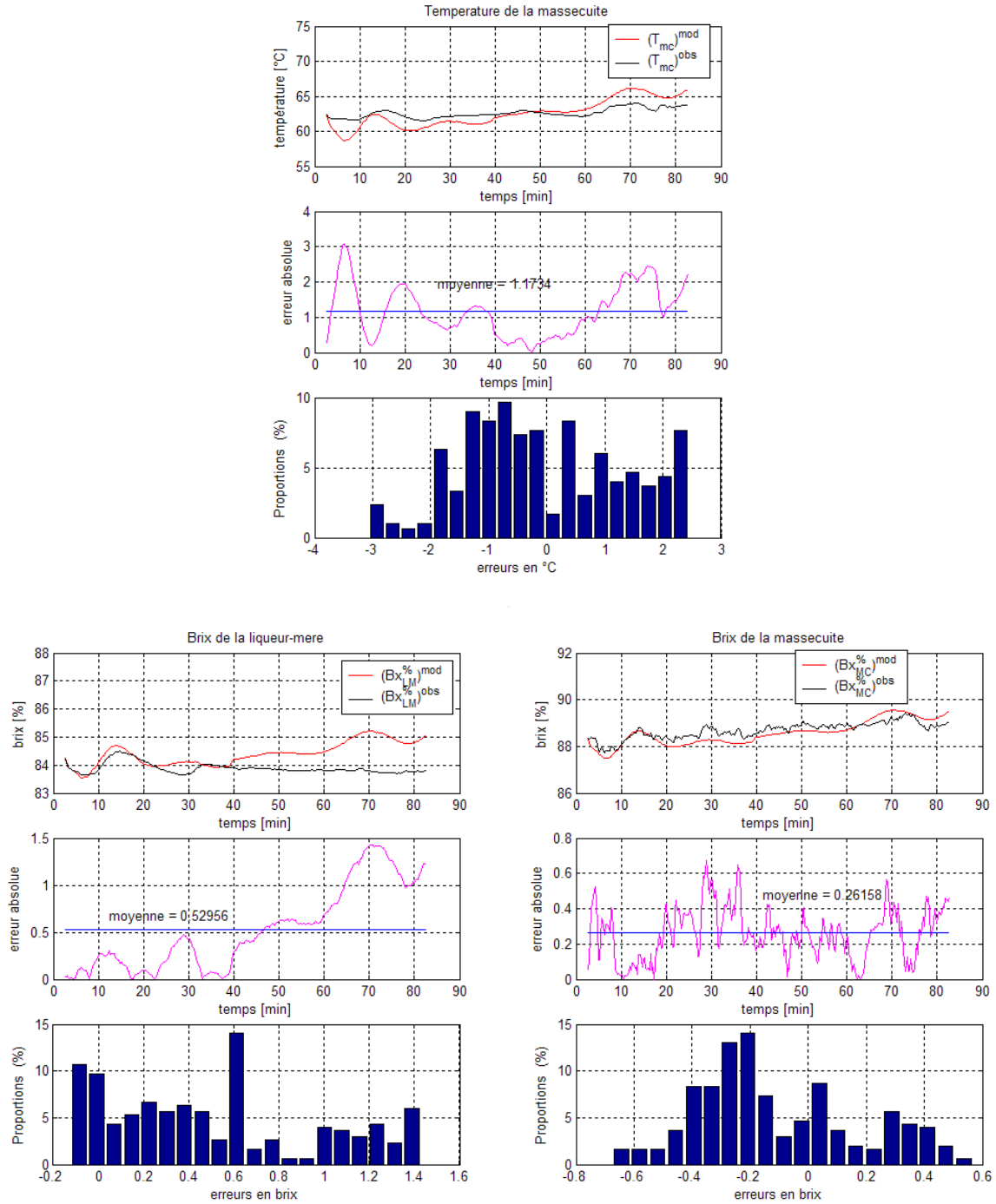


Figure 5.7 : résultats de simulation énergétique de la cuite 2.

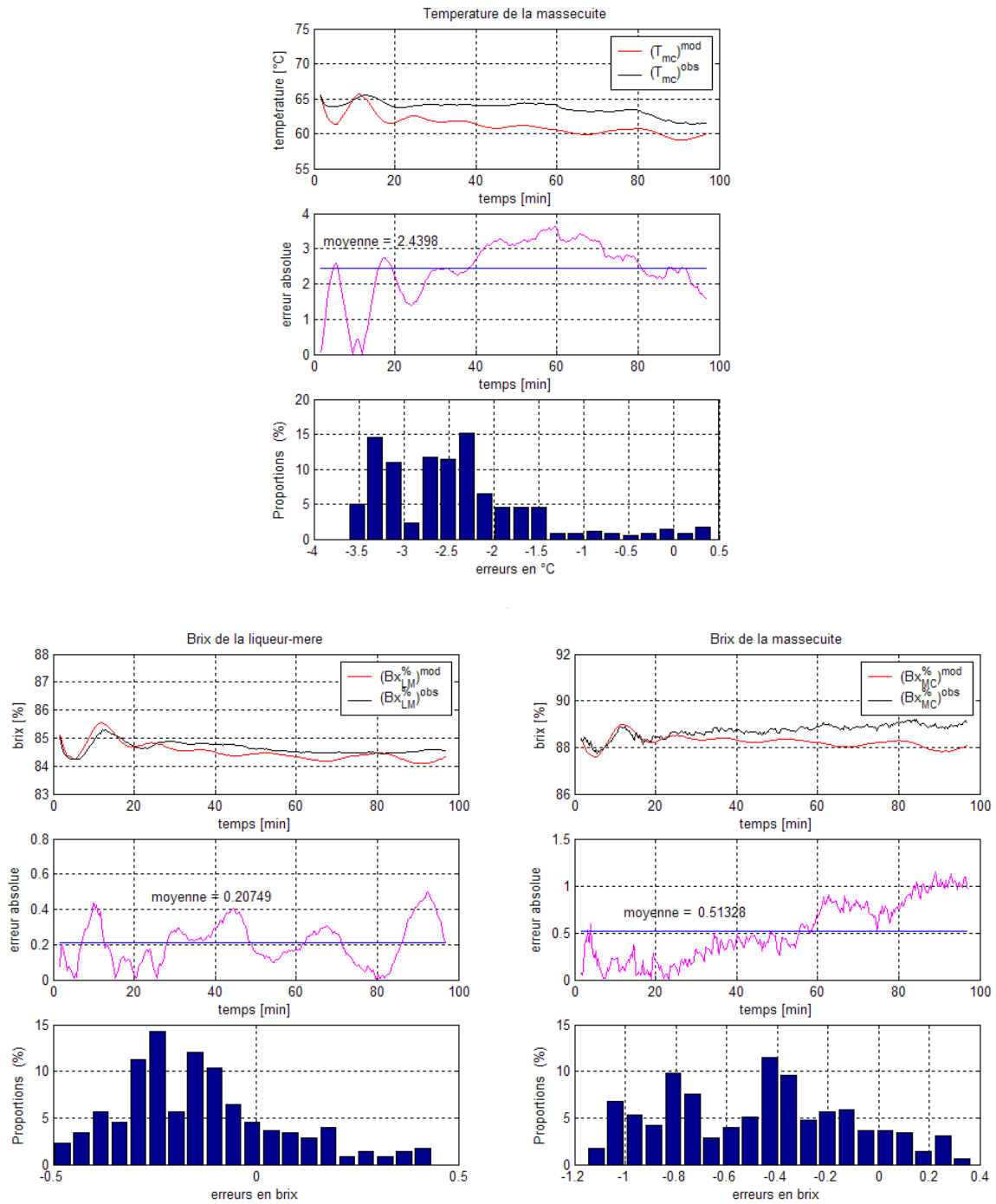


Figure 5.8 : résultats de simulation énergétique de la cuite 3.

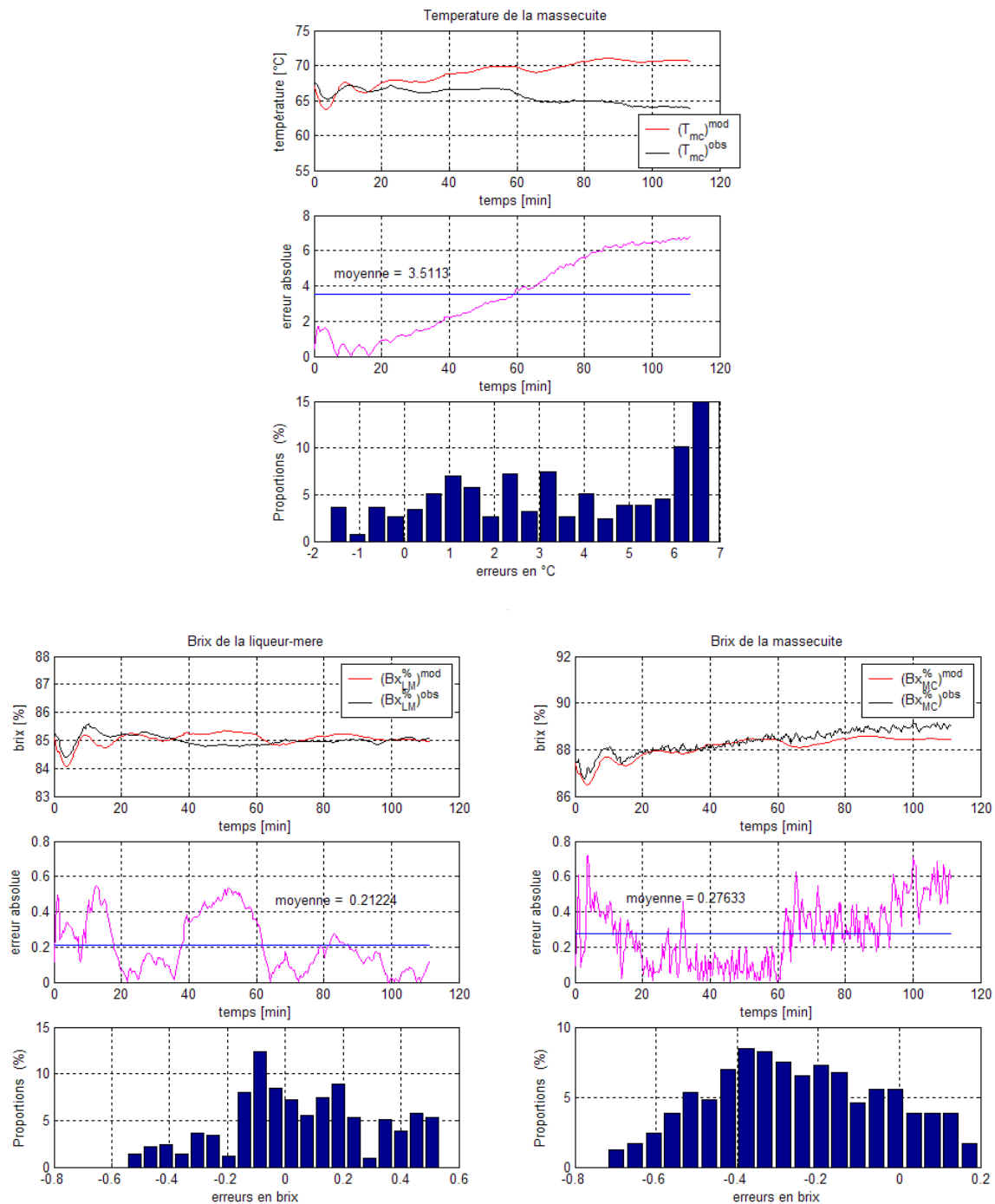


Figure 5.9 : résultats de simulation énergétique de la cuite 4.

Mêmes remarques que pour la modélisation de la cinétique de croissance linéaire, nous constatons que les simulations des trois grandeurs physiques Brix de la liqueur-mère, Brix et température de la massecuite respectent bien les dynamiques observées lors des quatre montées. Les erreurs absolues moyennes sont aussi acceptables (toujours dans le cadre d'un simulateur industriel), du fait que les paramètres énergétiques sont moyennés.

5.4 Identification et simulation du modèle M2³

5.4.1 Introduction

Dans cette section, nous présentons les résultats des simulations de la température de la masse cuite et des deux Brix (liqueur mère et masse cuite). Nous les comparerons ensuite aux données expérimentales.

Dans ce cas présent, pour un gain de temps, nous avons opté pour l'utilisation de la méthode Simplex Search pour les optimisations des paramètres énergétiques. En effet, nous avons pu constater comme précédemment que les divers algorithmes d'optimisations donnaient tous les mêmes résultats.

5.4.2 Estimations des paramètres énergétiques

Pour les estimations des paramètres énergétiques, nous avons aussi utilisé la méthode de programmation non linéaire (Simplex Search, Levenberg-Marquardt, A.G). Les résultats obtenus sont sensiblement les mêmes. Les résultats sont reportés dans les tableaux suivants :

Coefficient α_Q :

VALEURS DES PARAMETRES OPTIMISEES DES CUITES							
1	2	3	4	MIN	MAX	MOYENNE	σ
1,7724	1,7631	2,0020	1,7595	1,7595	2,0020	1,8243	0,1186

Tableau 5.5 : paramètre α_Q pour chaque cuite.

Coefficient α_{vap} :

VALEURS DES PARAMETRES OPTIMISEES DES CUITES							
1	2	3	4	MIN	MAX	MOYENNE	σ
1,3141	1,3395	1,4749	1,4288	1,3141	1,4749	1,3893	0,0753

Tableau 5.6 : paramètre α_{vap} pour chaque cuite.

Nous avons ainsi utilisé les deux valeurs moyennes suivantes lors de nos modélisations :

$$\alpha_Q = 1,8243 \quad (5.4)$$

³ Modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué à l'aide de mesures en ligne par une différence finie temporelle.

et

$$\alpha_{vap} = 1,3893 \quad (5.5)$$

Nous constatons que ces valeurs sont voisines de celles obtenues grâce au modèle **M1** (*section 5.3*). Ceci est tout à fait compréhensible du fait que ces coefficients ne dépendent pas des modèles choisis mais de la géométrie, des encrassements des appareils à cuire, etc.

5.4.3 Résultats de simulation de la température de la masse cuite et des Brix

Nous représentons sur les *figures 5.10* à *5.13* suivantes, l'évolution du Brix liqueur mère, du Brix et de la température de la masse cuite. Nous représentons aussi les erreurs de modélisation de ces grandeurs physiques par les valeurs des erreurs absolues et de la distribution de ces erreurs.

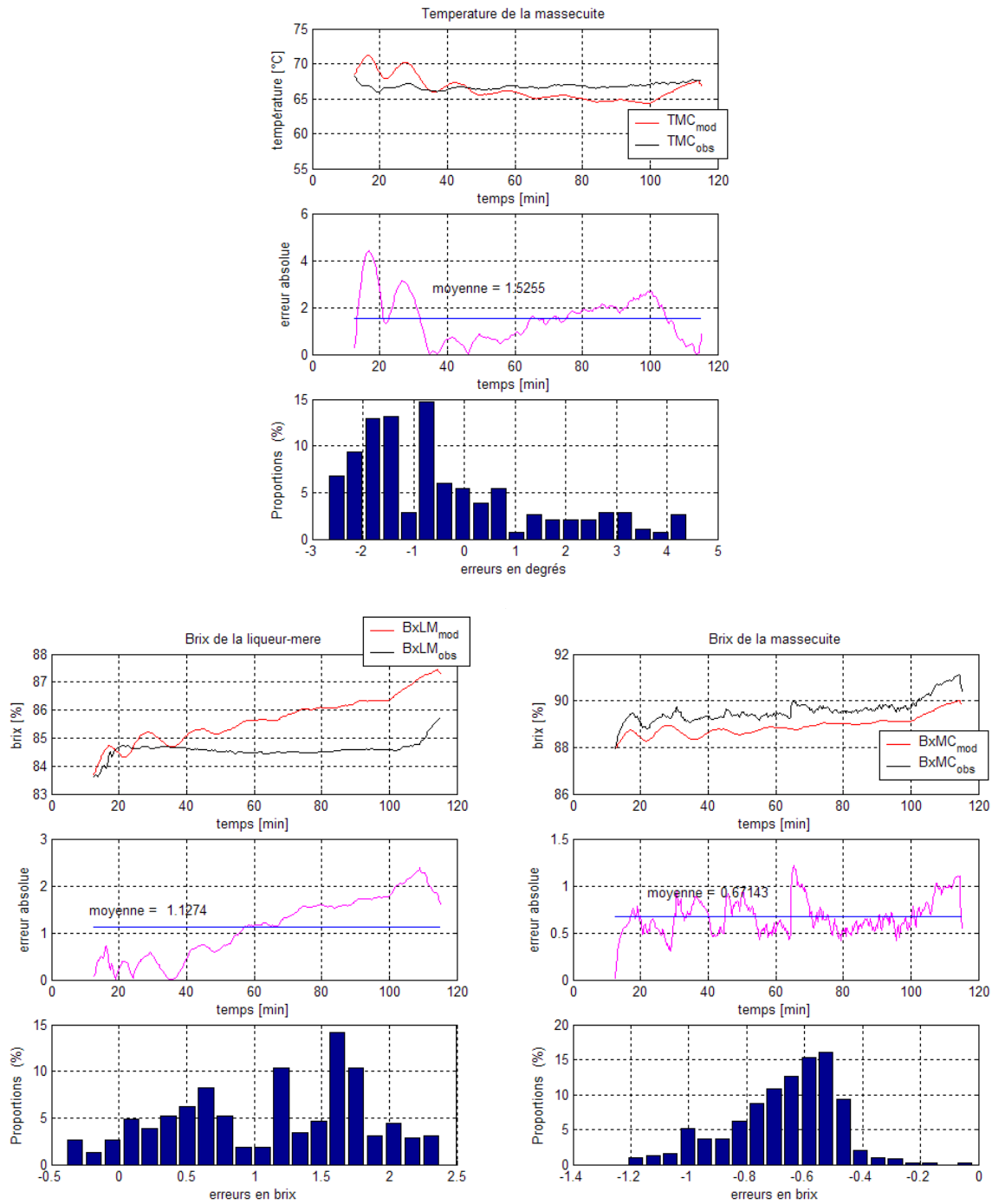


Figure 5.10 : résultats de simulation énergétique de la cuite 1.

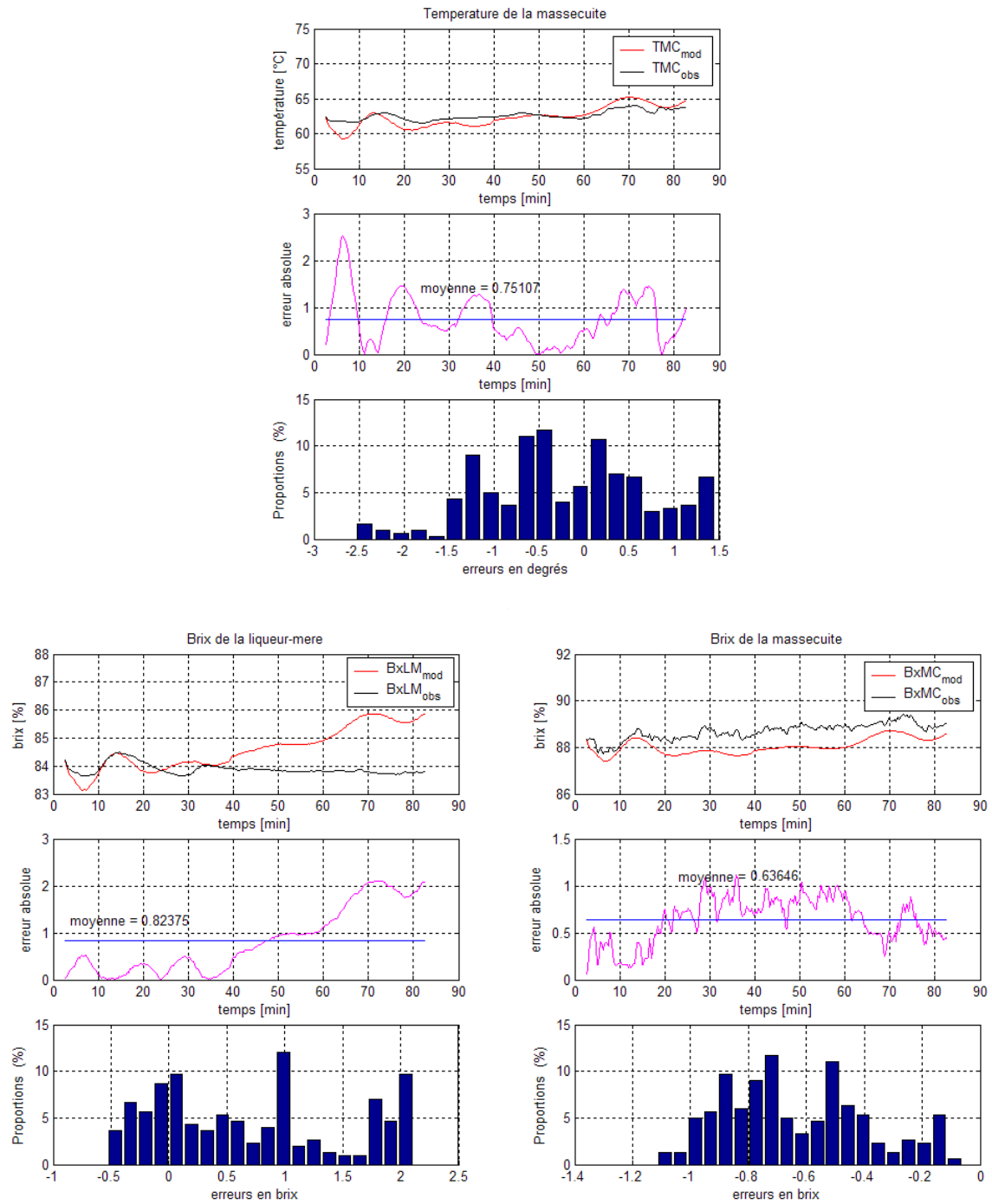


Figure 5.11 : résultats de simulation énergétique de la cuite 2.

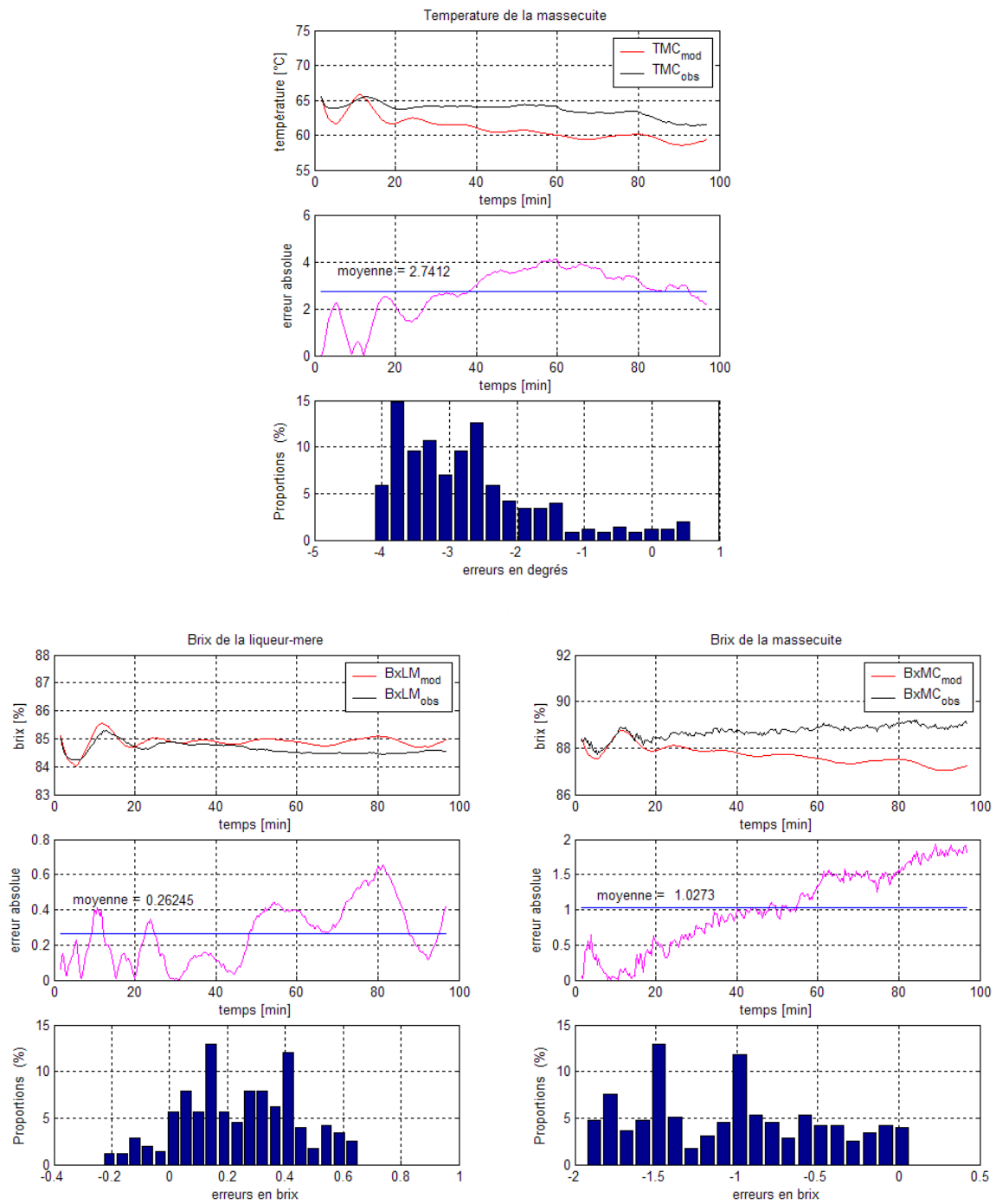


Figure 5.12 : résultats de simulation énergétique de la cuite 3.

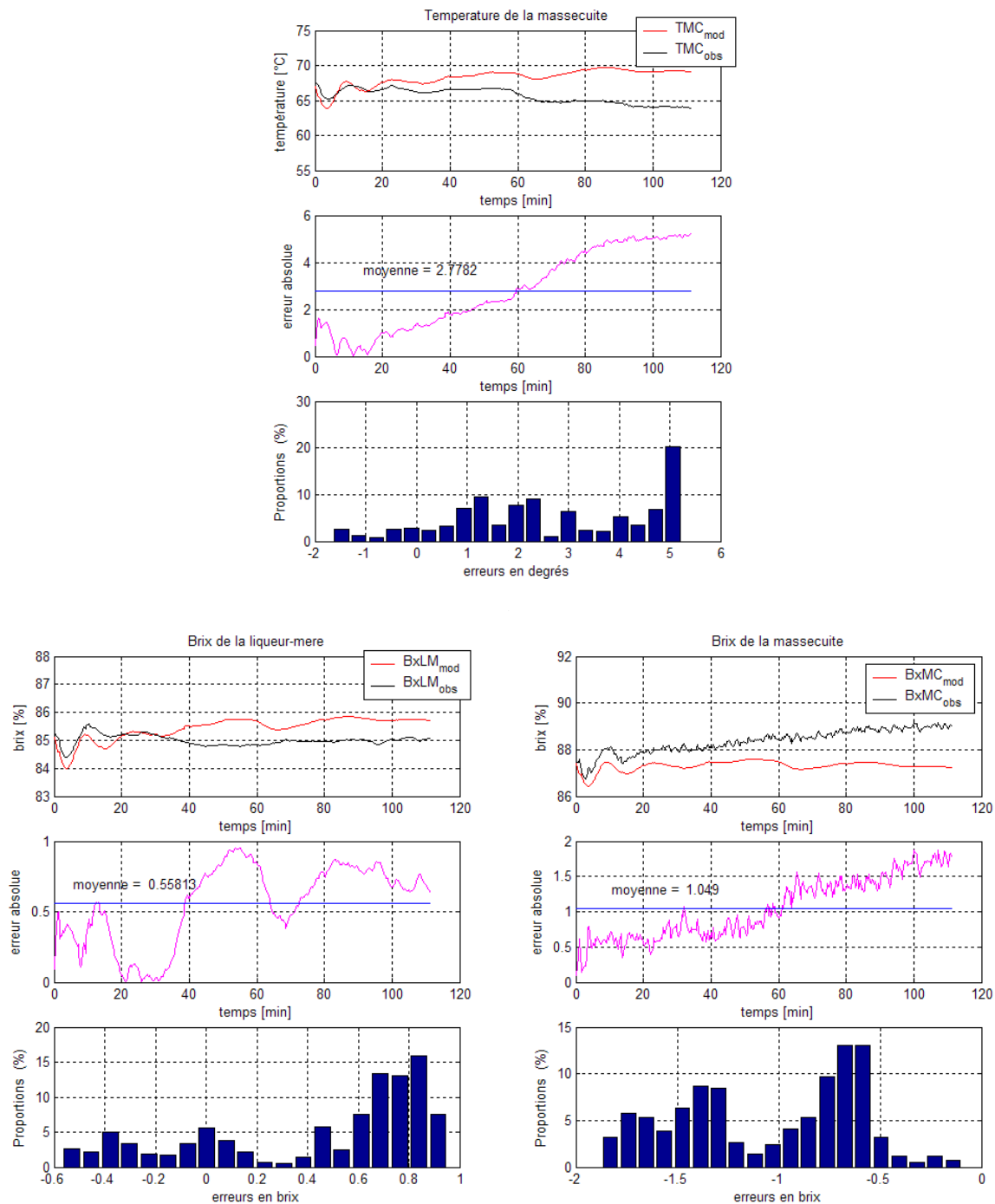


Figure 5.13 : résultats de simulation énergétique de la cuite 4.

Nous constatons que les modélisations des trois grandeurs physiques Brix de la liqueur-mère, Brix et température de la masse cuite suivent bien les dynamiques des quatre montées. Les erreurs absolues moyennes sont acceptables (dans le cadre d'un simulateur industriel), du fait que les deux paramètres énergétiques sont moyennés.

5.5 Identification et simulation du modèle M3⁴

5.5.1 Introduction

Dans le **chapitre 4**, nous avons proposé différentes approches hybrides pour les modélisations des cinétiques de nucléation, de croissance cristalline et d'agglomération. Nous avons pu constater que les modélisations hybrides des cinétiques donnaient de meilleurs résultats que les modèles de connaissance ou la modélisation par différence finie.

Dans cette section, nous présentons plusieurs résultats de simulations de la température de la masse cuite et des deux Brix (liqueur mère et masse cuite). Pour se faire, nous avons utilisé les modélisations hybrides des différentes cinétiques décrites à la **section 4.7** du **chapitre 4**. Ainsi, nous avons deux types de modèles hybrides : un modèle comportant qu'une seule sortie (la cinétique de croissance) et un autre comportant trois sorties (cinétiques de nucléation, de croissance et d'agglomération).

Ayant les modèles hybrides des cinétiques, nous avons pu estimer les paramètres énergétiques correspondant à chaque modélisation.

5.5.2 Estimation des paramètres énergétiques

Pour les estimations des paramètres énergétiques, nous avons aussi utilisé plusieurs méthodes de programmation non linéaire (Simplex Search, Levenberg-Marquardt, AG). Comme pour les deux autres modèles (**M1** et **M2**), les résultats obtenus sont sensiblement les mêmes. Les résultats de ces calculs sont dans les **tableaux 5.7** et **5.8**.

Coefficient α_Q^{hyb} :

VALEURS DES PARAMETRES OPTIMISEES DES CUITES							
1	2	3	4	MIN	MAX	MOYENNE	σ
1,8967	1,8471	2,0962	1,8666	1,8471	2,0962	1,9267	0,1149

Tableau 5.7 : moyenne du paramètre α_Q^{hyb} pour chaque cuite.

Coefficient α_{vap}^{hyb} :

VALEURS DES PARAMETRES OPTIMISEES DES CUITES							
1	2	3	4	MIN	MAX	MOYENNE	σ
1,4928	1,4755	1,6520	1,5929	1,4755	1,6520	1,5533	0,0837

Tableau 5.8 : moyenne du paramètre α_{vap}^{hyb} pour chaque cuite.

⁴ Modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué par une relation hybride à l'aide d'un réseau de neurones

Ici encore, nous constatons que ces valeurs moyennes sont proches de celles obtenues pour le modèle **M1** et le modèle **M2**. Ceci nous confirme que l'estimation de ces paramètres ne dépend pas du modèle choisi pour la modélisation du taux de cristaux.

Ainsi, nous calculons une valeur moyenne pour les deux paramètres énergétiques en utilisant les valeurs moyennes des deux tableaux précédents et ceux des *équations 5.2* et *5.3*. Ceci étant fait pour pouvoir comparer les deux types de modèles **M1** et **M3**.

Nous avons ainsi :

$$\alpha_Q^{moy} = \frac{(\alpha_Q^{MC} + \alpha_Q^{hyb})}{2} = \frac{(1,9457 + 1,9267)}{2} = 1,9362 \quad (5.6)$$

$$\alpha_{vap}^{moy} = \frac{(\alpha_{vap}^{MC} + \alpha_{vap}^{hyb})}{2} = \frac{(1,5400 + 1,5533)}{2} = 1,5467 \quad (5.7)$$

5.5.3 Résultats de simulations de la température de la masse cuite et des Brix

Dans cette section, nous présentons les résultats de simulation de la température de la masse cuite et des brix suivant que nous avons modélisé avec le réseau de neurones la cinétique de croissance linéaire ou les trois cinétiques (nucléation, croissance linéaire et agglomération).

5.5.3.1 Résultats de simulation obtenus grâce à l'utilisation de la cinétique de croissance linéaire

5.5.3.1.1 Phase d'apprentissage

Nous allons pouvoir, ainsi, comparer les résultats du 4^{ème} modèle de connaissance et du modèle hybride. Pour cela, nous avons représenté l'évolution du Brix liqueur mère, du Brix et de la température de la masse cuite suivant les différents modèles, **figure 5.14**.

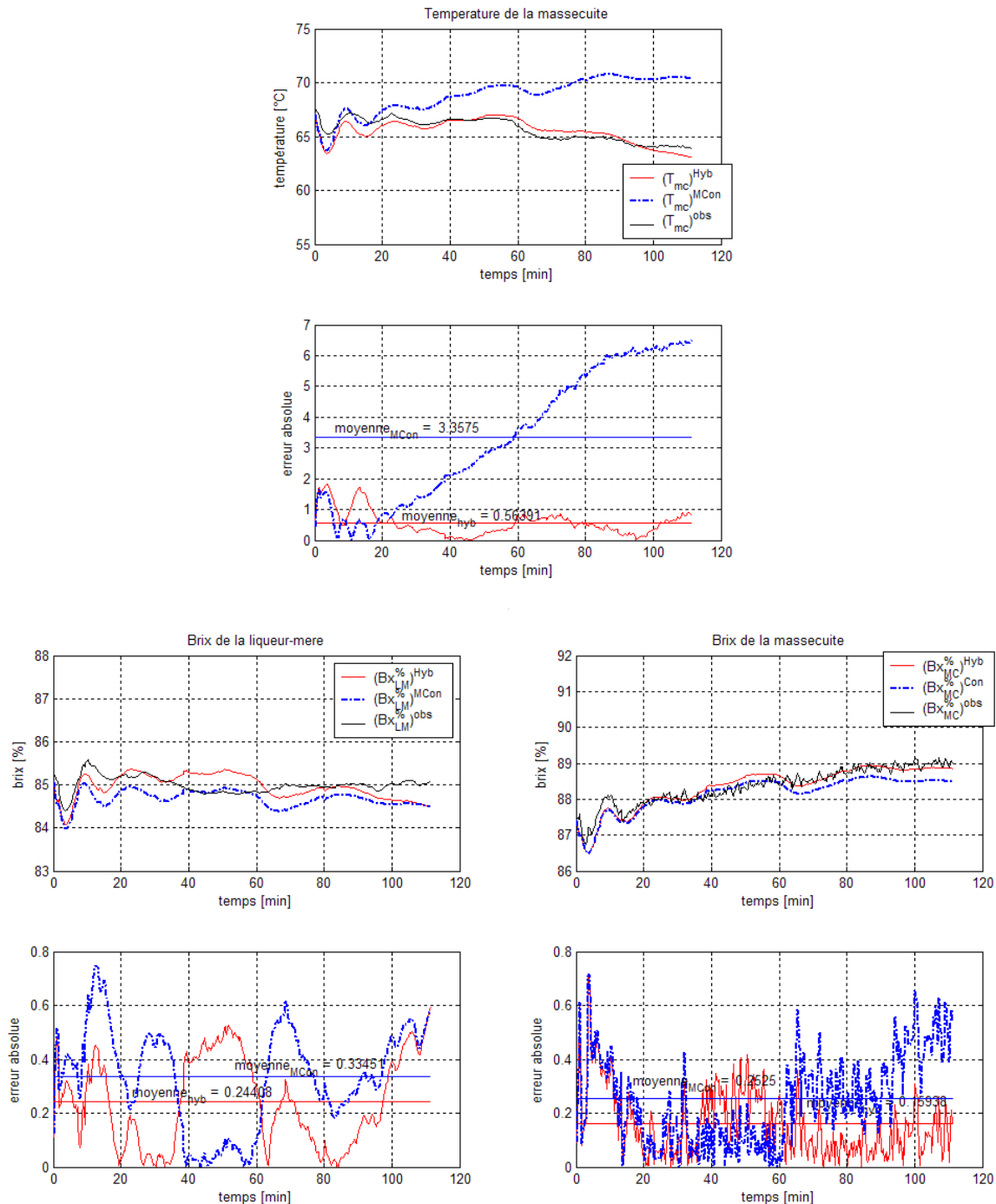


Figure 5.14 : résultats de l'optimisation énergétique de la cuite 4.

Il est à noter que le traçage des courbes de température et des Brix du modèle de connaissance ont été fait grâce aux valeurs moyennes des paramètres cinétiques du **tableau 4.5**.

Nous pouvons constater que nous avons de meilleurs résultats lors de l'utilisation du modèle **M3**. Mais, il est à noter que le modèle **M1**, malgré les erreurs commises sur la modélisation des grandeurs physiques, maintient une certaine dynamique conforme à celle observée. Ceci est dû au fait que le modèle de connaissance dépend très fortement des conditions locales.

5.5.3.1.2 Phase de généralisation

La phase de généralisation signifie que les valeurs des poids et biais du RNA sont figés. Ainsi, nous pouvons tester le réseau de neurones sur les trois autres cuites 1, 2 et 3. Sur les **figures 5.15 à 5.17** qui suivent, nous représentons les résultats de simulation de la température de la masse cuite et les brix.

Résultats des modélisations des Brix et de la température de la masse cuite :

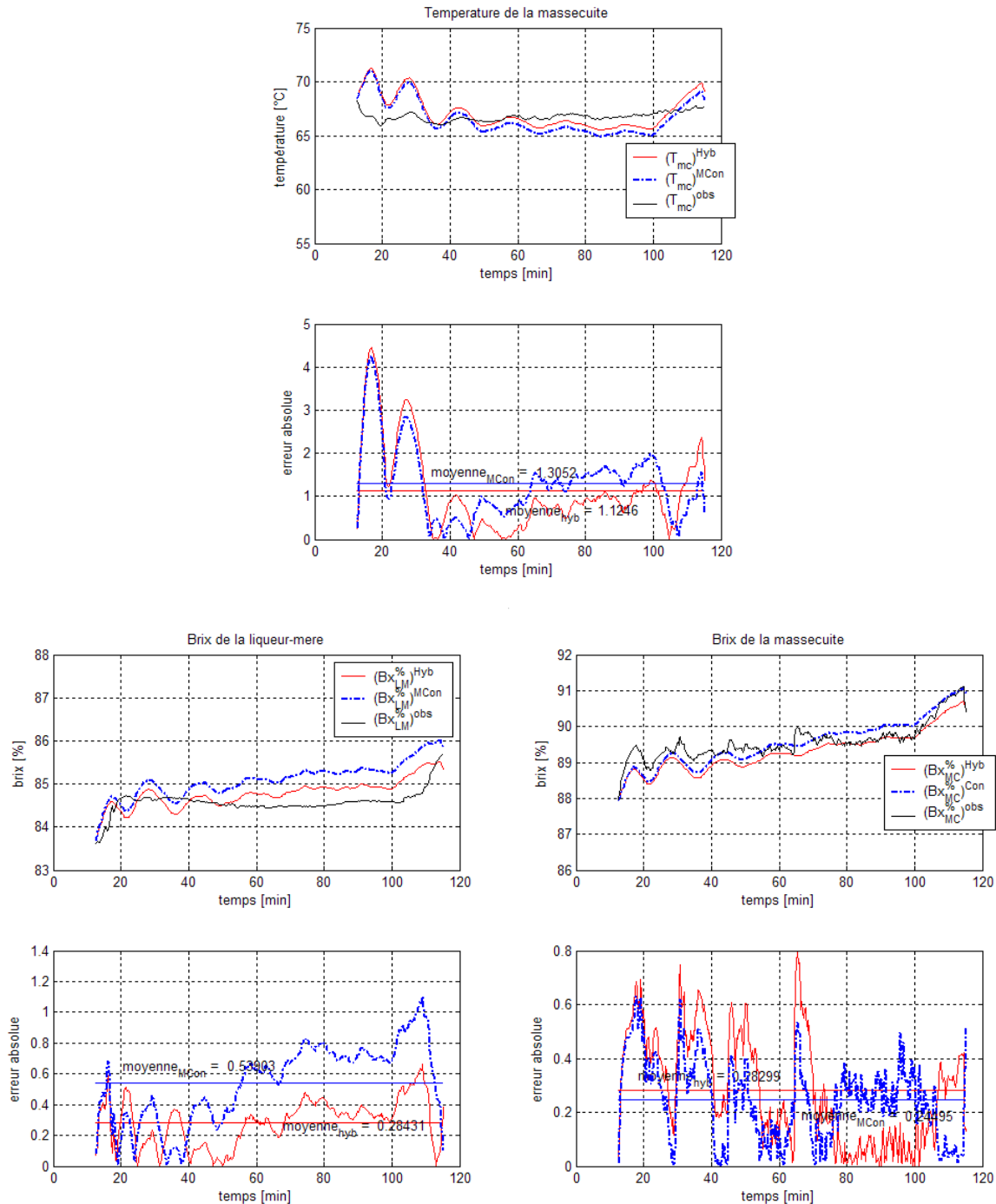


Figure 5.15 : résultats de simulation énergétique de la cuite 1.

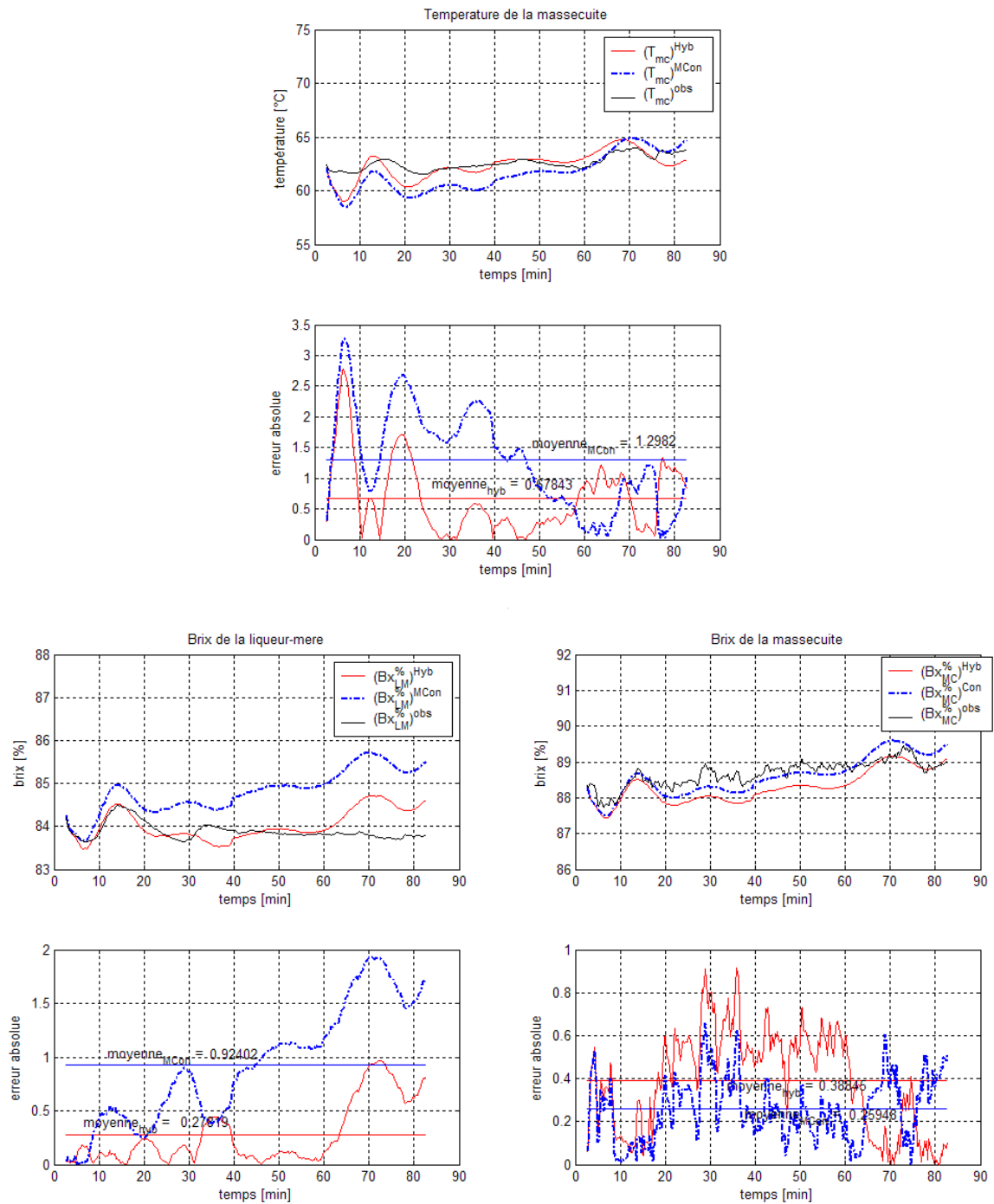


Figure 5.16 : résultats de simulation énergétique de la cuite 2.

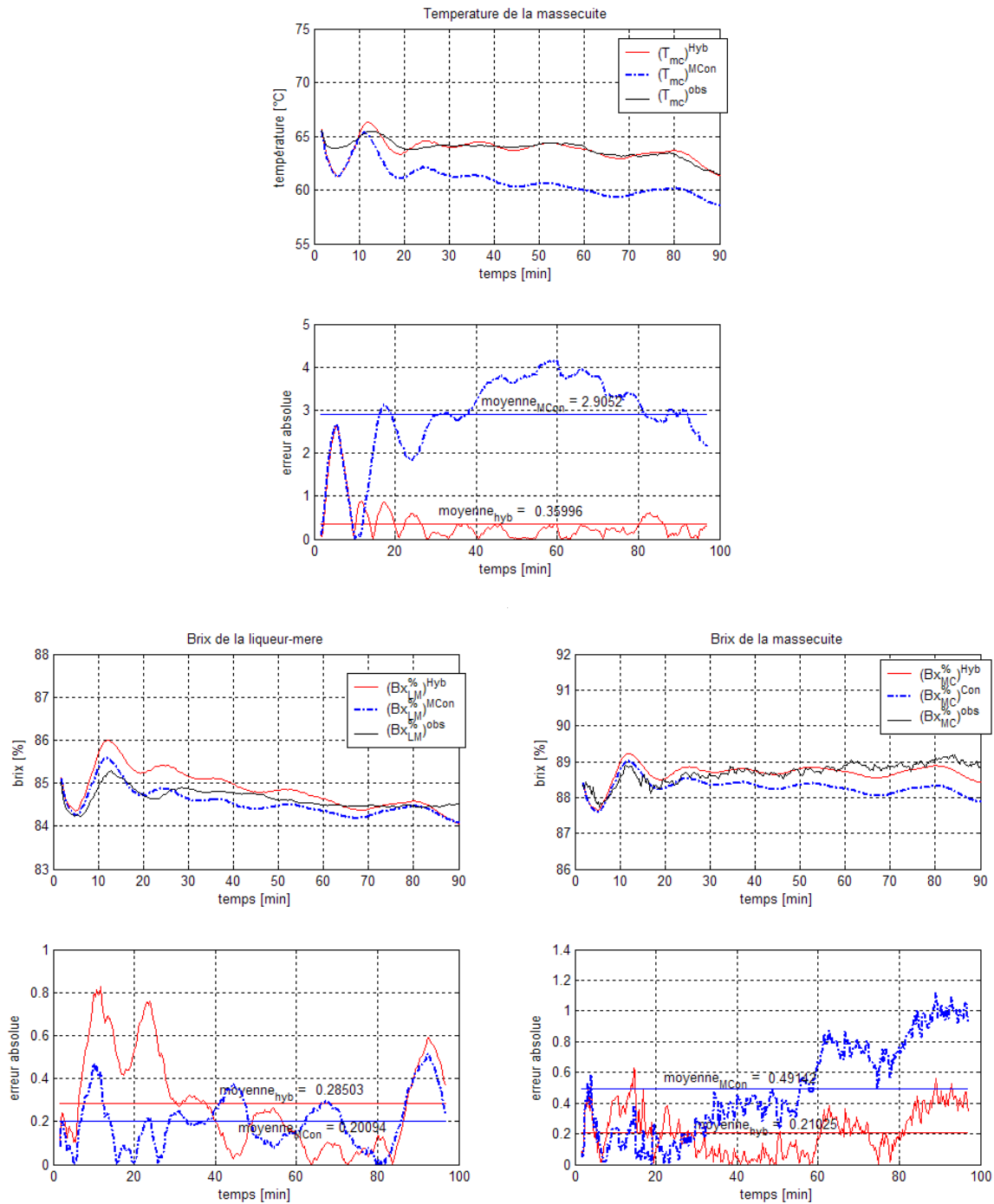


Figure 5.17 : résultats de simulation énergétique de la cuite 3.

Nous constatons dans l'ensemble des résultats, que le modèle **M3** donne de meilleurs résultats que le modèle **M1**. En effet, ceci est dû au fait de la flexibilité du modèle hybride, car nous avons pris comme paramètres nominaux, les paramètres cinétiques de la cuite 4 qui ont servis à simuler les différents paramètres cinétiques des autres cuites. En dépit de cela, le modèle de connaissance entretient une certaine dynamique identique à celle observée. En effet, ceci est dû au fait que le modèle de connaissance dépend très fortement des conditions locales.

5.5.3.2 *Résultats de simulation obtenus grâce à l'utilisation des cinétiques de nucléation, de croissance linéaire et d'agglomération*

5.5.3.2.1 Phase d'apprentissage

Pour les représentations de température de la masse cuite et des deux Brix, nous avons suivis les mêmes démarches définies aux sections précédentes et nous avons utilisé les valeurs des deux paramètres α_Q^{moy} et α_{vap}^{moy} .

Nous allons comparer les résultats du modèle **M3** et du modèle **M1**. Pour se faire, nous avons simulé l'évolution des deux Brix et de la température de la masse cuite suivant les deux modèles, **figure 5.18**.

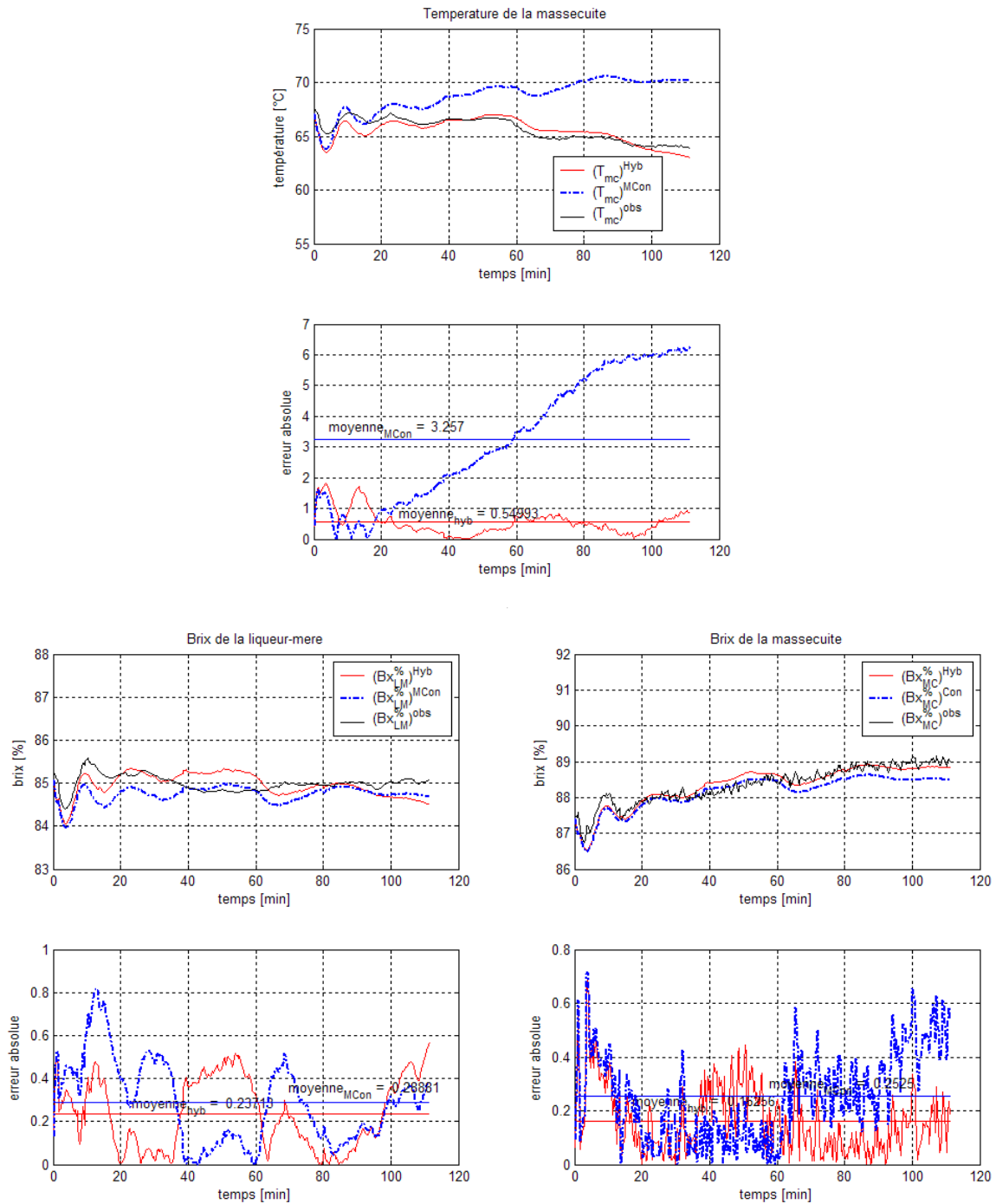


Figure 5.18 : résultats de l'optimisation énergétique de la cuite 4.

Le traçage des courbes de température et des Brix du modèle de connaissance a été réalisé grâce aux valeurs moyennes des paramètres cinétiques du **tableau 4.6**.

Ici encore, nous voyons que nous avons de meilleurs résultats avec la modélisation hybride (**M3**). Ceci est toujours dû au fait que le modèle de connaissance (**M1**) dépend très fortement des conditions locales.

5.5.3.2.2 Phase de généralisation.

Dans cette nouvelle étape de généralisation, nous avons représenté les résultats des simulations de la température de la masse cuite et des deux Brix sur les **figures 5.19 à 5.21**.

Résultats des modélisations de la température de la masse cuite et des Brix :

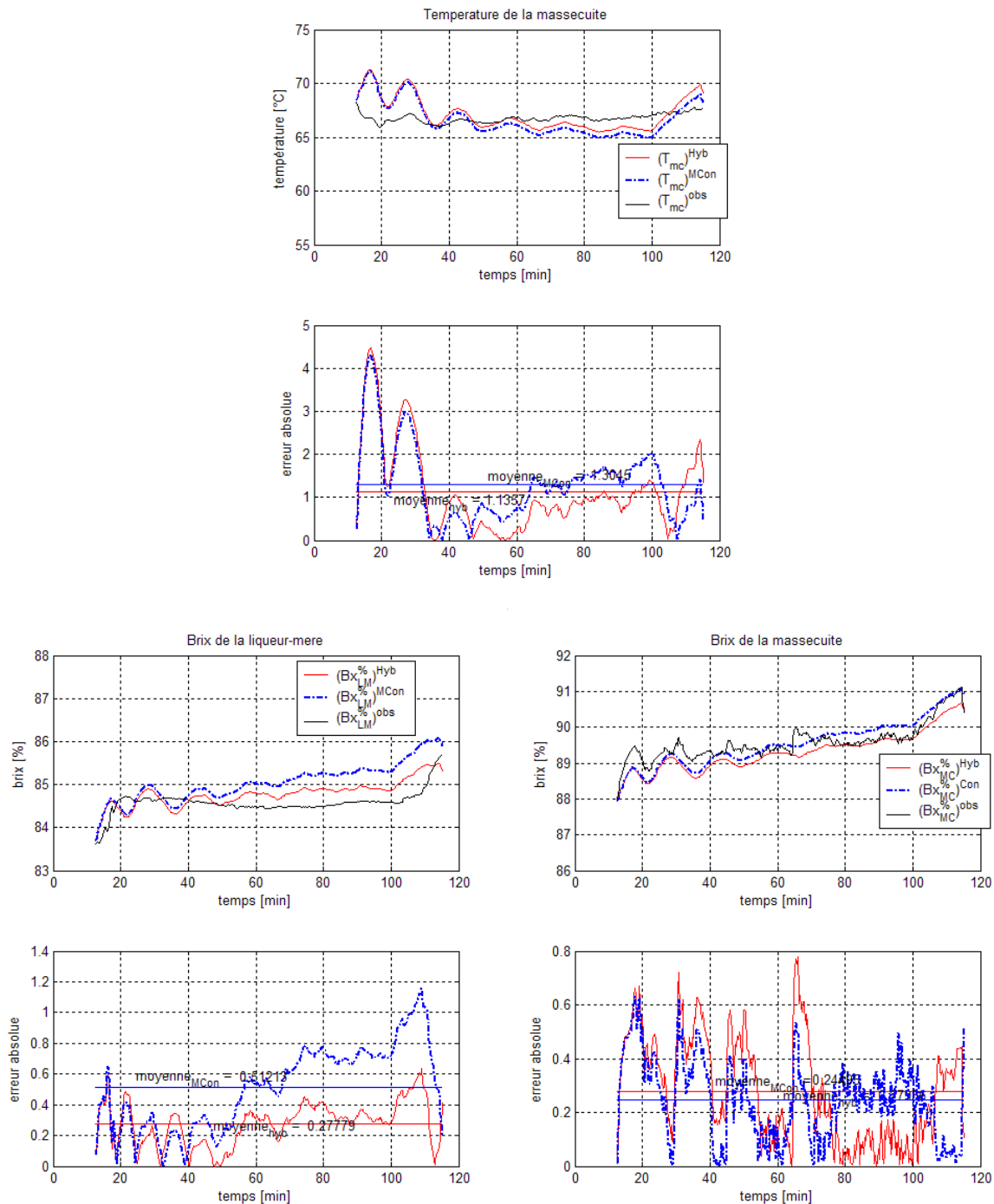


Figure 5.19 : résultats de simulation énergétique de la cuite 1.

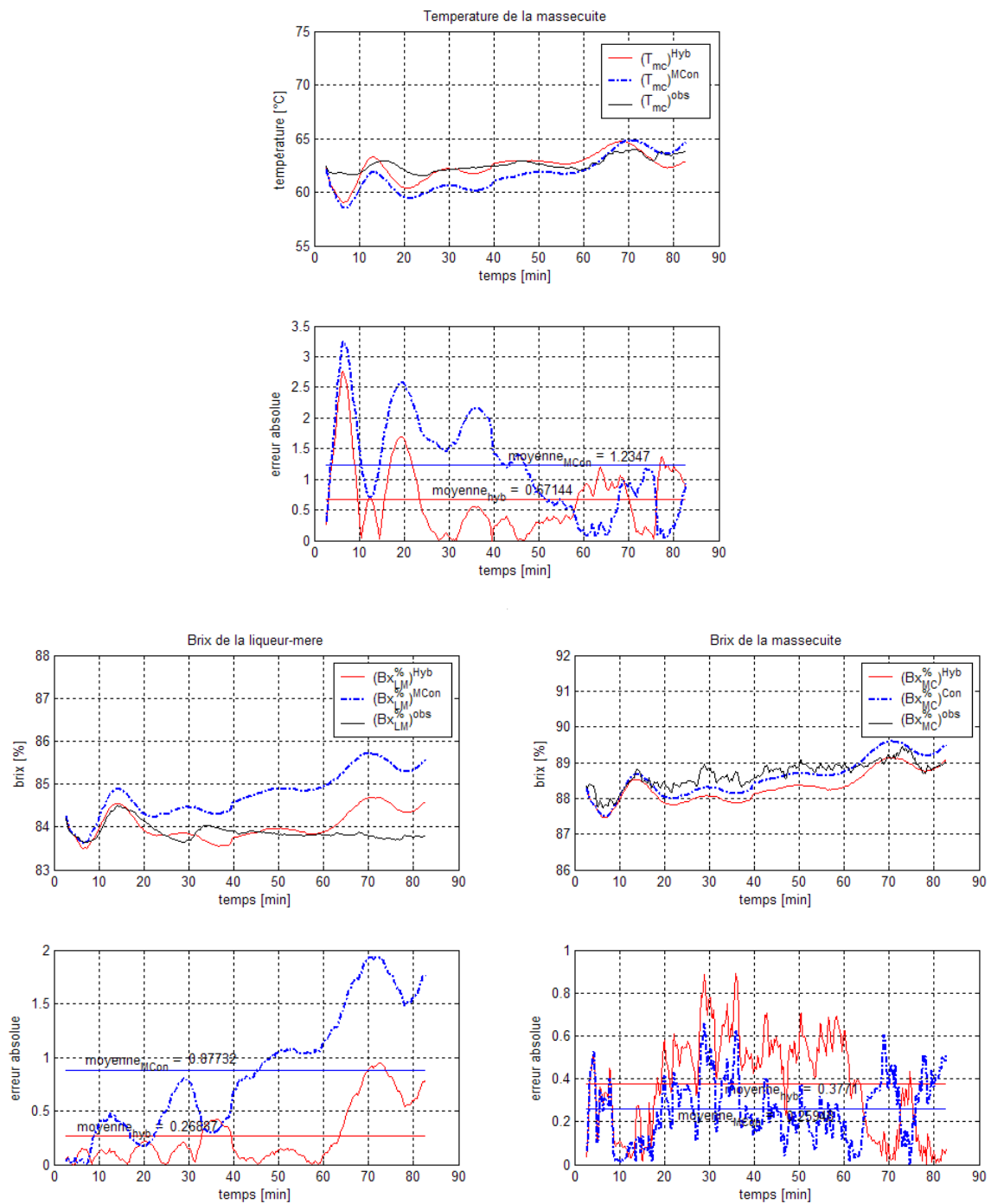


Figure 5.20 : résultats de simulation énergétique de la cuite 2.

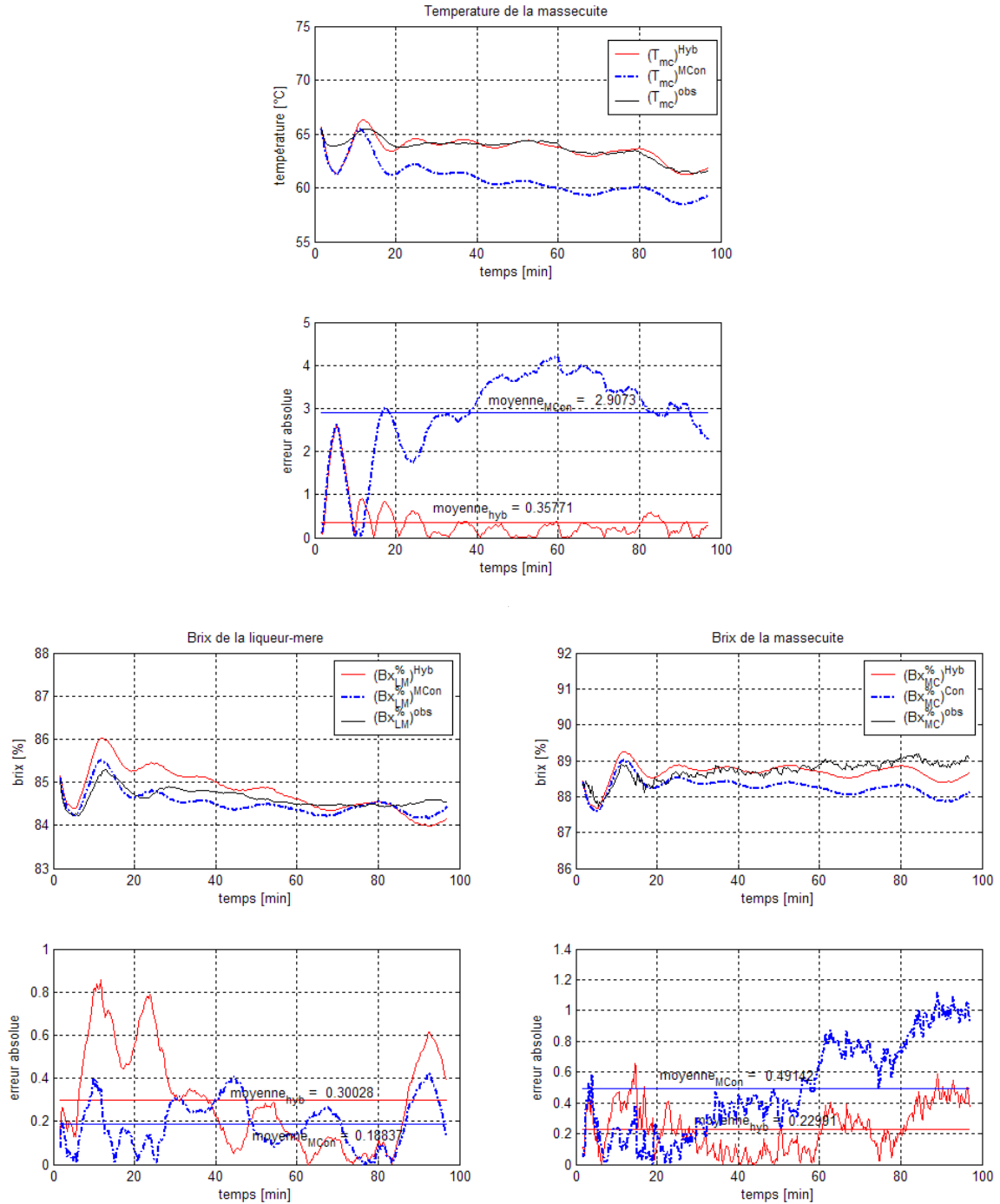


Figure 5.21 : résultats de simulation énergétique de la cuite 3.

Mêmes constatations que pour les autres simulations, nous avons de meilleurs résultats lors de la modélisation hybride (**M3**), et ceci est toujours dû au fait que le modèle de connaissance (**M1**) dépend très fortement des conditions locales.

5.5.4 Résumé des modélisations de type M3

Comme nous avons pu le constater dans le chapitre précédent, les modélisations de type **M3** donnent, dans la plupart des cas, de meilleurs résultats que le modèle **M1**. En effet, ceci est dû au fait que le modèle **M3** offre une plus grande capacité de prédiction pour différentes conditions opératoires contrairement au modèle de connaissance **M1**, qui lui dépend très fortement des conditions locales.

5.6 Synthèse des résultats obtenus lors des différentes modélisations

Nous avons regroupé dans les **tableaux 5.9, 5.10 et 5.11** les erreurs absolues moyennes faites lors des simulations des Brix et de la température de la masse cuite sur les quatre cuites. Nous présentons successivement les résultats obtenus avec le modèle **M1**, le modèle **M2** et finalement le modèle **M3**.

Modèle M1 : modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué par une corrélation

	Cinétique de croissance				Cinétiques de nucléation + croissance + agglomération			
	Cuites				Cuites			
	1	2	3	4	1	2	3	4
T_{mc}	1,08	1,21	2,43	3,55	1,12	1,17	2,44	3,51
$Bx_{LM}^{\%}$	0,54	0,54	0,22	0,20	0,52	0,53	0,21	0,21
$Bx_{MC}^{\%}$	0,24	0,26	0,51	0,28	0,24	0,26	0,51	0,28

Tableau 5.9 : valeurs des erreurs absolues moyennes faites lors des simulations des Brix et de la température de la masse cuite par le modèle M1.

Les erreurs absolues moyennes sont obtenues par différence numérique entre les données expérimentales et les résultats de simulation des Brix (% Brix) et de la température de la masse cuite (°C). Nous constatons que l'utilisation des trois cinétiques (nucléation, croissance cristalline et agglomération) n'apporte pas d'amélioration significative.

Modèle M2 : modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué à l'aide de mesures en ligne par une différence finie temporelle

	Cuites			
	1	2	3	4
T_{mc}	1,53	0,75	2,74	2,78
$Bx_{LM}^{\%}$	1,13	0,82	0,26	0,56
$Bx_{MC}^{\%}$	0,67	0,64	1,03	1,05

Tableau 5.10 : valeurs des erreurs absolues moyennes faites lors des simulations des Brix et de la température de la masse cuite par le modèle M2.

Lors de la simulation par différence finie temporelle des Brix et de la température de la masse cuite, nous constatons que les erreurs absolues moyennes obtenues sont plus élevées que lorsque l'on utilise les deux autres types de modèle (**M1** et **M3**), comparaisons des valeurs des erreurs, **tableaux 5.9, 5.10 et 5.11**.

Comme nous avons pu le voir au **chapitre 4**, il est nécessaire pour ce type de modèle de réactualiser les valeurs des conditions initiales de la température de la masse cuite et des deux Brix (mesures en ligne), et de la pureté de la liqueur mère (mesures laboratoire). Cette réactualisation des conditions initiales permettra d'obtenir des valeurs simulées proches des données expérimentales. C'est un ajustement de données simulées, de ce fait une amélioration de la modélisation.

Modèle M3 : modèle dont le taux de variation de masse des cristaux est évalué par une relation hybride à l'aide d'un réseau de neurones

	Cinétique de croissance (modèle neuronal à 1 sortie)				Cinétiques de nucléation + croissance + agglomération (modèle neuronal à 3 sorties)			
	Cuites				Cuites			
	1	2	3	4	1	2	3	4
T_{mc}	1,13	0,68	0,36	0,56	1,14	0,67	0,36	0,55
$Bx_{LM}^{\%}$	0,28	0,28	0,29	0,24	0,28	0,27	0,30	0,24
$Bx_{MC}^{\%}$	0,25	0,39	0,21	0,16	0,24	0,38	0,23	0,16

Tableau 5.11 : valeurs des erreurs absolues moyennes faites lors des simulations des Brix et de la température de la masse cuite par le modèle M3.

Les erreurs absolues moyennes calculées sur les Brix et la température de la masse cuite, montrent de réelles améliorations des résultats de simulation (modélisation neuronale à 1 et 3 sorties), à comparer avec les **tableaux 5.9, 5.10 et 5.12**.

Dans le **tableau 5.12** suivant, nous avons regroupé les erreurs absolues moyennes obtenues lors des simulations de la température de la masse cuite et des Brix. Pour ces calculs d'erreurs, nous avons utilisé les valeurs moyennes des paramètres cinétiques, **tableaux 4.5 et 4.6**, d'où les différences des valeurs des erreurs (**tableau 5.9**).

	Cinétique de croissance				Cinétiques de nucléation + croissance + agglomération			
	Cuites				Cuites			
	1	2	3	4	1	2	3	4
T_{mc}	1,31	1,30	2,91	3,36	1,30	1,24	2,91	3,26
$Bx_{LM}^{\%}$	0,54	0,92	0,20	0,33	0,51	0,88	0,30	0,29
$Bx_{MC}^{\%}$	0,29	0,39	0,49	0,26	0,27	0,26	0,49	0,25

Tableau 5.12 : valeurs des erreurs absolues moyennes faites lors des simulations des Brix et de la température de la masse cuite par le modèle M1 avec coefficients cinétiques moyennés.

5.7 Conclusion.

Dans ce chapitre, nous avons figé les paramètres cinétiques des modèles de type **M1** et nous utilisons les différentes structures des modèles **M2** et **M3**. Si nous comparons les différents modèles en phase de généralisation, nous voyons que les modèles de type **M3** donnent de meilleurs résultats.

Notons que nous avons utilisé plusieurs expressions pour modéliser les deux paramètres énergétiques α_Q et α_{vap} . Ces expressions contiennent un grand nombre de paramètres à ajuster. Pour améliorer les résultats de prédiction de modèles **M1** et **M2**, nous avons utilisé des méthodes de programmation non linéaires telles que : Levenberg-Marquardt et algorithme génétique. Les résultats obtenus avec le modèle **M3** restent cependant toujours meilleurs.

Nous constatons comme au chapitre précédent, que l'utilisation de modèles à réseau de neurones présente l'inconvénient de ralentir la vitesse d'estimation des paramètres.

Pour chaque base de données, nous avons dû attendre environ une semaine de simulations.

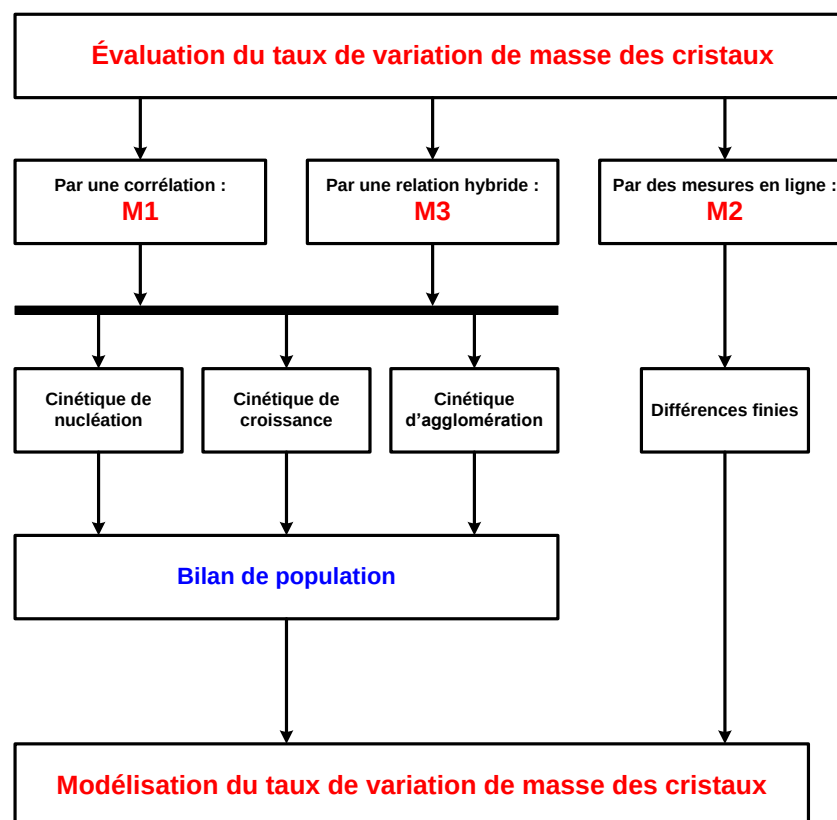
Conclusion et Perspectives

Conclusion et perspectives.

La modélisation du procédé est une brique essentielle dans la mise en place d'une commande avancée en milieu industriel. Pour cela, nous avons identifié plusieurs modèles de connaissances paramétriques, ces modèles se différencient par le choix de fonctionnelles de la cinétique de cristallisation.

La première approche est basée sur une description simplifiée des phénomènes physico-chimiques intervenant au cours de la cristallisation. Nous avons ainsi considéré dans un premier temps que le phénomène de croissance cristalline était « prépondérant » par rapport aux autres phénomènes. Seules les lois cinétiques décrivant la croissance cristalline sont alors intégrées dans le modèle. La deuxième approche consiste à identifier un modèle plus précis prenant en compte les phénomènes de croissance cristalline mais aussi de nucléation et d'agglomération.

Nous avons identifié trois modèles. Ils se différencient par le bilan de population réalisé. La figure suivante résume les différentes approches utilisées :



Les différentes approches utilisées pour modéliser le taux de variation de masse des cristaux.

L'identification des modèles a été réalisée à partir de données industrielles.

Le modèle de type M1 montre de bonnes performances. D'une part les paramètres cinétiques estimés sont cohérents avec les données de la littérature et d'autre part les simulations de la température et des Brix réalisées à partir des paramètres énergétiques sont proches des données expérimentales.

Le modèle de type M2 est moins précis que les autres types de modèles. Le modèle de ce type est plus « contraint ». Le nombre de paramètres à estimer lors de l'étape d'identification étant inférieur, l'ajustement du modèle ne peut se faire que par le biais des paramètres énergétiques.

Dans les deux cas, M1 et M2, la précision des modèles est liée à l'estimation des paramètres cinétiques et énergétiques. Cette estimation est réalisée à partir de bases de données industrielles, une des difficultés a été d'estimer des paramètres valides sur différentes zones de fonctionnement. Nous avons donc utilisé un grand nombre de base de données pour estimer des valeurs moyennes de ces paramètres.

La troisième approche utilisée est dite hybride (M3). Grâce aux résultats des simulations, nous constatons que cette approche s'avère plus performante que les deux autres approches. En effet, au niveau des résultats de simulation du taux de variation de la masse des cristaux *via* une estimation des cinétiques (nucléation, croissance cristalline et agglomération), nous constatons que les résultats sont très probants dans le cadre d'un simulateur industriel. En ce qui concerne les résultats de simulation de la température de la masse cuite et des deux Brix, en phase de généralisation, nous avons aussi des résultats satisfaisants.

Ainsi, l'approche hybride conduit dans notre cas à des modèles moins contraints, plus précis et présentant des capacités de généralisation supérieures aux deux autres types de modèle.

La complexité des phénomènes physico-chimiques intervenant lors de la cristallisation rend l'identification d'un modèle de connaissance délicate. La modélisation hybride permet alors de s'affranchir de l'écriture de certaines lois complexes.

En conclusion, nous retiendrons les bonnes performances du modèle hybride du procédé industriel de cristallisation du sucre. Ce modèle est déjà utilisé comme simulateur de procédé en laboratoire, notamment dans le cadre de l'élaboration de la commande prédictive du procédé de cristallisation. Nous envisageons de l'intégrer sur site industriel d'une part dans une structure de commande avancée et d'autre part comme capteur logiciel de la pureté de la liqueur mère.

BIBLIOGRAPHIE

Agarwal, M.,

Combining neural and conventional paradigms for modelling, prediction and control. International Journal of Systems Science, 1997, Vol. 28, n°1, p. 65-81.

Allen, T.,

Particle size measurement.
Chapman and Hall, London, 3^{ème} édition, 1981.

Asch, G. et collaborateurs,

Les capteurs en instrumentation industrielle, 5^{ème} édition, Dunod, 1999, 840 p.

Bailey, Fisher & Porter,

Transmetteurs intelligents pour des mesures de pression, de débit ou de niveau. Documentation technique, 1996.

Batterham, R. J., Frew, J. A., Wright, P. G.,

Control of vacuum pan, 1974, International Society of Sugar Cane Technologists (ISSCT), pp. 1326-1338.

Batterham, R. J., Norgate, T. E.,

Boiling point elevation and superheat in impure cane sugar solutions, International Sugar Journal, 1975, 77, 359-364.

Benne, M., Lorion, R., Chane-Kuang-Sang, L., Lan-Sun-Luk, J.-D and Chabriat, J.-P.,

I-MEDIA 1.0 An Interface under Multitask Environment for Digital Industrial Applications, Industrial Engineering Laboratory, University of La Réunion, 1998.

Benne, M.,

Les réseaux de neurones pour la modélisation et le contrôle du procédé d'évaporation : expérimentations et applications industrielles en sucrerie de canne, Thèse de doctorat, Université de La Réunion, 10 Juillet 1999, 181 p.

Bishop, C.M.,

Neural networks and their applications, Rev. Sci. Instrum, 1994, Vol. 65, n°6, pp. 1802-1832.

Bonnecaze, C.,

Cristallisation C en sucrerie de canne : Modélisation de la pureté de la liqueur mère et étude de l'ensemencement, Thèse de doctorat, Université de La Réunion, 23 Février 2004, 188 p.

Bouamrani, M.,

Contribution à la modélisation de la cristallisation sucrière en vue de la conduite des procédés. Comparaison des approches spécifique et généralisée en simulation dynamique, 1994, Thèse de doctorat, Ecole Central de Paris, 232 p.

Briançon, S., Colson, D., Klein, J.P.,

Modelling of crystalline layer growth using kinetic data obtained from suspension crystallization, Chemical Engineering Journal, 1998, vol. 70, n°1, pp. 55-64.

Broadfoot, R., Steindl, R.J.,

Solubility – crystallization characteristics of Queensland molasses, Proceedings of the International Society of Sugar Cane Technologists, 1980, 2557-2581.

Bubnik, Z., Kadlec, P.,

La solubilité du saccharose dans la livre Saccharose – propriétés et applications, M. Mathlouthi et P. Reiser, éditions Polytechnica, 1995, Paris, p. 106-130.

Bubnik, Z., Kadlec, K.,

Simulation des propriétés des solutions de sucre et de la cristallisation, 1996, Industries Alimentaires et Agricoles, p. 536-540.

Burzawa, E., Heitz, F.,

La cristallisation du sucre : des bases théoriques à la production industrielle. Actualités techniques et industrielles, Industries Alimentaires et Agricoles, 1995, p. 522-532.

Cadet-Bardin, C.,

Modélisation et étude d'une commande automatique d'un procédé industriel d'évaporation en sucrerie de cannes. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard-Lyon, 1997, 200 p.

Chabriat, J.-P.,

Analyse énergétique de procédés de fabrication en sucrerie de cannes. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard-Lyon I, Janvier 1993, 168 p.

Chen, J.C.P.,

Cane sugar handbook, 11th edition. New York: Wiley-interscience, 1985.

Chorão, S., Feye de Azevedo, S.,

A discretized population balance approach for the modelling of industrial sucrose crystallisation, 1996, 13th symposium on industrial crystallisation, Toulouse, France, 16-19 September, pp. 719-725.

Chouaib, F., Huntz, A.M., Larcher, C., Michaut, J.P.,

Thermodynamique et équilibres chimiques, éditions De Boeck Université, Bruxelles, 1994.

Chraibi, H.,

Automatisation en sucrerie. Proposition d'une méthode de conduite et de gestion d'un atelier de cristallisation, 1992, Thèse de doctorat, Ecole Central de Paris, p. 116.

Chung, S.H., Ma, D.L., Braatz, R.D.,

Optimal model-based experimental design in batch crystallization, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 2000, 50, pp. 83-90.

Corriou, J.P.,

Commande des procédés. Paris: Lavoisier, 1996, 592 p.

David, R., Villermaux, J., Marchal, P., Klein, J.P.,

Crystallization and precipitation engineering – IV. Kinetic model of adipic acid crystallization, Chemical Engineering Science, Vol. 46, N° 4, pp. 1129-1136, 1991.

De Jong, E.J.,

The one or the other, Proceedings 9th Symposium on Industrial Crystallisation, Elsevier, Den Hague September 25-28, Amsterdam, 1984, pp. 177-184.

Ditl, P., Beranek, L., Rieger, F.,

Simulation of a stirred sugar boiling pan, Zuckerindustric, 1990, vol. 115, N°8, pp. 667-676.

Doucet, J., Giddey, C.,

Automatic Control of Sucrose Crystallization from High – Medium-purity Syrups, International Sugar Journal, 1966, 68, pp. 131 - 136.

Dubourg, J.,

Considérations théoriques sur la relation entre la conductibilité électrique et la teneur en cendres d'une solution sucrée, Journal des fabricants de sucre, 1938, p. 201-202.

Ducloux, P.,

Modélisation du comportement dynamique et optimisation de la conduite d'une cristallisation discontinue de l'industrie sucrière, 1987, Thèse de doctorat, Ecole Central de Paris, 119 p.

Evans, L. B., Trearches, G.P., Jones, C.,

Simulation Study of Vacuum Pan Sugar Crystallizer, October 1970, Sugar y Azugar, pp. 19-37.

Févotte, G., Klein, J.P.,

Crystallization calorimetry for the assessment of batch seeding and cooling policies, The Chemical Engineering Journal, 59, 1995, pp. 143-152.

Févotte, G.,

Cristallisation par évaporation, Deuxième partie : Commande adaptative des cristallisoirs discontinus, Entropie, N°188/189, 1995, p. 19-28.

Févotte, G.,

Cristallisation par évaporation, Troisième partie : Supervision des opérations industrielles discontinues, Entropie, N°188/189, 1995, p. 29-37.

Feyo de Azevedo, S., Chorão, J., Gonçalves, M. J., Bento, L.,

On-line monitoring of white sugar crystallisation through software sensors – Part I, International Sugar Journal, 1993, 95, pp. 483-488.

Feyo de Azevedo, S., Chorão, J., Gonçalves, M. J., Bento, L.,

On-line monitoring of white sugar crystallisation through software sensors – Part II, International Sugar Journal, 1994, 96, pp. 18-26.

Feyo de Azevedo, S., Dahm, B., Oliveira, F. R.,

Hybrid modelling of biochemical processes: a comparison with the conventional approach, Computers and Chemical Engineering, 1997, 21, pp. S751-S756.

Fraden, J.,

Handbook of modern sensors: physics, designs, and applications, 2^{ème} édition, American Institute of Physics, 1997, 556 p.

Franck, R.,

Modélisation d'un procédé de précipitation : application à l'acide salicylique, Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, 1985, 228 p.

Frew, J. A.,

Optimal Control of batch raw sugar crystallization, Industrial Engineering and Chemical Processing Design and Development, Vol. 12, N°4, 1973, pp. 460-467.

Garside, J.,

Advances in the characterization of crystal growth, 1984, AIChE Symp. S., 240 (80), pp. 23-38.

Garside, J.,

Industrial crystallization from solution, 1985, Chemical Engineering Science, vol.40, N°1, pp. 3-26.

Genotelle, J.,

Etudes des tables relatives à la vapeur d'eau. Formulation mathématique et utilisation pratique, Novembre 1980, Sucrerie Française, p. 357-366.

Georgieva, P., Meireles, M.J., Fayo de Azevedo, S.,

Knowledge-based hybrid modelling of a batch crystallisation when accounting for nucleation, growth and agglomeration phenomena, 2003, Chemical Engineering Science, 58, pp. 3699-3713.

Gerstlauer, A., Motz, S., Mitrovic, A., Gilles, E.-D.,

Development, analysis and validation of population models for continuous and batch crystallizers, Chemical Engineering Science, 2002, 57, pp. 4311-4327.

Grondin-Perez, B., Benne, M., Chabriat, J.P.,

Supervision of C crystallisation in Bois Rouge sugar mill using on-line crystal content estimation using synchronous microwave and refractometric brix measurements, Journal of Food Engineering, Vol. 76, N° 4, 2005, pp. 639-645.

Gros, H.,

A model for vacuum pan crystallizers. Computers and Chem. Eng., 1979, Vol. 3, pp. 523-526.

Guignard, D.,

Thermodynamique chimique, Editions Ellipses, 1989.

Guimarães, L., Sa, S., Bento, L. S. M., Rocha, F.,

Investigation of crystal growth in a laboratory fluidized bed, 1995, International Sugar Journal, Vol. 97, n° 1157, pp. 199-204.

Honing, P.,

Principles of sugar technology II, 1959, Elsevier, Amsterdam.

Hornik, K., Stinchombe, M., White, H.,

Multilayer feedforward networks are universal approximators, Neural networks, 1989, Vol. 2, pp. 359-366.

Hugot, E.,

La sucrerie de cannes (Manuel de l'ingénieur), 1950, 1^{ère} édition - Dunod, Paris, 818 p.

Hugot, E.,

La sucrerie de cannes, 1987, 3^{ème} édition, Paris, Technique & Documentation – Lavoisier, 1018 p.

Hulburt, H. M., Katz, S.,

Some problems in particle technology. Statistical mechanical formulation. Chemical Engineering Science, 1964, Vol. 19.

Jancic, S.J., Grootcholten, P.A.M.,

Industrial crystallization, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 1984.

Kadlec, P., Bretschneider, R., Dandar, A.,

La mesure et le calcul des propriétés physiques des solutions sucrées, 1981, La sucrerie Belge, Vol. 100, p. 45-53.

Kelly, F.H.C., Mak, F.K.,

The sucrose crystal and its solution, Singapore University Press, 1975.

Klein, J. P., Boistelle, R., Dugua, J.,

Cristallisation : Aspects théoriques, Techniques de l'ingénieur, 1989, J-1500-1 / J-1500-21.

Klein, J. P., Boistelle, R., Dugua, J.,

Cristallisation industrielle : Aspects pratiques, Techniques de l'ingénieur, 1991, Traité Génie des Procédés, J-2788-1 / J-2788-31.

Klein, J. P., Févotte, G.,

Cristallisation par évaporation, Première partie : Procédés industriels, Entropie, N°188/189, 1995, p. 5-15.

K-Patents,

Instruction manual for process refractometer PR-01-S (-AX/FM/CS), Document/Revision N° INM 1/12, effective: March 15, 2006.

Kramer, H. J. M., De Wolf, S., Jager, J.,

Simulation of the dynamic behaviour of continuous crystallizers, AIChE, 1990.

Lauret, A. J.-P.,

Nouvelles approches de modélisation de la cristallisation en sucrerie de cannes – Proposition d’application industrielles en vue de l’amélioration des performances du procédé, Thèse de doctorat, Université de La Réunion, 18 Décembre 1998, 327 p.

Leubner, I. H.,

Particle nucleation and growth models, Current Opinion in Colloid & Interface Science, 5, 2000, pp. 151-159.

Libelle, T.,

Identification d’un modèle neuronal de pureté liqueur mère C, Mémoire de DEA, Université de La Réunion, Septembre 2001, 52 p.

Libelle, T., Benne, M., Grondin-Perez, B., Chabriat, J.-P.,

Towards an on-line measurement of the purity cane sugar factory juices: a neural network approach, FoodSim, 2004.

Lieto, J.,

Le génie chimique à l’usage des chimistes, Tec&Doc éditions Lavoisier, 1998, p. 351-389 : La chaîne du solide humide en chimie fine, P. Marchal.

Livk, I., Gregorka, M., Pohar, C.,

Model identification of batch crystallization processes, Computers & Chemical Engineering, Vol. 19, Suppl., pp. S241-S246, 1995.

Lorion, R., Chane-Kuang-Sang, L., Benne, M., Chabriat, J.P.,

Développement d’un serveur de données industrielles pour l’implantation de capteurs logiciels à réseaux de neurones, Actes de la 3^{ème} conférence de Modélisation et Simulation : « Conception, Analyse et Gestion des systèmes industriels », avril 2001, Troyes.

Marchal, P.,

Génie de la cristallisation, application à l’acide adipique. Thèse de doctorat, INP Lorraine, 1989, 244 p.

Mathlouthi, M., Reiser, P.,

Le Saccharose – propriétés et applications, éditions Polytechnica, 1995, Paris.

Mathlouthi, M., Pautrat, C., Genotelle, J.,

Approche de la cristallisation du saccharose à l’échelle moléculaire : rôle de l’eau, Industries Alimentaires et Agricoles, 1996, p. 513-524.

Mathlouthi, M., Genotelle, J.,

Role of water in sucrose crystallization, Carbohydrate Polymers, 1998, 37, pp.335-342.

Maurandi, V.,

Cinétique de cristallisation du saccharose à basse sursaturation, Industries Alimentaires et Agricoles, Juillet/Août, vol. 102, N° 7-8, p. 687-693, 1985.

Maurandi, V., Rossi, A.,

Théorie et pratique de la cuisson du sucre, La Sucrierie Belge, 1975, Vol. 94, N° 105.

Maurandi, V., Rossi, A.,

La cinétique des sirops impurs appliquée à la cristallisation industrielle du saccharose, Industries Alimentaires et Agricoles, 100, N° 7-8, p. 469-474, 1983.

Meireles, M. J., Feyo de Azevedo, S.,

Modelling the operation of a sugar industrial evaporative crystalliser, CHEMPOR'98, Lisbon, Portugal, September 1998, 26-27, pp. 807-814.

Mivi 7000, Sofraser,

<http://www.sofraser.com>.

Monnier, O., Févotte, G., Hoff, C., Klein, J.P.,

Model identification of batch cooling crystallizations through calorimetry and image analysis, Chemical Engineering Science, 1997, Vol.52, N° 7, pp.1125-1139.

Mullin, J.W.,

Crystallization, Butterworths, London, 2nd edition, 1972.

Mullin, J.W., Zacek, S.,

The precipitation of potassium aluminium sulphate from aqueous solutions (la précipitation de l'aluminium de potassium en solution aqueuse), Journal Crystal Growth (NL), N° 53, 1981, pp. 515-8.

Najim, K., Ruiz, V., Feyo de Azevedo, S., Gonçalves, M. J.,

Modelling and adaptive control of a batch evaporative crystalliser, Journal of Systems Engineering, 1996, 6, pp. 233-241.

Nedler, J. A., Mead, R.,

A simplex method for function minimization, Computer Journal, 1964, Vol. 7, pp. 308-313.

Nyvt, J., Sohnel, O., Matuchova, M., Broul, M.,

The kinetics of industrial crystallization, Chemical Engineering Monographs 19, Elsevier, Amsterdam, 1985, 350 p.

Nyvt, J.,

Fundamentals of industrial crystallization: an overview, AVH Association, Troisième Symposium, Reims, Mars 1996.

Ohara, M., Reid, R. C.,

Modeling crystal growth rates from solution, Prentice Hall International series in The Physical and Chemical Engineering Sciences, Englewood Cliffs, USA, 1973, 272 p.

Pacheco, C. R. F., Kurokawa, E. C.,

Thermal performance assessment of Robert's evaporators, International Sugar Journal, 2004, Vol. 106, N° 1265, pp. 270-292.

Palwe, B.G, Chivate, M.R, Tavare, N.S.,

Growth kinetics of ammonium nitrate crystals in a draft tube baffled agitated batch crystallizer, Industrial & Engineering Chemistry Proc. Des. Dev., 1985, Vol. 24, pp. 914-919.

Parker, Wm. H.,

The determination of the apparent purity of beet sugar factory juices and syrups, Part I, 1958, British Sugar Corporation Ltd, pp. 355-357.

Parker, Wm. H.,

The determination of the apparent purity of beet sugar factory juices and syrups, Part II, 1959, British Sugar Corporation Ltd, pp. 9-13.

Pautrat, C., Genotelle, J., Mathlouthi, M.,

Croissance des cristaux de saccharose en présence d'impuretés macromoléculaires : un moyen de contrôle de la qualité du sucre blanc, 1996, Copyright 1996 Association Andrew Van Hook.

Peacock, S.,

Selected physical properties of sugar factory process streams, 1995, SMRI technical report 1714.

Peacock, S.,

Predicting physical properties of factory juices and syrups, 1995, International Sugar Journal, Vol. 97, N° 1162, pp. 571-577.

Peres, J., Oliveira, R., Foyo de Azevedo, S.,

Knowledge based modular networks for process modelling and control, Computers and Chemical Engineering, 2001, 25, pp. 783-791.

Pidoux, G.,

Mesures conductimétriques sur les sirops de sucre à haute pureté, 1961, Zucker, p. 10-14.

Ploix, J. L., Dreyfus, G.,

Knowledge-based neural modeling: principles and industrial applications, International conference on artificial neural networks, Proceedings ICANN'95, 1995.

Ponant, J., Nebout, J.P.,

Considérations sur la détermination de la pureté des solutions sucrées par méthode conductimétrique, 1962, Sucrierie Française, p. 429-434.

Ponant, J., Windal, G.,

Mesure en ligne de la pureté en sucrerie, 1976, Industries alimentaires et agricoles, p. 869-877.

Press, W. H., Flannery, B. P., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T.,

Numerical recipes in C, The Art of scientific computing, Cambridge university Press, 1989, 735 p.

Pro M tec HK2, Harrer & Kassen,

<http://www.harrerkassen.com>.

Psychogios, D. C., Ungar, L. H.,

A hybrid neural network-first principles approach to process modeling, AIChE J., 1992, Vol. 38, N°10, pp. 1499-1511.

Randolph, A. D., Larson, M. A.,

Transient and steady state size distributions in continuous mixed suspension crystallizers, 1962, AIChE J., 8 (5), pp. 639-645.

Ramkrishna, D.,

The status of population balances, 1985, Reviews in Chem. Eng., 3 (1), pp. 49-95.

Rawlings, J. B., Miller, S.M., Witkowski, W. R.,

Model identification and control of solution crystallization processes, Ind. Eng. Chem. Res., 1993, Vol. 32, pp. 1275-1296.

Richalet, J., Rault, A., Pouliquen, R.,

Identification des processus par la méthode du modèle, Londres : Gordon & Breach, 1971, 361 p.

Saska, M.,

Boiling point elevation of technical sugarcane solutions and its use in automatic pan boiling, 2002, International Sugar Journal, Vol. 104, N° 1247, pp. 500-507.

Schneider, P. A.,

Advanced Control of an Industrial Crystalliser, Ph.D. Thesis, 1996, The University of Queensland, St. Lucia 4072, Australia.

Sgualdino, G., Vaccari, G., Mantovani, G., Aquilano, D.,

Implications of crystal growth theories for mass crystallization: application to crystallization of sucrose, Prog. Crystal Growth and Charact., Vol. 32, pp. 225-245, 1996.

Tabouret, T.,

Technologie de la cristallisation – Aspects théoriques et pratiques dans quelques industries alimentaires (saccharose – dextrose – lactose), Série Synthèses bibliographiques, N°17, Bureau National d'Information Scientifique et Technique, 1978.

Tahal, T. V.,

New Models for Sugar Vacuum Pans, Ph. D. Thesis, The University Queensland, St. Lucia, 2000, Australia.

Takiyama, H., Matsuoka, M.,

Design of seed crystal specifications for start-up operation of a continuous MSMR crystallizer, Powder Technology, 121, 2001, pp. 99-105.

Tavare, N.S.,

Industrial Crystallization. Process Simulation Analysis and Design, New York : The Plenum Chemical Engineering Series, Series Editor: Dan Luss, 1995, 527 p.

Trélea, I. C.,

Commande prédictive optimale sous contraintes des procédés discontinus non linéaires utilisés dans l'industrie alimentaire, Thèse : Sci : ENSIA, 1997, 162 p.

Trystram, G.,

Traitement des signaux et des données, In : Capteurs et mesures en biotechnologie/Eds. Boudrant, J., Corrieu, G., Coulet, P., Paris : Lavoisier, 1994, pp. 169-193.

UR 20, Maselli Misure,

Refractometer for on line analysis of concentration, Maselli Misure, Process Analysers.

Vaccari, G., Mantovani, G.,

La solubilité du saccharose dans la livre Le Saccharose – propriétés et applications, M. Mathlouthi et P. Reiser, éditions Polytechnica, 1995, Paris, p. 35-78.

Van der Poel, P. W., Schiweck, H., Schwartz, T.,

Sugar Technology, Beet and Cane Sugar Manufacture, édition Bartens, 1998, 1120 p.

Van Hook, A.,

Crystallization, Theory and Practice, Reihnold, New York, 1961.

Van Hook, A.,

Sucrose crystallization. Mechanism of growth, Zuckerindustrie, 23(9), pp. 499-503, 1973.

Van Hook, A.,

The dissolution of sucrose crystals, International Sugar Journal, 76(905), pp. 131-134, 1974.

Vavrinecz, G.,

Neue Tabelle über die Löslichkeit reiner Saccharose in Wasser. Z. Zuckerrind., 1962, 12, 481.

Vavrinecz, G.,

The formation and composition of beet molasses, Sugar Technology Revue, 1978-1979, 6, 117.

Villermaux, J.,

Génie de la réaction chimique, Conception et fonctionnement des réacteurs. Technique et documentation, Lavoisier, Paris, 1982.

Villermaux, J.,

Génie de la réaction chimique, Conception et fonctionnement des réacteurs, Lavoisier, Paris, 1993, 448 p.

Wagnerowski, K., Dabrowska, D., Dabrowski, C.,

O ilościowych stosunkach składników melasu rzeczywistego, 1961, Gaz. Cukrown., 63, 97.

Wagnerowski, K., Dabrowska, D., Dabrowski, C.,

Probleme der Melasseerschöpfung, Z. Zuckerind., 1962, 12, 664.

Walter, E., Pronzato, L.,

Identification de modèles paramétriques à partir de données expérimentales, Paris : Masson, 1994.

Walton, A.G.,

Nucleation in liquids and solutions, A.C. Zettlemoyer, M. Dekker Inc., New York 1969.

Wiklund, O.,

Molekülverbindungen zwischen Saccharose und Salzen. Ein Beitrag zur Beleuchtung des Mechanismus der Melassebildung, 1955, Zucker, 8, 266.

Wilson, D.I.,

Advanced Control of a Batch Raw Sugar Crystalliser, Ph. D. Thesis, 1990, The University of Queensland, St. Lucia 4072, Australia.

Wright, P. G.,

A Model of Industrial Sugar Crystallisation, Ph. D. Thesis, The University Queensland, Brisbane 4072, 1971, Australia.

Wright, P. G., White, E.T.,

A digital simulation of the vacuum pan crystallization process, Proceeding du 13^{ème} congrès de l'International Society of Sugar Cane Technologists (ISSCT), 1968, pp. 1697-1710.

Wright, P. G., White, E.T.,

A mathematical model of vacuum pan crystallization, Proceeding du 15^{ème} congrès de l'International Society of Sugar Cane Technologists (ISSCT), 1974, pp. 1546-1560.

ANNEXES

ANNEXE 1

Teneur en cristaux : $CC^{\%}$.

La teneur en cristaux dans la masse cuite, peut être définie de deux façons différentes. Les démonstrations qui conduisent aux **équations 2.10 et 2.11** sont les suivantes :

Pour le calcul du $CC^{\%}$ en fonction des Brix liqueur mère et masse cuite.

On a :

$$Bx_{MC}^{\%} = 100 \frac{S + NS + C}{S + NS + E + C}$$

$$Bx_{LM}^{\%} = 100 \frac{S + NS}{S + NS + E}$$

$$Bx_{MC}^{\%} - Bx_{LM}^{\%} = 100 \left[\frac{(S + NS + C)(S + NS + E) - (S + NS)(S + NS + E + C)}{(S + NS + E + C)(S + NS + E)} \right]$$

Soit,

$$Bx_{MC}^{\%} - Bx_{LM}^{\%} = 100 \frac{C.E}{(S + NS + E + C)(S + NS + E)}$$

et

$$100 - Bx_{LM}^{\%} = 100 \frac{E}{S + NS + E}$$

Ainsi,

$$\frac{Bx_{MC}^{\%} - Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}} = \frac{C}{S + NS + E + C}, \text{ et comme } M_T = S + NS + E + C$$

Finalement, on a :

$$CC^{\%} = 100 \frac{Bx_{MC}^{\%} - Bx_{LM}^{\%}}{100 - Bx_{LM}^{\%}}$$

Pour le calcul du $CC^{\%}$ en fonction des puretés liqueur mère et masse cuite.

On a :

$$Pte_{MC}^{\%} = 100 \frac{S + C}{S + NS + C}$$

$$Pte_{LM}^{\%} = 100 \frac{S}{S + NS}$$

$$Pte_{MC}^{\%} - Pte_{LM}^{\%} = 100 \left[\frac{(S+C)(S+NS) - S(S+NS+C)}{(S+NS+C)(S+NS)} \right]$$

Soit,

$$Pte_{MC}^{\%} - Pte_{LM}^{\%} = 100 \frac{C.NS}{(S+NS+C)(S+NS)}$$

et

$$100 - Pte_{LM}^{\%} = 100 \frac{NS}{S+NS}$$

Ainsi,

$$\frac{Pte_{MC}^{\%} - Pte_{LM}^{\%}}{100 - Pte_{LM}^{\%}} = \frac{C}{S+NS+C}$$

Et comme

$$Bx_{MC}^{\%} = 100 \frac{S+NS+C}{M_T}, \text{ avec } M_T = S+NS+E+C$$

Alors,

$$\frac{Pte_{MC}^{\%} - Pte_{LM}^{\%}}{100 - Pte_{LM}^{\%}} Bx_{MC}^{\%} = 100 \frac{C}{M_T}$$

Finalement, on a :

$$CC^{\%} = \frac{Pte_{MC}^{\%} - Pte_{LM}^{\%}}{100 - Pte_{LM}^{\%}} Bx_{MC}^{\%}$$

ANNEXE 2

Les fractions massiques : $\frac{S}{E}$, $\frac{NS}{E}$, $\frac{MS}{E}$ et $\frac{C}{E}$

Lors des descriptions de solutions impures, les termes $\frac{S}{E}$, $\frac{NS}{E}$ et $\frac{C}{E}$ caractérisent la masse-cuite. Les démonstrations qui conduisent aux *équations 2.16, 2.17, 2.18 et 2.19* sont les suivantes :

Pour le calcul du rapport $\frac{S}{E}$:

On a :

$$Pte_{LM} = \frac{S}{S + NS} \Rightarrow S + NS = \frac{S}{Pte_{LM}}$$

Ainsi,

$$Bx_{LM} = \frac{\frac{S}{Pte_{LM}}}{\frac{S}{Pte_{LM}} + E} = \frac{S}{S + Pte_{LM} \cdot E}$$

$$Bx_{LM} = \frac{\frac{S}{E}}{\frac{S}{E} + Pte_{LM}} \Rightarrow Bx_{LM} \left(\frac{S}{E} + Pte_{LM} \right) = \frac{S}{E}$$

Finalement, on a :

$$\frac{S}{E} = \frac{Bx_{LM} \cdot Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}}$$

Pour le calcul du rapport $\frac{NS}{E}$:

On part aussi de la pureté de la liqueur mère :

$$Pte_{LM} = \frac{S}{S + NS} \Rightarrow S + NS = \frac{S}{Pte_{LM}}$$

Ainsi,

$$NS = S \left(\frac{1}{Pte_{LM}} - 1 \right)$$

Alors,

$$\frac{NS}{E} = \frac{S}{E} \left(\frac{1 - Pte_{LM}}{Pte_{LM}} \right) \text{ et comme : } \frac{S}{E} = \frac{Bx_{LM} \cdot Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}}$$

Finalement, on a :

$$\frac{NS}{E} = \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} (1 - Pte_{LM})$$

Pour le calcul du rapport $\frac{MS}{E}$:

$$\frac{MS}{E} = \frac{S}{E} + \frac{NS}{E}$$

Ainsi,

$$\frac{MS}{E} = \frac{Bx_{LM} \cdot Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}} + \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} (1 - Pte_{LM})$$

Finalement, on a :

$$\frac{MS}{E} = \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}}$$

Pour le calcul du rapport $\frac{C}{E}$:

On part du Brix de la masse cuite :

$$Bx_{MC} = \frac{S + NS + C}{S + NS + E + C} \Rightarrow Bx_{MC} (S + NS + E + C) = S + NS + C$$

Ainsi,

$$Bx_{MC} \left(\frac{S + NS}{E} + 1 \right) = \frac{S + NS}{E} + \frac{C}{E} (1 - Bx_{MC})$$

Alors,

$$Bx_{MC} \left(\frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} + 1 \right) = \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} + \frac{C}{E} (1 - Bx_{MC})$$

$$\frac{Bx_{MC}}{1 - Bx_{LM}} - \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}} = \frac{C}{E} (1 - Bx_{MC})$$

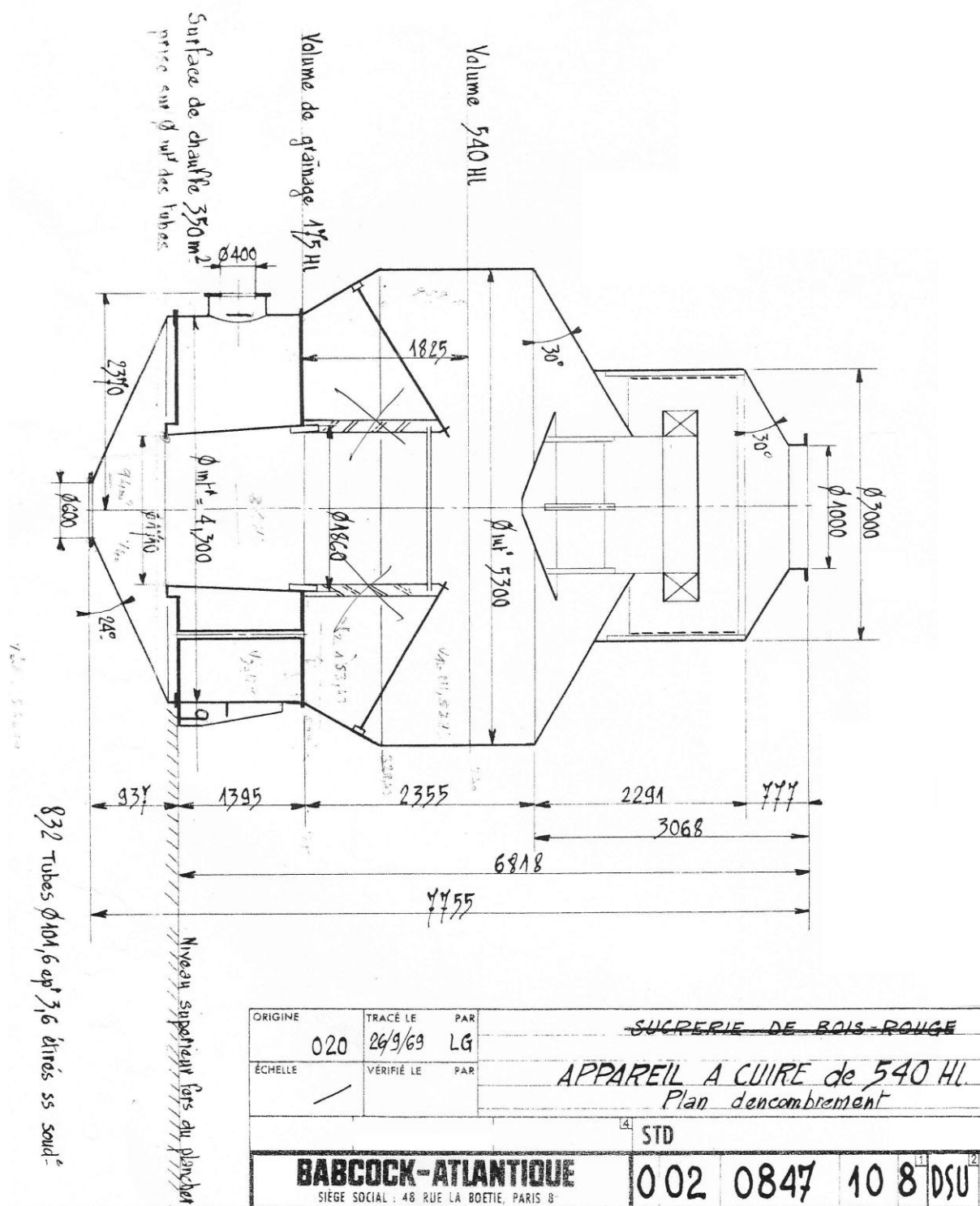
Finalement, on a :

$$\frac{C}{E} = \frac{Bx_{MC} - Bx_{LM}}{(1 - Bx_{LM}) \cdot (1 - Bx_{MC})}$$

$$\text{ou encore : } \frac{C}{E} = \frac{Bx_{MC}}{1 - Bx_{MC}} - \frac{Bx_{LM}}{1 - Bx_{LM}}$$

ANNEXE 3

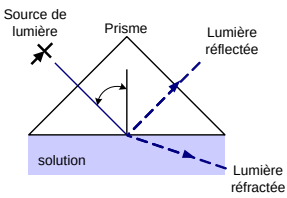
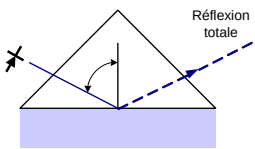
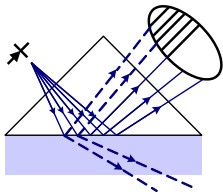
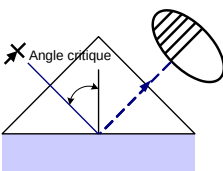
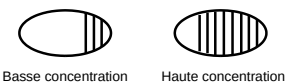
Plan d'encombrement du cristalliseur C540



ANNEXE 4

Principe de fonctionnement des capteurs utilisés en usine

Le principe de fonctionnement des réfractomètres se résume de la façon suivante :

Si un rayon lumineux rencontre avec un angle droit une surface mouillée par une solution, une partie de la lumière est réfléchiée et l'autre partie est réfractée.	
Toutefois, si l'angle du rayon lumineux est obtus alors toute la lumière sera réfléchiée. Il y a donc réflexion totale.	
Dans un réfractomètre, des rayons lumineux de différents angles sont dirigés vers la surface mouillée. Ainsi, une image optique constituée d'une zone sombre et d'une zone claire est créée.	
L'angle correspondant à la limite de la zone sombre de l'image optique est appelé angle critique de la réflexion totale.	
Il est à noter que l'angle critique de la réflexion totale est une fonction de la concentration de la solution.	

Si la limite de la zone sombre est déterminée, alors on a la mesure de la concentration de la solution.

Les capteurs réfractométriques K-Patents et Maselli utilisent un détecteur optique CCD, constitué d'une rangée de 256 cellules photosensibles, qui mesure la limite de la zone sombre.

Ce détecteur optique transforme l'image optique point par point en un signal électrique. L'image optique peut être vue comme une rangée d'impulsions : les hautes impulsions correspondent à l'endroit où le



CCD est exposé à la lumière. La position exacte de la limite de la zone sombre sera localisée par un microprocesseur et sera convertie en unités de concentration.

Le principe de fonctionnement du densimètre micro-onde :

L'élément sensible est constitué de deux tiges en métal et le principe de fonctionnement est le suivant : un oscillateur basse puissance couplé à une antenne génère une onde électromagnétique dans la solution où se trouve des particules en suspension (cristaux de sucres, non-sucres, etc.). La propagation de l'onde se fait au travers des propriétés diélectriques de la solution. Une seconde antenne reçoit cette onde. Le niveau de puissance et le retard de phase de l'onde reçue sont proportionnels à la densité de la solution, **figure 2.19**.

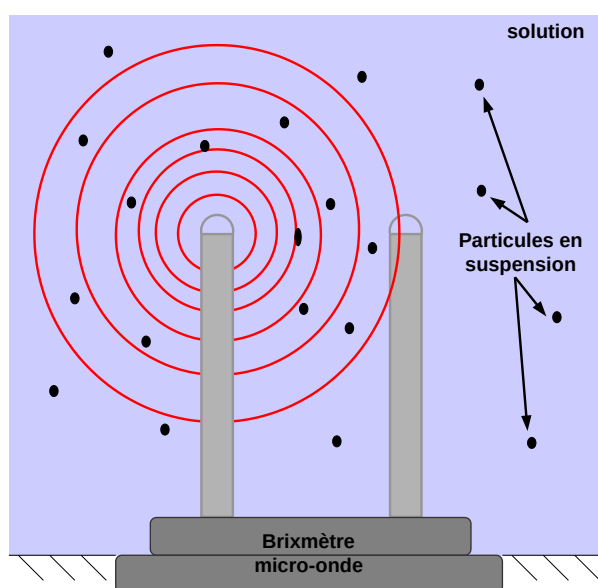


figure 2.19 : représentation du capteur micro-onde.

Le principe de fonctionnement du viscosimètre :

La partie active du viscosimètre installé à Bois Rouge est une tige maintenue en vibration par une puissance constante. L'amplitude de la vibration varie en fonction de la viscosité du fluide dans lequel la tige est plongée. L'électronique des séries 7000 ou 8000 assure la vibration et traite les variations d'amplitude pour obtenir une réponse de viscosité linéarisée, une indication numérique et des sorties analogiques ou digitales. On note aussi qu'il y a également compensation en température de la mesure de la viscosité, [MIVI 7000, Sofraser].

ANNEXE 5

Corrélations des propriétés thermo-physiques

Nous résolvons les équations des bilans de matière et d'énergie (*chapitre 3*) grâce à l'utilisation des corrélations des propriétés thermo-physiques des produits utilisés lors de la cristallisation. Nous résumons dans les cinq parties suivantes les expressions de ces corrélations.

Première partie : les jus sucrés d'alimentation (EA, EB, LS, Sirop)

- Masse volumique des jus d'alimentation [kg.m⁻³] :

$$\rho_f = \left(10^3 + \frac{Bx_f (200 + Bx_f)}{54} \right) \left(1 - 0,036 \frac{T_f - 20}{160 - T_f} \right)$$

- Capacité calorifique [J.(kg.°C)⁻¹] :

$$Cp_f = 4186,8 - 29,7Bx_f + 4,61Bx_f Pte_f + 0,075Bx_f T_f$$

- Enthalpie spécifique [J.kg⁻¹] :

$$H_f = Cp_f T_f$$

Deuxième partie : la masse cuite

- Masse volumique du saccharose en solution pure [kg.m⁻³] :

$$\rho_{lm}^* = \left(10^3 + \frac{Bx_{lm} (200 + Bx_{lm})}{54} \right) \left(1 - 0,036 \frac{T_{mc} - 20}{160 - T_{mc}} \right)$$

- Masse volumique du saccharose en solution impure [kg.m⁻³] :

$$\rho_{lm} = \rho_{lm}^* + 10^3 \left(-1 + \exp \left[\left(-6,927 \cdot 10^{-6} Bx_{lm}^2 - 1,164 \cdot 10^{-4} Bx_{lm} \right) (Pte_{lm} - 1) \right] \right)$$

- Masse volumique de la masse cuite [kg.m⁻³] :

$$\rho_{mc} = \frac{\rho_{lm} \rho_c}{\rho_c - \omega_c (\rho_c - \rho_{lm})}$$

- Capacité calorifique de la liqueur mère [J.(kg.°C)⁻¹] :

$$Cp_{lm} = 4186,8 - 29,7Bx_{lm} + 4,61Bx_{lm} Pte_{lm} + 0,075Bx_{lm} T_{mc}$$

- Enthalpie spécifique de la liqueur mère [J.kg^{-1}] :

$$H_{lm} = Cp_{lm} T_{mc}$$

Troisième partie : les cristaux

- Volume des cristaux [m^3] :

$$v = \frac{m_c}{\rho_c}$$

- Fraction massique des cristaux [%] :

$$\omega_c = \frac{m_c}{m_{mc}}$$

- Capacité calorifique des cristaux [$\text{J} \cdot (\text{kg} \cdot ^\circ\text{C})^{-1}$] :

$$Cp_c = 1163,2 + 3,488T_{mc}$$

- Enthalpie spécifique des cristaux [J.kg^{-1}] :

$$H_c = Cp_c T_{mc}$$

Quatrième partie : l'eau (liquide et vapeur)

- Masse volumique de l'eau [kg.m^{-3}] :

$$\rho_w = 1016,7 - 0,57T_w$$

- Température de saturation de l'eau [$^\circ\text{C}$] :

Si $0,1 < P_{vac} < 1$ bar

$$T_{w(vac)} = 122,551 \exp[-0,246P_{vac}] (P_{vac})^{0,413}$$

Si $1 < P_s < 3$ bar

$$T_{w(s)} = 100,884 \exp[-1,203 \cdot 10^{-2} P_s] (P_s)^{0,288}$$

- Chaleur latente de vaporisation [kJ.kg^{-1}] :

Si $0,1 < P_{vac} < 1$ bar

$$\lambda_{w(vac)} = 2263,28 - 58,21 \cdot \ln(P_{vac})$$

Si $1 < P_s < 3$ bar

$$\lambda_{w(s)} = 2257,51 - 85,95 \cdot \ln(P_s)$$

- Enthalpie spécifique [J.kg⁻¹] :

$$H_w = 2323,3 + 4106,7.T_w + 0,6.T_w^2$$

$$H_{w(s)} = 2323,3 + 4106,7.T_{w(s)} + 0,6.T_{w(s)}^2$$

$$H_s = 2491860 - 13270.P_s + (1947,5 + 37,9.P_s).T_s$$

$$H_{vac} = 2499980 - 24186.P_{vac} + (1891,1 + 106,1.P_{vac}).T_{mc}$$

$$\Delta H_s = H_s - H_{w(s)}$$

- élévation du point d'ébullition [°C] :

$$\Delta T_{eb} = (0,03 - 0,018.Pte_{lm}).(T_{w(vac)} + 84) \frac{Bx_{lm}^{\%}}{100 - Bx_{lm}^{\%}}$$

Cinquième partie : quelques corrélations auxiliaires

- Fraction de volume des cristaux [%] :

$$v_c = \frac{V}{V_{mc}}$$

- Coefficient de saturation :

$$CS = 1 - 0,088 \frac{Bx_{LM}(1 - Pte_{LM})}{1 - Bx_{LM}}$$

- Solubilité du saccharose en milieu pur et impur :

$$MS = 64,447 + 8,222.10^{-2}.T_{mc} + 1,6169.10^{-3}.T_{mc}^2 - 1,558.10^{-6}.T_{mc}^3 - 4,63.10^{-8}.T_{mc}^4$$

dont :

MS est la teneur en matières sèches, pour les solutions aqueuses pures de saccharose,
 MS est égal à la teneur en saccharose.

- Sursaturation de la solution :

$$\beta = \frac{100 - MS}{MS} \cdot \frac{Bx_{LM} Pte_{LM}}{1 - Bx_{LM}} \cdot \frac{1}{1 - 0,088 \frac{Bx_{LM}(1 - Pte_{LM})}{1 - Bx_{LM}}}, \text{ voir section 3.3.6.}$$

ANNEXE 6

Bilan de population

Le bilan de population est donné par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial t} + \frac{\partial G_v \tilde{n}(v)}{\partial v} = \tilde{B}(v) - \tilde{D}(v)$$

$\tilde{n}(v)$: fonction de distribution en volume.

G_v : vitesse de croissance en volume.

$\sim$: précise que l'on prend tout le volume de la cuve en considération.

$\tilde{B}(v)$ et $\tilde{D}(v)$: mécanismes d'agglomérations.

$\tilde{B}(v)$: fonction de taux de natalité (apparition).

$$\tilde{B}(v) = \frac{1}{2} \beta' \int_0^v \tilde{n}(u) \tilde{n}(v-u) du$$

$\tilde{D}(v)$: fonction de taux de mortalité (disparition).

$$\tilde{D}(v) = \beta' \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(v-u) du$$

L'agglomération de deux particules de volumes u et $v-u$ dans une nouvelle particule de volume v est mathématiquement formulée par la vitesse d'apparition de la particule : $\tilde{B}(v)$.

Et la vitesse de disparition de la particule de volume v par : $\tilde{D}(v)$.

β est une mesure de la fréquence de collision entre les particules de volumes u et $v-u$ qui sont susceptibles de produire une particule de volume v .

On définit le $j^{\text{ième}}$ moment de la fonction de distribution en volume d'une particule par :

$$\mu_j(v) = \int_0^\infty v^j n(v) dv$$

Suivant la procédure développée par [Hulburt et Katz, 1964], le bilan de population est conventionnellement remplacé par un ensemble d'équations différentielles ordinaire représentant les moments de distributions en volume :

$$\frac{d\tilde{\mu}_j}{dt} = G_v \left[j\tilde{\mu}_{j-1} - \left[\tilde{n}(v) \cdot v^j \right]_0^\infty \right] + \beta' \left[\frac{1}{2} \left(\sum_{k=0}^j \binom{j}{k} \tilde{\mu}_k \tilde{\mu}_{j-k} \right) - \tilde{\mu}_0 \tilde{\mu}_j \right], j = 0, 1, 2, \dots$$

Pour obtenir cette équation, on écrit :

$$\frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial t} + \frac{\partial G_v \tilde{n}(v)}{\partial v} = \frac{1}{2} \beta' \int_0^v \tilde{n}(u) \tilde{n}(v-u) du - \beta' \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(v-u) du$$

$$\int_0^\infty v^j \left(\frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial t} + \frac{\partial G_v \tilde{n}(v)}{\partial v} \right) dv = \int_0^\infty v^j \left(\frac{1}{2} \beta' \int_0^v \tilde{n}(u) \tilde{n}(v-u) du - \beta' \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(v-u) du \right) dv$$

alors :

$$\diamond \int_0^\infty v^j \frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial t} dv = \int_0^\infty \frac{\partial}{\partial t} (v^j \tilde{n}(v)) dv = \frac{d}{dt} \int_0^\infty v^j \tilde{n}(v) dv = \frac{d}{dt} \tilde{\mu}_j(v), \text{ l'intégrale est indépendante du temps.}$$

On peut utiliser $\tilde{\mu}_j(v)$ car on a un facteur V_{mc} qui s'élimine de chaque côté, c'est-à-dire :

$$\tilde{\mu}_j(v) = \mu_j(v) \cdot V_{mc}$$

$$\diamond \int_0^\infty v^j \frac{\partial G_v \tilde{n}(v)}{\partial v} dv = G_v \int_0^\infty v^j \frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial v} dv$$

car G_v est indépendant de v (hypothèse de Mac Cabe).

$$G_v \int_0^\infty v^j \frac{\partial \tilde{n}(v)}{\partial v} dv = G_v \left[\left[v^j \tilde{n}(v) \right]_0^\infty - \int_0^\infty j v^{j-1} \tilde{n}(v) dv \right] = G_v \left[\left[v^j \tilde{n}(v) \right]_0^\infty - j \int_0^\infty v^{j-1} \tilde{n}(v) dv \right]$$

$$= G_v \left[\left[v^j \tilde{n}(v) \right]_0^\infty - j \tilde{\mu}_{j-1} \right]$$

$$\diamond \int_0^\infty \int_0^v \tilde{n}(u) \tilde{n}(v-u) du dv = \int_0^v \int_0^\infty \tilde{n}(u) v^j \tilde{n}(v-u) dv du$$

u et v sont deux variables indépendantes.

Changement de variables :

On pose : $w = v - u \Rightarrow v = w + u$, le Jacobien = 1.

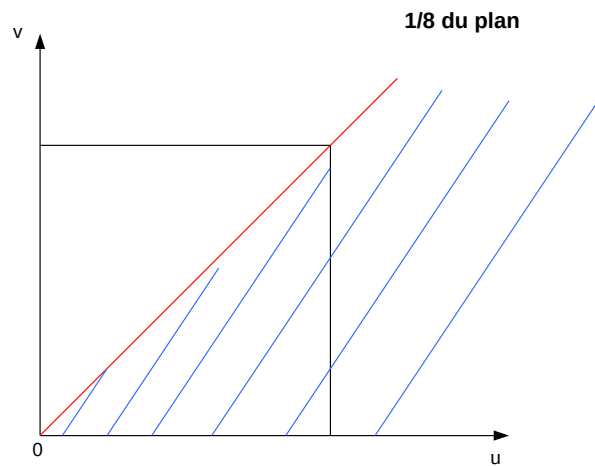
Les bornes :

$$\int_0^v \tilde{n}(u) \tilde{n}(v-u) du = (\tilde{n} * \tilde{n})(v)$$

$\tilde{n}(u) = 0$ si $u < 0$, volume négatif impossible.

$\tilde{n}(v-u) = 0$ si $u > v$, v est la somme des deux particules de volumes u et v , alors si $u > v$: impossible.

Ancien domaine d'intégration :



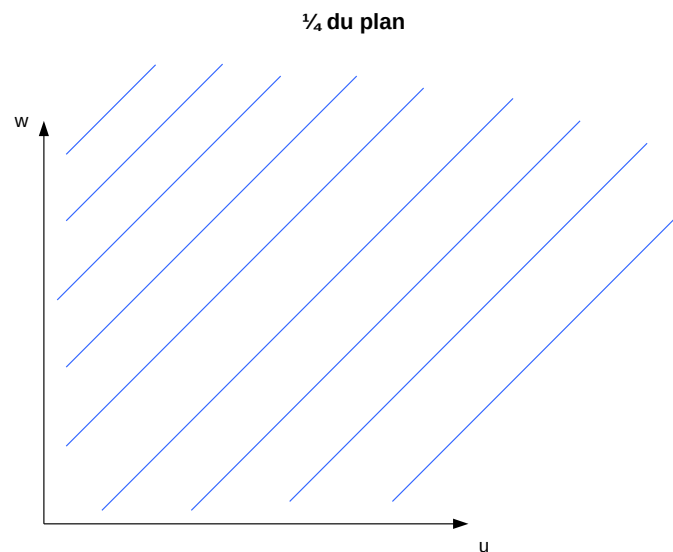
u varie de 0 à l'infinie.

La valeur que peut prendre la fonction est comprise entre 0 et v .

Nouveau domaine d'intégration :

$$w = v - u$$

$$v = w + u$$



Alors :

$$\begin{aligned}
 \int_0^{v=w+u \rightarrow \infty} \int_0^\infty \tilde{n}(u) v^j \tilde{n}(v-u) dv du &= \int_0^\infty \int_0^\infty \tilde{n}(u) (w+u)^j \tilde{n}(w) dw du \\
 &= \int_0^\infty \tilde{n}(u) \int_0^\infty (w+u)^j \tilde{n}(w) dw du \\
 &= \int_0^\infty \tilde{n}(u) \int_0^\infty \sum_{k=0}^j \binom{j}{k} w^{j-k} u^k \tilde{n}(w) dw du \\
 &= \sum_{k=0}^j \binom{j}{k} \int_0^\infty \tilde{n}(u) u^k du \int_0^\infty w^{j-k} \tilde{n}(w) dw \\
 &= \sum_{k=0}^j \binom{j}{k} \tilde{\mu}_k \tilde{\mu}_{j-k}
 \end{aligned}$$

$$\diamond \int_0^\infty v^j \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(v-u) du dv = \int_0^\infty v^j \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(w) dw dv, \text{ avec } \begin{matrix} w = v - u \\ u = v - w \end{matrix}$$

$$\text{alors } \int_0^\infty v^j \tilde{n}(v) \int_0^\infty \tilde{n}(w) dw dv = \int_0^\infty v^j \tilde{n}(v) dv \int_0^\infty \tilde{n}(w) dw = \tilde{\mu}_j \tilde{\mu}_0$$

on a finalement :

$$\frac{d\tilde{\mu}_j}{dt} = G_v \left[j \tilde{\mu}_{j-1} - \left[\tilde{n}(v) \cdot v^j \right]_0^\infty \right] + \beta' \left[\frac{1}{2} \left(\sum_{k=0}^j \binom{j}{k} \tilde{\mu}_k \tilde{\mu}_{j-k} \right) - \tilde{\mu}_0 \tilde{\mu}_j \right], j = 0, 1, 2, \dots$$

ANNEXE 7

Equations différentielles de sensibilité

Si nous considérons que le réseau de neurones à trois sorties (**chapitre 4**), alors nous calculons le signal d'erreur grâce à la résolution d'un système d'équations différentielles de sensibilité. Pour se faire nous partons des équations suivantes :

$$\frac{dm_c}{dt} = 3(k_v \rho_c)^{1/3} (\tilde{\mu}_0)^{1/3} (m_c)^{1/3} G$$

$$\text{et } f_2 = \frac{dm_c}{dt}$$

$$\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} = B - \frac{1}{2} \beta' \tilde{\mu}_0^2$$

$$\lambda_G = \frac{\partial m_c}{\partial G} ; \lambda_B = \frac{\partial m_c}{\partial B} ; \lambda_{\beta'} = \frac{\partial m_c}{\partial \beta'}$$

La sensibilité λ_G :

$$\begin{aligned} \frac{d\lambda_G}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial m_c}{\partial G} \right) = \frac{\partial}{\partial G} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial B} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial B}{\partial G} + \frac{\partial}{\partial \beta'} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial \beta'}{\partial G}, \end{aligned}$$

$$\text{de plus on a : } \frac{\partial}{\partial \beta'} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial \beta'}{\partial G} = \frac{\partial}{\partial G} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) = \frac{\partial f_2}{\partial G}$$

ainsi :

$$\begin{aligned} &= \frac{\partial}{\partial B} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial B}{\partial m_c} \frac{\partial m_c}{\partial G} + \frac{\partial f_2}{\partial G} \\ &= \frac{\partial}{\partial m_c} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial m_c}{\partial G} + \frac{\partial f_2}{\partial G} \\ &= \frac{\partial}{\partial m_c} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \lambda_G + \frac{\partial f_2}{\partial G} \end{aligned}$$

Alors finalement, on a :

$$\frac{d\lambda_G}{dt} = \frac{\partial f_2}{\partial m_c} \lambda_G + \frac{\partial f_2}{\partial G}$$

La sensibilité λ_B :

$$\begin{aligned} \lambda_B &= \frac{\partial m_c}{\partial B} \\ \frac{d\lambda_B}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial m_c}{\partial B} \right) = \frac{\partial}{\partial B} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial m_c} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial m_c}{\partial B} + \frac{\partial}{\partial \tilde{\mu}_0} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial B} \end{aligned}$$

On a alors :

$$\frac{d\lambda_B}{dt} = \frac{\partial f_2}{\partial m_c} \lambda_B + \frac{\partial f_2}{\partial \tilde{\mu}_0} \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial B}$$

La sensibilité $\lambda_{\beta'}$:

$$\begin{aligned} \lambda_{\beta'} &= \frac{\partial m_c}{\partial \beta'} \\ \frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial m_c}{\partial \beta'} \right) = \frac{\partial}{\partial \beta'} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial m_c} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial m_c}{\partial \beta'} + \frac{\partial}{\partial \tilde{\mu}_0} \left(\frac{dm_c}{dt} \right) \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial \beta'} \end{aligned}$$

On a alors :

$$\frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} = \frac{\partial f_2}{\partial m_c} \lambda_{\beta'} + \frac{\partial f_2}{\partial \tilde{\mu}_0} \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial \beta'}$$

Les dérivées partielles $\frac{d\tilde{\mu}_0}{dB}$ et $\frac{d\tilde{\mu}_0}{d\beta'}$:

On utilise la même stratégie et on intègre les équations de sensibilités suivantes :

$$\chi_B = \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial B} \text{ et } \chi_{\beta'} = \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial \beta'}$$

Pour la sensibilité χ_B :

$$\begin{aligned} \text{Pour la dérivée : } \frac{d\chi_B}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial B} \right) = \frac{\partial}{\partial B} \left(\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial \tilde{\mu}_0} \left(\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} \right) \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial B} + \frac{\partial}{\partial \beta'} \left(\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} \right) \frac{\partial \beta'}{\partial B} \\ &= \frac{\partial}{\partial \tilde{\mu}_0} \left(\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} \right) \chi_B + \frac{\partial}{\partial B} \left(\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} \right) \end{aligned}$$

avec :

$$\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} = B - \frac{1}{2} \beta' \tilde{\mu}_0^2 \text{ et } f_1 = \frac{d\tilde{\mu}_0}{dt}$$

On a finalement :

$$\frac{d\chi_B}{dt} = \frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} \chi_B + \frac{\partial f_1}{\partial B}$$

Pour la sensibilité $\chi_{\beta'}$:

$$\begin{aligned} \text{Pour la dérivée : } \frac{d\chi_{\beta'}}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial \beta'} \right) = \frac{\partial}{\partial \beta'} \left(\frac{d\tilde{\mu}_0}{dt} \right) = \frac{\partial f_1}{\partial \beta'} \\ &= \frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} \frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial \beta'} + \frac{\partial f_1}{\partial B} \frac{\partial B}{\partial \beta'} = \frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} \chi_{\beta'} + \frac{\partial f_1}{\partial \beta'} \end{aligned}$$

On a finalement :

$$\frac{d\chi_{\beta'}}{dt} = \frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} \chi_{\beta'} + \frac{\partial f_1}{\partial \beta'}$$

Finalement, on a :

Afin d'obtenir les gradients λ_G , λ_B , $\lambda_{\beta'}$ et calculer les signaux d'erreur d'apprentissage, le système d'équations de sensibilité suivant doit être résolu :

Pour obtenir $\frac{d\chi_B}{dt}$:

$$\frac{d\chi_B}{dt} = \frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} \chi_B + \frac{\partial f_1}{\partial B}, \text{ avec } f_1 = B - \frac{1}{2} \beta' \tilde{\mu}_0^2$$

$$\frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} = -\beta' \tilde{\mu}_0 \text{ et } \frac{\partial f_1}{\partial B} = 1, \quad \frac{\partial f_1}{\partial \beta'} = -\frac{1}{2} \tilde{\mu}_0^2$$

$$\Rightarrow \frac{d\chi_B}{dt} = -\beta' \tilde{\mu}_0 \chi_B + 1$$

Pour obtenir $\frac{d\chi_{\beta'}}{dt}$:

$$\frac{d\chi_{\beta'}}{dt} = \frac{\partial f_1}{\partial \tilde{\mu}_0} \chi_{\beta'} + \frac{\partial f_1}{\partial \beta'},$$

$$\Rightarrow \frac{d\chi_{\beta'}}{dt} = -\beta' \tilde{\mu}_0 \chi_{\beta'} + \left(-\frac{1}{2} \tilde{\mu}_0^2 \right) = -\tilde{\mu}_0 \left(\beta \chi_{\beta'} + \frac{1}{2} \tilde{\mu}_0 \right)$$

Pour obtenir $\frac{d\lambda_G}{dt}$:

$$\frac{d\lambda_G}{dt} = \frac{\partial f_2}{\partial m_c} \lambda_G + \frac{\partial f_2}{\partial G}, \text{ avec } f_2 = 3(k_v \rho_c \tilde{\mu}_0)^{1/3} (m_c)^{2/3} G$$

$$\frac{df_2}{dm_c} = 3(k_v \rho_c \tilde{\mu}_0)^{1/3} \frac{2}{3} (m_c)^{-1/3} G$$

$$\frac{df_2}{dG} = 3(k_v \rho_c \tilde{\mu}_0)^{1/3} (m_c)^{2/3}$$

$$\Rightarrow \frac{d\lambda_G}{dt} = (k_v \rho_c \tilde{\mu}_0)^{1/3} \left[2(m_c)^{-1/3} G \lambda_G + 3(m_c)^{2/3} \right]$$

Pour obtenir $\frac{d\lambda_B}{dt}$:

$$\frac{d\lambda_B}{dt} = \frac{\partial f_2}{\partial m_c} \lambda_B + \frac{\partial f_2}{\partial \tilde{\mu}_0} \left(\frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial B} \right),$$

$$\frac{df_2}{d\tilde{\mu}_0} = (k_v \rho_c)^{1/3} (\tilde{\mu}_0)^{-2/3} (m_c)^{2/3} G$$

$$\Rightarrow \frac{d\lambda_B}{dt} = 2(k_v \rho_c \tilde{\mu}_0)^{1/3} (m_c)^{-1/3} G \lambda_B + (k_v \rho_c)^{1/3} (\tilde{\mu}_0)^{-2/3} (m_c)^{2/3} G \chi_B$$

$$\frac{d\lambda_B}{dt} = (k_v \rho_c)^{1/3} G \left(\frac{m_c}{\tilde{\mu}_0} \right)^{2/3} \left[2 \left(\frac{m_c}{\tilde{\mu}_0} \right)^{-1} \lambda_B + \chi_B \right]$$

Pour obtenir $\frac{d\lambda_{\beta'}}{dt}$:

$$\begin{aligned}\frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} &= \frac{\partial f_2}{\partial m_c} \lambda_{\beta'} + \frac{\partial f_2}{\partial \tilde{\mu}_0} \left(\frac{\partial \tilde{\mu}_0}{\partial \beta'} \right), \\ \Rightarrow \frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} &= 2(k_v \rho_c \tilde{\mu}_0)^{1/3} (m_c)^{-1/3} G \lambda_{\beta'} + (k_v \rho_c)^{1/3} (\tilde{\mu}_0)^{-2/3} (m_c)^{2/3} G \chi_{\beta'}, \\ \frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} &= (k_v \rho_c)^{1/3} G \left(\frac{m_c}{\tilde{\mu}_0} \right)^{2/3} \left[2 \left(\frac{m_c}{\tilde{\mu}_0} \right)^{-1} \lambda_{\beta'} + \chi_{\beta'} \right]\end{aligned}$$

En résumé, on a le système d'équations différentielles de sensibilité :

Comme les diverses cinétiques sont calculées grâce au réseau de neurones, alors on notera :

$$G = G^{NN}$$

$$B = B^{NN}$$

$$\beta' = \beta'^{NN}$$

De ce fait, les masses de cristaux seront alors notées m_c^{hyb} et le moment d'ordre zéro noté μ_0^{hyb} pour montrer que se sont des grandeurs calculées de façons hybride, c'est-à-dire avec le modèle de connaissance et neuronal.

On a :

$$\begin{aligned}\frac{d\chi_B}{dt} &= 1 - \beta'^{NN} \mu_0^{hyb} \chi_B \\ \frac{d\chi_{\beta'}}{dt} &= -\mu_0^{hyb} (\beta'^{NN} \chi_{\beta'} + 0.5 \mu_0^{hyb}) \\ \frac{d\lambda_G}{dt} &= (\phi_v \mu_0^{hyb} \rho_c)^{1/3} \left(2(m_c^{hyb})^{-1/3} G^{NN} \lambda_G + 3(m_c^{hyb})^{2/3} \right) \\ \frac{d\lambda_B}{dt} &= (\phi_v \rho_c)^{1/3} G^{NN} \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{2/3} \left(2 \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{-1} \lambda_B + \chi_B \right) \\ \frac{d\lambda_{\beta'}}{dt} &= (\phi_v \rho_c)^{1/3} G^{NN} \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{2/3} \left(2 \left(\frac{m_c^{hyb}}{\mu_0^{hyb}} \right)^{-1} \lambda_{\beta'} + \chi_{\beta'} \right)\end{aligned}$$

Résumé

Cette étude concerne la modélisation d'un procédé de cristallisation de troisième jet, dite cristallisation C, en sucrerie de cannes. De par la complexité des phénomènes physico-chimiques mis en jeu lors d'une cristallisation industrielle, il est nécessaire de développer plusieurs approches de modélisation. Cette multiplicité de modèles permet de comparer ainsi les diverses approches proposées. Nous avons pour cela axé notre étude sur la modélisation des diverses cinétiques des phénomènes physiques qui interviennent lors d'une cristallisation C, par le biais de plusieurs modèles mathématiques. En effet, nous avons considéré trois types de cinétiques pouvant exister au sein de la solution : la cinétique de nucléation, la cinétique de croissance et la cinétique d'agglomération.

Nous avons aussi mis en place plusieurs stratégies de modélisation dites « hybrides », qui sont en fait les combinaisons de réseaux de neurones et de modèles de connaissances. Les phases d'apprentissage des réseaux de neurones sont basées sur des mesures, et la modélisation globale du procédé de cristallisation combine cette approche systémique aux différents modèles de connaissance choisis.

Ces diverses approches utilisées n'occultent pas les démarches classiques de modélisation en génie de la cristallisation. De ce fait, si nous souhaitons contrôler le procédé, plusieurs modèles mathématiques s'articulant autour de différents bilans de population sont proposés.

Ce travail est original, d'une part, car il décrit la cristallisation de troisième jet, et d'autre part, du fait que les divers modèles de cinétiques soient identifiés avec des données industrielles. En effet, il faut souligner qu'il n'existe quasiment pas de travaux relatifs à la cristallisation C, donc peu de références bibliographiques sur cette cristallisation de bas produit en milieu industriel sucrier.

Abstract

This study deals with modeling the boiling third crystallization process, boiling C crystallization in cane sugar mill. Due to the complexity of physicochemical phenomena involved in the industrial boiling crystallization, it is necessary to develop several modelling approaches. By this way, the variability of these models leads to compare the various modeling suggested. We have focused our research on modeling various kinetics of physical phenomena contributing to the boiling C crystallization, through mathematical models. We have considered three kinetics that exist in solution: the nucleation rate, the growth rate and the agglomeration rate.

We are proposing several boiling modeling, called "hybrid modeling strategies", which are the combinations of neural networks and the prior knowledge.

The neural networks' training is based on some industrial data, and the boiling C crystallization process modelling associates this systemic model to the prior knowledge. The various approaches presented do not exclude the classical modelling in boiling crystallization.

For this reason, if we want to supervise the boiling crystallization process, several mathematical models are suggested through the population balances.

This study is original, on one hand, by describing the boiling C crystallization, and on the other hand, by the identification of several modeling with industrial data.

It is necessary to underline that there is a lack of literature data regarding the boiling C crystallization, and thus there are only few bibliographical references on the boiling C crystallization in cane sugar mill.