



**HAL**  
open science

# Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé

Fadi Ibrahim

► **To cite this version:**

Fadi Ibrahim. Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé. Automatique / Robotique. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2006. Français. NNT: . tel-00168334

**HAL Id: tel-00168334**

**<https://theses.hal.science/tel-00168334>**

Submitted on 14 Sep 2007

**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.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

--	--	--	--	--	--	--	--	--	--

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INPG

**Spécialité : " Automatique - Productique "**

préparée au Laboratoire d'Automatique de Grenoble

dans le cadre de l'École Doctorale

**" Électronique, Électrotechnique, Automatique, Traitement du Signal "**

présentée et soutenue publiquement

par

**Fadi Ibrahim**

25 octobre 2006

---

**Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé**

---

**Directeur de Thèse : Mazen Alamir**

JURY

M.	Luc Dugard	, Président
M.	Mohammed M'Saad	, Rapporteur
Mme.	Nida Sheibat-Othman	, Rapporteur
M.	Mazen Alamir	, Directeur de thèse
M	Jean-Pierre Corriou	, Co-encadrant
M.	Olivier SENAME	, Examineur



# Remerciements

Je tiens à remercier vivement toutes celles et ceux qui, par leur confiance, leur appui, leurs conseils, m'ont porté dans mon travail.

J'adresse tout d'abord mes remerciements aux membres du jury de cette thèse :

Monsieur **Mazen Alamir**, mon directeur de thèse, pour la qualité extraordinaire et humaine de son encadrement scientifique. Pour sa créativité et son fort dynamisme. Je tiens à lui exprimer mes profonds remerciements.

Monsieur **Jean-pierre Corriou**, mon co-encadrant de thèse, pour ces conseils et pour l'efficacité remarquable de ses interventions. Je lui exprime ma gratitude.

Madame **Nida Sheibat-Othman** et Monsieur **Mohammed M'Saad** qui m'ont fait l'honneur d'être rapporteurs de ce travail, pour le temps qu'ils ont bien voulu consacrer à cette tâche et les enrichissements divers qu'ils ont apporté à mon mémoire de thèse. Je leurs en suis reconnaissant.

Monsieur **Luc Dugard** me fait l'honneur d'assurer la présidence du jury et pour la qualité de sa relecture de mon mémoire et pour l'attention qu'il y a apportée. Qu'il trouve ici l'expression de ma gratitude.

Monsieur **Olivier Sename** d'avoir examiné mon mémoire de thèse et pour ses remarques subtiles et enrichissantes. Je lui adresse ici tous mes remerciement.

Je tiens à remercier tous mes collègues du laboratoire, et en particulier Ahmed Chemori pour sa volonté illimitée à donner, Sameh et Abed d'avoir organisé le pot de ma soutenance de thèse, Marc pour son calme,...

Un grand merci à toute l'équipe administrative et technique du laboratoire et en particulier : Marie-thérèse, Virginie, Patricia, Marie-rose, Daniel, Olivier,...

*Un merci parfumé et coloré pour **Marina**, pour son soutien et son coeur transparent*



## Publications

[1]. Mazen ALAMIR, Fadi IBRAHIM and Jean-Pierre CORRIOU "A flexible nonlinear model predictive control scheme for quality/performance handling in nonlinear Simulated-Moving-Bed chromatography ". *Journal of Process Control, Volume 16, Issue 4, April 2006, Pages 333-344*  
*Proceedings of the IFAC World Congress, Praha, 2005.*

[2]. Bilal YOUSSEF, Mazen ALAMIR and Fadi IBRAHIM " Diagnosis and on-line parametric estimation of simulated moving bed" (*Proceedings of 44th IEEE Conference on Decision and Control and European Control Conference CDC 2005.*)



## Notations

<b>A</b>	Le composant le plus fortement adsorbé par la phase solide.
<b>B</b>	Le composant le moins fortement adsorbé par la phase solide.
$t$	Le temps [ <i>sec</i> ].
$x$	L'abscisse [ <i>cm</i> ].
$r$	La coordonnée radiale [ <i>cm</i> ].
$C_i$	La concentration du composant $i$ dans la phase liquide [ $g/cm^3$ ].
$C_i^F$	La concentration du composant $i$ dans la phase liquide à l'alimentation [ $g/cm^3$ ].
$C_{p,i}$	La concentration du composant $i$ dans la phase liquide stagnante [ $g/cm^3$ ].
$C_i^{in}$	La concentration du composant $i$ dans la phase liquide à l'entre d'une colonne [ $g/cm^3$ ].
$C_{in}^{(j)}$	La concentration à l'entrée d'une section $j$ , où $j \in \{I,II,III,IV\}$ [ $g/cm^3$ ].
$C_{out}^{(j)}$	La concentration à sortie d'une section $j$ , où $j \in \{I,II,III,IV\}$ [ $g/cm^3$ ].
$q_i$	La concentration du composant $i$ dans la phase solide [ $g/cm^3$ ].
$q_i^{eq}$	La concentration d'un composant $i$ dans la phase solide à l'équilibre avec la phase liquide [ $g/cm^3$ ].
$k_i$	La constante de distribution entre les deux phases (le coefficient de l'isotherme) pour le composant $i$ .
$q_{mi}$	La capacité maximale d'adsorption du composant $i$ par la phase solide.
$H_i$	Le coefficient de Henry du composant $i$ .
$n$	Le paramètre de Freundlich qui indique l'intensité d'adsorption.
$\varepsilon$	La porosité externe du lit.

$\varepsilon_p$	La porosité interne du lit.
$\varepsilon^*$	La porosité totale du lit.
$D_{ax}$	Le coefficient de dispersion axiale du composant $i$ [ $cm^2/sec$ ].
$P_e$	Le nombre de Peclet.
$R_e$	Le nombre de Reynolds.
$\rho$	La densité du fluide [ $g/cm^3$ ].
$\eta$	La viscosité du fluide [ $g/cm\ s$ ].
$R$	Le rayons d'une particule [ $cm$ ].
$k_{effi}$	Le coefficient de transfert du composant $i$ [ $cm/sec$ ].
$u$	La vitesse de la phase liquide [ $cm/sec$ ].
$u^{(j)}$	La vitesse de la phase liquide dans une section $j$ où $j \in \{I,II,III,IV\}$ pour un lit mobile vrai [ $cm/sec$ ].
$u_{LMS}^{(j)}$	La vitesse de la phase liquide dans une section $j$ où $j \in \{I,II,III,IV\}$ pour un lit mobile simulé [ $cm/sec$ ].
$u_S$	La vitesse de la phase solide [ $cm/sec$ ].
$T_{sw}$	La période de commutation [ $cm$ ].
$v_i$	La vitesse de propagation du composant $i$ [ $cm/sec$ ].
$L$	La longueur de la colonne [ $cm$ ].
$Ac$	La surface d'une section de la colonne [ $cm^2$ ].
$Vc$	Le volume de la colonne [ $cm^3$ ].
$Q^{(j)}$	Le débit volumique du fluide dans une section $j$ où $j \in \{I,II,III,IV\}$ pour un lit mobile vrai [ $cm^3/sec$ ].
$Q_{LMS}^{(j)}$	Le débit volumique du fluide dans une section $j$ où $j \in \{I,II,III,IV\}$ pour un lit mobile simulé [ $cm^3/sec$ ].
$Q_D$	Le débit volumique du fluide dans la désorption [ $cm^3/sec$ ].
$Q_{Ext}$	Le débit volumique du fluide dans la l'extraction [ $cm^3/sec$ ].
$Q_F$	Le débit volumique du fluide dans l'alimentation [ $cm^3/sec$ ].
$Q_{Raf}$	Le débit volumique du fluide dans le raffinage [ $cm^3/sec$ ].
$Q^S$	Le débit volumique de la phase solide [ $cm^3/sec$ ].

# Introduction générale

Le travail présenté dans le cadre de cette thèse consiste à contribuer à la commande d'un procédé de séparation chromatographique dit le **Lit Mobile Simulé (LMS)**. Le lit mobile simulé est un procédé de séparation dans lequel un mouvement à contre-courant d'une phase liquide et d'une phase solide est simulé par une rotation périodique des ports d'injection et de soutirage. Ce procédé permet de séparer des composants se trouvant initialement mélangés dans un liquide. Le principe physique de séparation qui est à la base de cette technique est celui de la "chromatographie d'adsorption à contre-courant" dans lequel les composants à séparer possèdent différentes affinités d'adsorption sur le lit solide.

Cette technologie est utilisée dans de nombreux domaines, comme la séparation des sucres (glucose, fructose), des énantiomères, des hydrocarbures, dans l'industrie agrochimique, agroalimentaire, pharmaceutique et en chimie fine. Dans ces industries, les procédés de séparation plus classiques (colonne de distillation, absorption, extraction liquide-liquide,...) sont écartés en raison de l'instabilité thermique des corps ou pour des raisons de rentabilité économique. Dès lors, la séparation par voie chromatographique se révèle concurrentielle quand il s'agit de fractionnement à très haute pureté pour des produits délicats et/ou de structures chimiques voisines (isomères, énantiomères,...) et même pour des tonnages relativement importants comme en industrie sucrière (glucose, fructose,...). Dans ce contexte, le lit mobile simulé se révèle une alternative prometteuse puisqu'il permet de réaliser des séparations chromatographiques à contre-courant en évitant les problèmes inhérents à celle-ci (la circulation d'une phase solide).

Le lit mobile simulé présente plusieurs sources de difficultés en vue de la commande (modèle à paramètres distribués, non linéaire, multivariable et à dynamique hybride). Ces difficultés font que la commande de ce procédé reste un défi sur le plan académique. Ainsi, les travaux existants qui concernent la commande de ce procédé ne sont pas si nombreux et sont relativement récents (le premier travail a été publié en 1997 par [59]); probablement pour les raisons suivantes [22] :

- le procédé peut être opéré manuellement puisqu'il est lent. En effet, son temps de réponse est de l'ordre de plusieurs heures, permettant ainsi à un opérateur humain de manipuler l'opération.
- les variables d'état ne sont mesurable qu'à certains endroits (aux points d'injection et du soutirage). Cela complique la synthèse d'un schéma de commande basé sur un retour d'état qui rend indispensable le recours à un estimateur d'état.
- la complexité de ce procédé ne permet pas d'appliquer des algorithmes standards.

Les différentes approches de commande d'un lit mobile simulé -qui sont détaillées dans la section 4.2 du chapitre 4- peuvent être classées en deux catégories, à savoir :

1. approches hors-ligne ([59], [22], [34], [45])
2. approches en-ligne (commande prédictive linéaire [75], [76], [37],[38] et une approche de commande prédictive non linéaire [5]).

La stratégie de commande présentée dans cette thèse, se situe dans cette dernière catégorie (la commande prédictive non linéaire). L'optimisation non linéaire associée à la commande prédictive non linéaire a été distribuée dans le temps afin de pouvoir l'implémenter en-ligne. Les résultats de notre recherche concernant la commande ont été publiés dans [58]. Des résultats de recherche concernant l'estimation paramétrique d'un lit mobile simulé sont présentés dans [11].

## Organisation du mémoire

Le mémoire est organisé de la façon suivante :

### 1. Chapitre 1 (**Le lit mobile simulé**) :

Le premier chapitre consiste en une présentation générale du procédé. Ce chapitre débute par une présentation historique du procédé et par une explication simplifiée du phénomène de séparation (la chromatographie d'adsorption) sur lequel il repose. Ensuite, le mécanisme de séparation sur une colonne chromatographique - qui est l'unité principale d'un lit mobile simulé - est expliqué ainsi que le mécanisme de séparation par le procédé.

### 2. Chapitre 2 (**La modélisation du procédé**) :

Ce chapitre présente de façon détaillée les différentes approches de modélisation d'une colonne chromatographique (équations aux dérivées partielles, théorie des plateaux). En effet, un modèle du lit mobile simulé est construit en connectant des modèles de colonnes chromatographiques et en introduisant l'effet des commutations.

### 3. Chapitre 3 (**Conception et optimisation du procédé**):

Le but de ce chapitre est de donner un panorama général des méthodes et des outils permettant la conception et l'optimisation du procédé. L'importance de ce chapitre vient du fait qu'il permet de savoir sous quelles conditions opérationnelles et dimensionnelles (l'appareillage) le lit mobile simulé peut réaliser les performances souhaitées et comment optimiser ces conditions pour rendre la séparation moins coûteuse.

### 4. Chapitre 4 (**La Commande du lit mobile simulé**):

Ce chapitre constitue la contribution principale de cette thèse. Un schéma de commande prédictive non linéaire est développé pour assurer les performances souhaitées tout en gérant des considérations d'ordre économique et opérationnel. Les résultats des simulations permettent de démontrer l'efficacité du schéma proposé.

# Table des matières

<b>Publications</b>	<b>iv</b>
<b>Notations</b>	<b>vi</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>ix</b>
Organisation du mémoire . . . . .	x
<b>1 Le Lit Mobile Simulé</b>	<b>1</b>
1.1 Introduction . . . . .	1
1.1.1 Définition du procédé . . . . .	1
1.1.2 Présentation historique du procédé . . . . .	2
1.2 La séparation chromatographique . . . . .	2
1.2.1 Classification des méthodes chromatographiques . . . . .	3
1.2.2 Phénomènes principaux de la chromatographie d'adsorption . . . . .	5
1.2.3 Modèle de la chromatographie d'adsorption sur une colonne . . . . .	7
1.2.4 Simulation d'un modèle de colonne chromatographique . . . . .	9
1.3 Applications de la chromatographie sur une colonne . . . . .	13
1.3.1 La chromatographie sur un lit fixe . . . . .	13
1.3.2 La chromatographie à contre-courant . . . . .	14
1.4 Le lit mobile vrai . . . . .	14
1.4.1 Description du lit mobile vrai . . . . .	14
1.4.2 Le mécanisme de séparation dans le lit mobile vrai . . . . .	15
1.5 Le Lit Mobile Simulé . . . . .	17
1.5.1 La connexion des sections dans le lit mobile simulé . . . . .	19
1.6 Fonctionnement du lit mobile simulé . . . . .	20
1.6.1 L'évolution temporelle des profils de concentration dans le lit mobile simulé . . . . .	21
1.6.2 La distribution spatiale des profils de concentration dans le lit mobile simulé . . . . .	23
1.7 L'objectif de la commande d'un lit mobile simulé . . . . .	25
1.8 Conclusion . . . . .	26
<b>2 Modélisation du lit mobile simulé</b>	<b>27</b>
2.1 Introduction . . . . .	27
2.2 Modélisation d'une colonne chromatographique . . . . .	28
2.2.1 Modélisation par des équations différentielles aux dérivées partielles . . . . .	28
2.2.2 Modélisation par des mélangeurs en cascade parfaitement agités . . . . .	33

2.2.3	Modélisation mathématique basée sur la théorie des plateaux d'une colonne chromatographie . . . . .	36
2.2.4	Le modèle de simulation choisi dans le présent travail . . . . .	37
2.3	Modélisation du lit mobile simulé . . . . .	37
2.3.1	La connexion des sections d'un lit mobile simulé . . . . .	38
2.3.2	Les effets des commutations . . . . .	38
2.4	Conclusion . . . . .	43
<b>3</b>	<b>Conception et optimisation du procédé</b>	<b>45</b>
3.1	Introduction . . . . .	45
3.2	Équivalence entre le lit mobile simulé (LMS) et le lit mobile vrai (LMV) . . . . .	45
3.3	La conception opérationnelle du procédé . . . . .	47
3.3.1	Les conditions de séparation . . . . .	48
3.3.2	La théorie de la marge de sécurité " <i>Security margin theory</i> " . . . . .	53
3.3.3	La théorie triangulaire " <i>Triangle theory</i> " . . . . .	54
3.3.4	La méthodologie du volume séparé " <i>Separation volume methodology</i> " . . . . .	65
3.3.5	Théorie de l'onde stationnaire ( <i>Standing Wave Design</i> ) . . . . .	67
3.4	Optimisation du procédé . . . . .	68
3.4.1	Méthodes graphiques pour l'optimisation du procédé . . . . .	69
3.4.2	Méthodes mathématiques pour l'optimisation du procédé . . . . .	70
3.4.3	Optimisation dimensionnelle . . . . .	71
3.4.4	Autres idées d'optimisation d'un lit mobile simulé . . . . .	73
3.5	Conclusion . . . . .	73
<b>4</b>	<b>La Commande du lit mobile simulé</b>	<b>75</b>
4.1	Introduction . . . . .	75
4.1.1	Problématique de la commande d'un lit mobile simulé . . . . .	76
4.2	État de l'art sur la commande du lit mobile simulé . . . . .	78
4.3	Les particularités de l'approche de commande proposée . . . . .	80
4.4	La commande prédictive . . . . .	81
4.4.1	Le principe de la commande prédictive . . . . .	81
4.5	L'optimisation distribuée dans le temps . . . . .	85
4.6	La méthode de la région de confiance . . . . .	87
4.7	Principe de l'approche proposée . . . . .	88
4.7.1	Le choix des variables de commande et les contraintes à imposer . . . . .	88
4.7.2	La formulation du modèle de prédiction . . . . .	91
4.7.3	Formulation du problème de commande . . . . .	92
4.7.4	Définition du problème d'optimisation en boucle ouverte . . . . .	96
4.7.5	Le schéma de commande proposé en boucle fermée . . . . .	102
4.8	Aspects techniques . . . . .	107
4.8.1	La région de confiance . . . . .	108
4.8.2	La robustesse vis-à-vis des incertitudes paramétriques . . . . .	109
4.9	Simulations . . . . .	110
4.9.1	Le modèle de simulation . . . . .	110
4.9.2	Les paramètres du contrôleur . . . . .	110

4.9.3	Les résultats de simulation . . . . .	110
4.10	Conclusion . . . . .	118
4.11	Estimation Paramétrique . . . . .	119
4.11.1	Estimation paramétrique par la méthode des moindres carrés . . . . .	119
4.11.2	l'estimation des coefficients de l'isotherme . . . . .	120
4.11.3	L'estimation des coefficients de l'isotherme, le débit de l'extraction et le débit d'alimentation . . . . .	122
4.11.4	Comparaison avec un nouvel outil graphique pour le diagnostic et l'estimation paramétrique . . . . .	122

**Conclusion générale et perspectives** **124**

# Chapitre 1

## Le Lit Mobile Simulé

### 1.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de présenter et de décrire le fonctionnement du procédé d'une façon détaillée. Le chapitre débute par la définition du procédé suivie d'une brève présentation historique de celui-ci. Les phénomènes principaux de la séparation chromatographique (adsorption, désorption, isotherme d'adsorption) sur lesquels repose le lit mobile simulé sont ensuite présentés.

Avant d'expliquer le mécanisme de la séparation chromatographique dans le lit mobile simulé, il est nécessaire de comprendre le principe de la séparation dans une colonne chromatographique (qui est l'unité principale de séparation dans un lit mobile simulé). Pour cela, un modèle mathématique simplifié d'une colonne chromatographique est étudié. Quelques simulations de ce modèle sont réalisées afin de montrer les effets de certaines propriétés chromatographiques.

Ensuite, le chapitre présente le fonctionnement du lit mobile simulé, reposant sur l'explication du fonctionnement d'un procédé chromatographique idéal (imaginaire) dit le lit mobile vrai. En effet, le lit mobile simulé est une réalisation industrielle du procédé idéal. Les deux procédés ont la même architecture de base (quatre sections et quatre robinets), mais la différence principale entre eux est la façon de mettre en mouvement une phase solide. La phase solide est *vraiment* mobile dans le lit mobile *vrai*, alors que son mouvement est *simulé* dans le lit mobile *simulé*.

La façon de mettre en mouvement la phase solide dans le lit mobile simulé introduit plusieurs aspects (cyclicité, discontinuité, différence entre le concept d'une section géométrique et d'une section fonctionnelle...) développés dans la dernière section de ce chapitre.

#### 1.1.1 Définition du procédé

Le Lit Mobile Simulé (LMS) est un procédé de séparation chromatographique dont le but est de séparer les différents constituants d'une charge fluide. Ce procédé a connu un grand succès et a été largement utilisé dans plusieurs domaines industriels comme la pétrochimie, la pharmacie, l'agro-alimentaire et la chimie fine. Les raisons principales du succès de ce procédé sont les suivantes :

- les séparations sont effectuées à température normale, à la différence de la distillation, évitant ainsi la dégradation des composés sensibles à la chaleur.

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

- ce procédé permet de séparer efficacement des composants aux propriétés physico-chimiques très proches.
- la qualité de séparation atteinte par ce procédé est très élevée.

Le principe du procédé repose sur la séparation par chromatographie. La chromatographie est une méthode de séparation qui a deux utilisations possibles : purifier et caractériser (analyser). Originellement, la chromatographie est une méthode d'analyse appliquée dans le domaine de la chimie analytique, comme le fameux **HPLC** (Chromatographie Liquide à Hautes Performances). Puis, la chromatographie est devenue une méthode de séparation bien établie dans l'industrie, où le lit mobile simulé en est la meilleure implémentation. Toutefois, le lit mobile simulé est un procédé complexe et très sensible aux perturbations internes et externes, surtout quand il est opéré à l'optimum. Ceci justifie l'intérêt de commander ce procédé en boucle fermée.

### 1.1.2 Présentation historique du procédé

Le lit mobile simulé a vu le jour en 1960 au sein de la société **UOP** (Universal Oil Products) [1],[12]. La société **UOP** est une grande compagnie du secteur de la pétro-chimie qui a développé et commercialisé la technologie du lit mobile simulé pour effectuer des séparations à grande échelle pour des produits pétro-chimiques. Étant donné la grande capacité de séparation manifestée par ce procédé ainsi que des gains économiques significatifs, une très grande variété d'applications ont été mise en place. L'Institut Français du Pétrole (**IFP**) a lancé sur le marché différentes versions du lit mobile simulé dites procédés **ELUXYL** destinés à produire du paraxylène [28]. La société **Separex** a proposé la technologie **LICOSEP** assortie de la mise au point nécessaire à chaque cas particulier dans les domaines de la pharmacie, de la chimie fine, de la parfumerie ainsi que dans le domaine de la bio-séparation qui offre de nouvelles ouvertures d'exploitation. En effet, les regards actuels se tournent vers la nano-échelle avec comme application la séparation des protéines. Certaines idées ont été proposées afin d'exploiter la technologie du lit mobile simulé pour des séparations protéomiques [41], [35], [43], [36]. Identifier les protéines et surtout les molécules inconnues est un enjeu majeur.

Avant de poursuivre la description du lit mobile simulé dans la suite de ce chapitre, la section suivante aborde le principe de la séparation chromatographique.

## 1.2 La séparation chromatographique

La chromatographie est une méthode de séparation basée sur les différences d'affinité des substances à séparer à l'égard d'une phase stationnaire ou fixe et d'une autre qui est mobile. Grâce au botaniste russe Tswett, la chromatographie a été réalisée pour la première fois en 1903 [51]. Elle visait la séparation d'extraits végétaux par percolation sur une colonne d'adsorbant. La chromatographie a été considérée comme un procédé de fractionnement comparable à la distillation mais beaucoup plus pratique, spécialement conçu pour séparer des composants sensibles à la chaleur. Les applications de la chromatographie ont été étendues à tous les domaines de la chimie organique, puis à la chimie minérale. Récemment, avec la découverte de la technologie du lit mobile simulé, la chromatographie connaît une expansion continue.

## 1.2.1 Classification des méthodes chromatographiques

Les différentes classifications de la chromatographie sont présentées dans cette section afin de pouvoir situer le type de chromatographie sur lequel repose le lit mobile simulé, celle de la "Chromatographie d'adsorption réalisée sur une colonne". Les méthodes chromatographiques regroupent des techniques très variées qui peuvent être classées selon trois modalités différentes [15] :

### Classification selon la nature des phases

La séparation chromatographique est toujours réalisée entre deux phases dont l'une est stationnaire et l'autre est mobile, ou bien, entre deux phases mobiles en sens inverse (le cas de la chromatographie à contre-courant)

La nature de ces phases est choisie selon les composants à séparer. Généralement, la phase mobile est un fluide (liquide, gaz ou fluide supercritique), la phase stationnaire est un solide ou un liquide. La combinaison de ces variétés conduit à diverses possibilités :

- chromatographie liquide-solide
- chromatographie liquide-liquide
- chromatographie gaz-solide
- chromatographie gaz-liquide
- chromatographie supercritique

Les fluides supercritiques possèdent des propriétés à la frontière entre celles des liquides et celles des gaz.

### Classification selon le phénomène chromatographique

Selon la structure de la phase stationnaire, différentes techniques chromatographiques peuvent être distinguées :

- la chromatographie d'adsorption, lorsque la phase stationnaire est un solide.
- la chromatographie de partage, lorsque la phase stationnaire est un liquide non miscible avec la phase mobile (mis en jeu de coefficients de partage).
- la chromatographie d'échange d'ions, où la phase stationnaire porte des groupes fonctionnels acides ou basiques destinés à séparer des composés ionisés.
- la chromatographie d'exclusion, où la phase stationnaire (poreuse) se comporte comme un tamis et sépare les composés en fonction de leur taille ; on parle aussi de chromatographie de perméation de gel.

### Classification selon les instruments utilisés

Selon le conditionnement de la phase stationnaire, différents instruments peuvent être utilisés pour une implémentation chromatographique :

- **La chromatographie sur papier :**

Il s'agit d'une méthode de séparation dont le principe repose essentiellement sur des phénomènes de partage. La phase mobile est un mélange entre un solvant organique avec de l'eau ; la

phase stationnaire est constituée d'eau qui est absorbée par la cellulose du papier ou liée chimiquement à elle. L'échantillon, mis en solution, est déposé en un point repère du papier et le solvant qui se déplace par capillarité fait migrer les composants de l'échantillon à des vitesses variables selon leur solubilité.

– **La chromatographie sur couches minces :**

Cette méthode repose principalement sur des phénomènes d'absorption. La phase mobile est un solvant ou un mélange de solvant qui progresse le long d'une phase stationnaire fixée sur une plaque de verre ou sur une feuille semi-rigide de matière plastique ou d'aluminium. Après avoir déposé l'échantillon sur la phase stationnaire, les substances migrent à une vitesse qui dépend de leur nature et de celle du solvant.

– **La chromatographie sur colonne :**

C'est une technique basée sur des phénomènes d'adsorption. La phase solide, le plus souvent l'alumine ou la silice, remplit une colonne de longueur et de section variables; l'échantillon, en solution concentrée, est déposé en haut de la colonne et la séparation des composants résulte de l'écoulement continu d'un solvant, traversant la colonne par gravité ou sous l'effet d'une faible pression.

Parmi les différents types de chromatographie cités ci-dessus, nous nous intéressons à la **chromatographie d'adsorption** réalisée sur une **colonne**, car la colonne chromatographique est l'unité principale de séparation dans un lit mobile simulé.

Dans la suite, le principe de la chromatographie d'adsorption est développé ainsi que le mécanisme de séparation sur une colonne chromatographique.

## 1.2.2 Phénomènes principaux de la chromatographie d'adsorption

Dans ce type de chromatographie, la séparation est réalisée entre deux phases : une phase liquide mobile et une phase solide fixe composée généralement des billes ou des particules sphériques. La phase solide peut être aussi mobile que la phase liquide mais en sens inverse (le cas de la séparation à contre-courant). La séparation par chromatographie d'adsorption est effectuée par l'intermédiaire de deux phénomènes : **l'adsorption** et la **désorption** qui se produisent continuellement aboutissant à une séparation graduelle des produits, ces deux phénomènes sont définis dans la suite :

**l'adsorption** : est l'action d'accumulation superficielle des molécules d'un composant sur une surface solide (adsorbant). Cette accumulation est *provisoire* dans le sens où les molécules ne pénètrent pas dans la phase solide mais elles restent attachées à la surface adsorbante.

**la désorption** : est le processus d'extraction des molécules déjà adsorbées. Cette extraction est réalisée par l'intermédiaire d'un produit dit solvant ou désorbant  $D$ .

La figure (1.1) montre l'évolution de la séparation de deux composants (**A** et **B**), où le composant **A** est plus fortement retenu par la phase solide que le composant **B**. Avec l'écoulement de la phase liquide chargée de composants à séparer, la phase solide devient riche (saturée) en composant **A** (puisque'il est plus fortement retenu que le composant **B**). Cela ne permet pas au composant **B** d'être adsorbé par cette phase (le solide), ainsi,

le composant **B** est porté par la phase liquide. Notons que le composant **A** est désorbé et puis porté par le liquide seulement après avoir été adsorbé par le solide : c'est le processus de désorption. Le résultat est que le composant **B** se propage plus vite que le composant **A**, cette différence de vitesses des deux composants est la raison principale de la séparation.

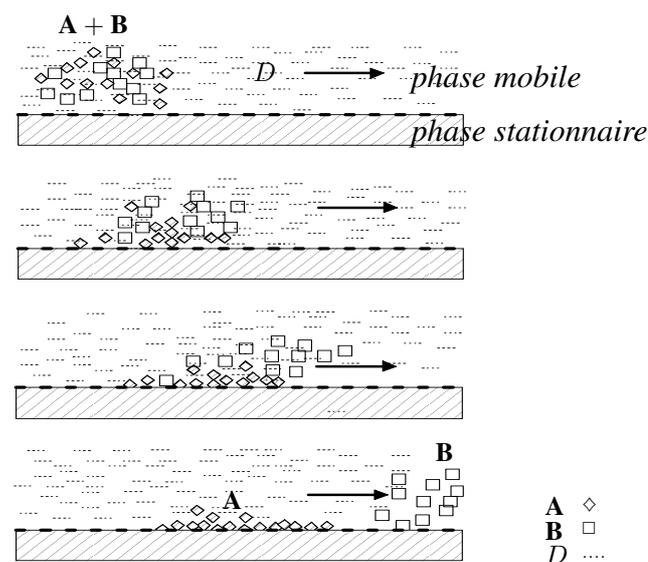


FIG. 1.1 – Séparation par chromatographie d'adsorption. Les deux composants **A** ( $\diamond$ ) et **B** ( $\square$ ) sont graduellement séparés par leur différence d'affinité d'adsorption vis-à-vis de la phase solide à l'aide du solvant  $D$ .

La distribution des concentrations des composants entre les deux phases à l'équilibre est décrite par une fonction dite isotherme décrite dans la section suivante.

### L'isotherme d'adsorption

L'équilibre entre les concentrations dans la phase liquide (le désorbant) et les concentrations dans la phase solide (l'adsorbant) est représenté par une équation appelée isotherme d'adsorption. Selon les composants à séparer, cet équilibre peut être **linéaire** ou **non linéaire**, ce qui détermine le type de la linéarité du modèle du procédé chromatographique (modèle linéaire ou modèle non linéaire). Les

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

deux types d'isotherme sont présentés par la suite [50].

### 1. Isotherme linéaire :

Un isotherme est considéré linéaire quand la concentration d'un composant dans la phase solide est une fonction linéaire de sa concentration dans la phase liquide. Pour un mélange multi-constituant l'isotherme prend la forme suivante :

$$q_i = F_i(C_A, C_B, C_C, \dots) = k_i C_i \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}, \dots\} \quad (1.1)$$

dans laquelle :

- $q_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase solide à l'équilibre.
- $C_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase liquide à l'équilibre.
- $F_i(C_A, C_B, C_C, \dots)$  : l'isotherme.
- $\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}, \dots$  : les composants existant dans le mélange.
- $k_i$  : la constante de distribution entre les deux phases (le coefficient de l'isotherme) pour le composant  $i$ .

### 2. Isotherme non linéaire :

Dans la plupart des cas, la loi de distribution des composants entre les deux phases n'est pas une fonction simple, les isothermes d'adsorption sont généralement non linéaires et peuvent être représentés par l'isotherme multi-composants de Langmuir [60] :

$$q_i = F_i(C_A, C_B, C_C, \dots) = \frac{q_{m_i} \cdot k_i \cdot C_i}{1 + \sum_{j=1}^N (k_j \cdot C_j)} \quad ; \quad (i, j) \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}, \dots\} \quad (1.2)$$

où :

- $q_{m_i}$  : la capacité maximale d'adsorption du composant  $i$  par la phase solide.
- $j$  : l'indice d'un composant.
- $N$  : le nombre total des composants existant dans le mélange.

et très rarement, celui de Freundlich :

$$q_i = F_i(C_A, C_B, C_C, \dots) = k_i \cdot C_i^{1/n} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}, \dots\} \quad (1.3)$$

où :

- $(1/n)$  : paramètre de Freundlich qui indique l'intensité d'adsorption.

L'isotherme de Langmuir est dit **compétitif** dans le sens où tous les composants existant dans la phase liquide participent à la définition du niveau d'équilibre de chacun d'entre eux. Ceci crée une compétition entre les deux composants envers la phase solide; et crée également un couplage entre les concentrations des composants à séparer, ce couplage est une source importante de difficulté en vue d'une commande d'un procédé chromatographique.

L'influence du mélange de composants sur le niveau d'équilibre est représentée dans l'équation de Langmuir (1.2) par le terme :

$$\sum_{j=1}^N (k_j \cdot C_j) \quad ; \quad (i, j) \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}, \dots\} \quad (1.4)$$

Ce terme [équation (1.4)] représente également la déviation par rapport à la linéarité. Par conséquent, un équilibre peut être considéré comme linéaire dans le cas où les concentrations sont très faibles ( $C_j \simeq 0$ ). Pour certaines séparations comme celle du sucre par exemple, un isotherme linéaire est bien admis [20].

Un isotherme est caractérisé par deux paramètres  $k$  et  $q_m$  pour chaque composant. Ces paramètres sont susceptibles de varier avec l'usure de la phase solide. L'étude de l'effet de l'incertitude paramétrique qui est présentée dans le quatrième chapitre de ce mémoire montre que le lit mobile simulé est très sensible aux variations de ces paramètres. Cependant, le problème d'optimisation paramétrique correspondant est bien conditionné si les débits sont correctement mesurés.

### 1.2.3 Modèle de la chromatographie d'adsorption sur une colonne

La colonne chromatographique est un tube de diamètre et de longueur variables, en verre, métal, ou autre substance, destinée à porter la phase solide (l'adsorbant) par ses murs intérieurs. Autrement dit, la colonne est emballée par la phase solide qui n'est qu'un assemblage de particules de quelques microns de diamètre.

La figure 1.2 montre l'évolution de la séparation de deux composants **A** et **B** dans une colonne chromatographique. Le composant **A** est plus adsorbé (plus fortement retenu) par la phase solide que le composant **B**, ceci implique que le coefficient de l'isotherme du composant **A** est supérieur à celui du composant **B** ( $k_A > k_B$ ). Ainsi, un pic de concentrations du mélange (**A+B**) est injecté à l'entrée de la colonne avec l'écoulement continu de la phase mobile chargée de composants **A** et **B** à séparer à travers la colonne. Les composants se séparent graduellement par leurs différentes vitesses de propagation dans la colonne. Le composant le plus adsorbé se propage à une vitesse inférieure à celle du composant le moins adsorbé ( $v_A < v_B$ ). Ainsi, le pic de concentration du composant **A** apparaît à la sortie de la colonne après celui du composant **B** ( $t_B < t_A$ ).

Le temps d'apparition d'un pic de concentration d'un composant  $i$  à la sortie d'une colonne chromatographique est dit le "temps de rétention du composant  $i$ ".

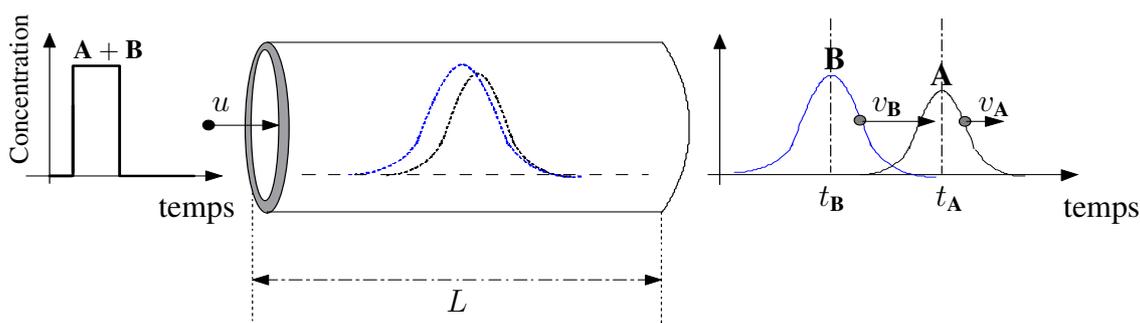


FIG. 1.2 – Un pic de concentration du mélange est injecté à l'entrée de la colonne. Les deux composants **A** et **B** se sont séparés graduellement en traversant la colonne chromatographique grâce à la différence de leurs vitesses de propagation ( $v_B > v_A$ ). Les deux pics apparaissent à la sortie de la colonne aux différents instants, ( $t_B < t_A$ ), ceci permet de récupérer les composants séparément.

Pour expliquer plus précisément le mécanisme de séparation sur une colonne chromatographique,

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

prenons le modèle suivant :

Ce modèle décrit deux phénomènes (voir chapitre 2 pour plus de détails) :

1. Bilan de masse (transport + diffusion)

$$\varepsilon \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} + (1 - \varepsilon) \frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t} = -u\varepsilon \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} + \varepsilon D_{ax} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.5)$$

2. Transfert de masse entre les phases

$$\frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t} = -3 \frac{k_{effi}}{R} \left( q_i - F_i(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x)) \right) \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.6)$$

où :

- $x$  : la coordonnée spatiale le long de la colonne [ $cm$ ].
- $F_i(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x))$  : l'isotherme du composant  $i$ .
- $C_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase liquide [ $g/cm^3$ ].
- $q_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase solide [ $g/cm^3$ ].
- $k_{effi}$  : le coefficient de transfert du composant  $i$ .
- $u$  : la vitesse de la phase liquide [ $cm/sec$ ].
- $\varepsilon$  : la porosité du lit (le rapport entre le volume du liquide et celui du solide).
- $R$  : rayon d'une particule [ $cm$ ].
- $D_{ax}$  : le coefficient de dispersion axiale du composant  $i$ .

En effet, la deuxième équation (1.6) exprime la dynamique de l'établissement de l'équilibre entre les deux phases. En supposant que cette dynamique est instantanée, (ce qui implique que la résistance au transfert entre les deux phases est négligée) l'équation (1.6) est éliminée et la concentration dans la phase solide est considérée comme étant instantanément égale à sa valeur d'équilibre, soit  $q_i(t,x) = F_i(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x))$ , ceci permet de re-écrire l'équation (1.5) en fonction des seules concentrations dans la phase liquide :

$$\varepsilon \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} + (1 - \varepsilon) \frac{\partial F_i(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x))}{\partial t} = -u\varepsilon \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} + \varepsilon D_{ax} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.7)$$

cette équation est associée aux conditions aux limites suivantes :

- La condition aux limites à gauche représente l'évolution des concentrations à l'entrée de la colonne  $C_i^{in}(t)$ , ceci est exprimé par l'équation suivante :

$$C_i(t,0) = C_i^{in}(t) \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.8)$$

- La condition aux limites à droite représente l'évolution des concentrations à la sortie de la colonne, ceci est exprimé par l'équation suivante :

$$\frac{\partial C_i(t,L)}{\partial x} = 0 \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.9)$$

Afin de ne garder que l'essentiel et d'expliquer plus simplement la principale raison de la différence des vitesses des deux composants, ajoutons à l'équation (1.7) les simplifications suivantes :

1. La diffusion est négligée ( $D_{ax} = 0$ ).

2. L'équilibre entre les concentrations dans les deux phases est exprimée par un isotherme linéaire

$$F_i(C_A(t,x), C_B(t,x)) = k_i C_i(t,x), i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}.$$

prenant en compte les deux dernières simplifications, l'équation (1.7) est simplifiée et l'équation d'onde suivante est ainsi obtenue :

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} = -v_i \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.10)$$

$$v_i = \frac{u\varepsilon}{\varepsilon + (1 - \varepsilon)k_i} , \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.11)$$

où  $v_i$  est la vitesse de propagation du composant  $i$ . Dans cette dernière équation (1.11), il apparaît clairement que les constantes d'équilibre  $k_i$  jouent le rôle principal dans la séparation. *C'est la différence entre les constantes d'équilibre (les  $k_i$ ) qui aboutit à des vitesses différentes de propagation des composants conduisant ainsi à la séparation.*

L'équation (1.11) permet également de calculer le temps d'apparition des pics à la sortie d'une colonne de longueur  $L$ , à savoir :

$$t_i = \frac{L}{v_i} ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (1.12)$$

Dans le cas où il existe une faible diffusion, cette équation (1.12) permet d'estimer approximativement le temps d'apparition des pics, ceci est montré par les simulations présentées dans la section suivante.

## 1.2.4 Simulation d'un modèle de colonne chromatographique

Dans cette section, des simulations d'un modèle de colonne chromatographique sont présentées. Leurs objectif est de montrer les aspects suivants :

- L'influence des constantes d'équilibre ( $k_i$ ,  $i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}$ ) sur le niveau de difficulté de la séparation chromatographique.
- La possibilité d'estimer le temps d'apparition des pics ( $t_i$ ) par l'équation (1.12).
- L'influence de la compétitivité entre les deux phases sur le couplage entre les concentrations de composants.

Le modèle de la colonne présenté par l'équation (1.7) est choisi pour réaliser les simulations, puisque d'un côté, ce modèle est simplifié et de l'autre côté, ce modèle inclut la diffusion. Ceci permet de voir comment l'équation (1.12) peut être utilisée pour estimer les temps d'apparition des pics en présence d'une faible diffusion.

Le modèle choisi (1.7) est simulé par le solveur des équations aux dérivées partielles (**PDE**) de **Matlab**. Dans cette simulation, les concentrations des composants à l'entrée de la colonne sont égaux ( $C_A^{in} = C_B^{in} = 0.05$  [ $g/cm^3$ ]) et les paramètres suivants sont considérés:

$$L = 50 \text{ [cm]}, k_A = 8, k_B = 2,4,7, u = 1 \text{ [cm/sec]}, \varepsilon = 0.4, D_{ax} = 0.097 \text{ [cm}^2\text{/sec]}$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

## Les résultats de simulations

Les résultats des simulations sont basés sur le modèle (1.7) et montrent les points suivants :

### 1) L'influence des constantes d'équilibre $k_i$ sur le niveau de difficulté de la séparation :

Dans cette partie de simulation, le modèle (1.7) est simulé en utilisant un isotherme linéaire [équation (1.1)]. Les figures 1.4, 1.5, 1.6 montrent deux pics qui représentent l'évolution temporelle des concentrations des deux composants **A** et **B** à la sortie de la colonne. Cette évolution est une réponse à une injection de concentrations à l'entrée de la colonne ( $C_A^{in} = C_B^{in} = 0.05 \text{ [g/cm}^3\text{]}$ ) représenté sur la figure 1.3.

Les figures 1.4, 1.5, 1.6, montrent des différentes réponses en fonction de différentes constantes d'équilibre du composant **B** qui prennent les valeurs ( $k_B = 7,4,2$ ), alors que la constante d'équilibre du composant **A** ( $k_A = 8$ ) est gardée constante. Remarquons que, quand la valeur numérique de la constante d'équilibre du composant **B** est plus proche de celle du composant **A**, les ondes des concentrations de deux composants deviennent plus proches et la séparation est plus difficile.

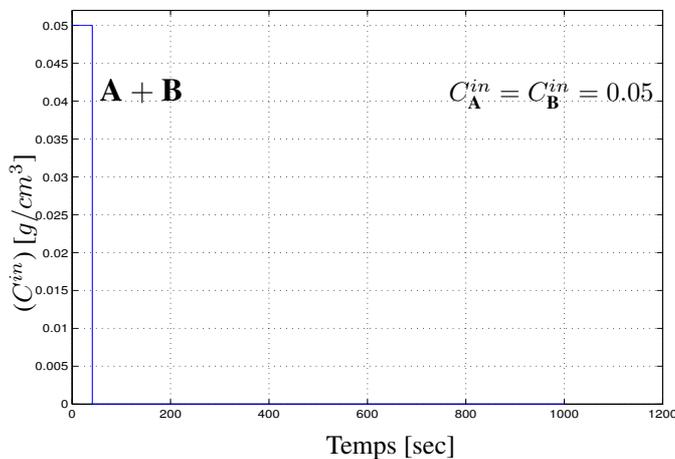


FIG. 1.3 – Une injection de deux composants à l'entrée de la colonne avec les concentrations ( $C_A^{in} = C_B^{in} = 0.05 \text{ [g/cm}^3\text{]}$ ).

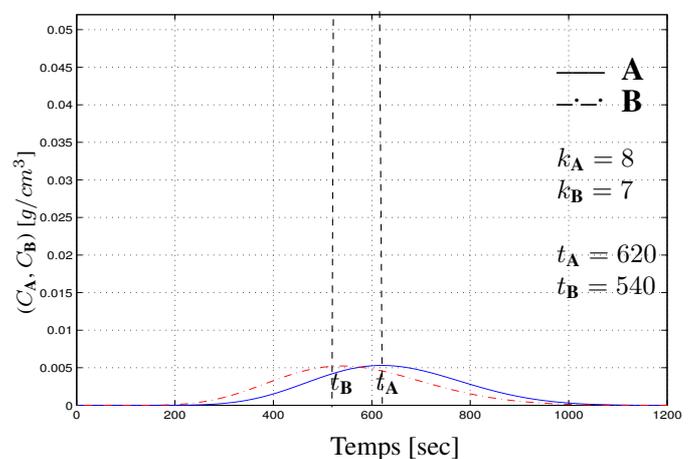


FIG. 1.4 – Les deux composants à la sortie de la colonne en réponse à l'injection (figure 1.3), dans le cas ( $k_A = 8, k_B = 7$ )

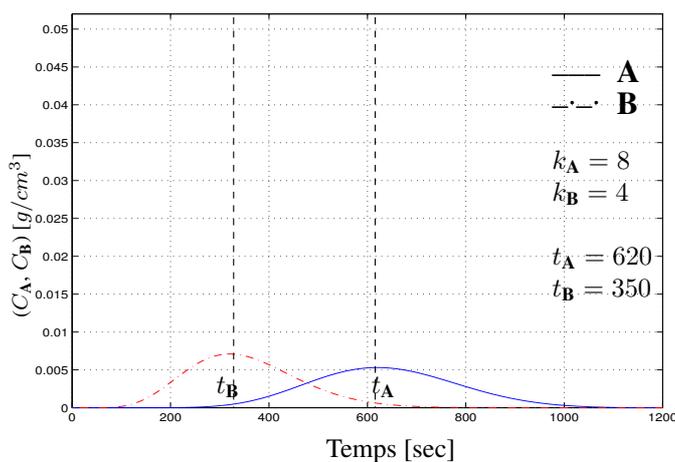


FIG. 1.5 – Les deux composants à la sortie de la colonne en réponse à l'injection (figure 1.3), dans le cas ( $k_A = 8, k_B = 4$ )

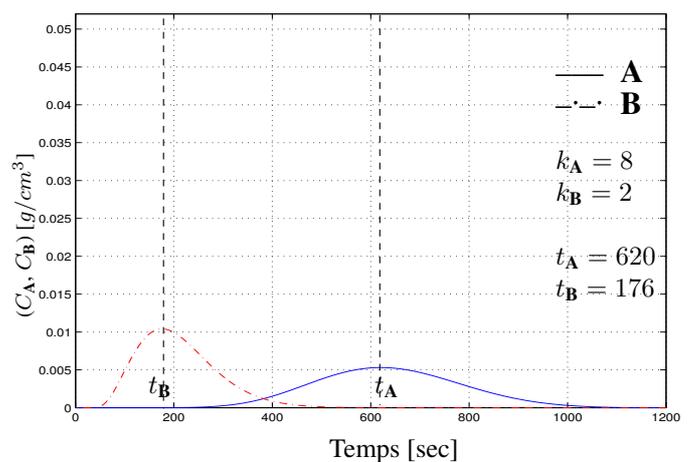


FIG. 1.6 – Les deux composants à la sortie de la colonne en réponse à l'injection (figure 1.3), dans le cas ( $k_A = 8, k_B = 2$ )

### 2) L'estimation du temps d'apparition des pics de concentration

L'objectif de cette simulation est de comparer les temps d'apparition des pics de concentration estimés par l'équation (1.12) avec ceux issus de la simulation du modèle (1.7). Le tableau 1.1, montre que les valeurs estimées et les valeurs lues sur les figures 1.4, 1.5, 1.6 sont proches. La différence est due à l'influence de la diffusion.

Les valeurs calculées par l'équation (1.12)	Les valeurs issues de la simulation du modèle (1.7) lues sur les figures 1.4, 1.5, 1.6
$t_A = 650$ [sec]	$t_A = 620$ [sec]
$t_B = 575$ [sec]	$t_B = 540$ [sec]
$t_B = 350$ [sec]	$t_B = 320$ [sec]
$t_B = 200$ [sec]	$t_B = 176$ [sec]

TAB. 1.1 – Comparaison entre le temps d'apparition des pics estimés par l'équation (1.12) et celui issu de la simulation du modèle (1.7), lus sur les figures 1.4, 1.5, 1.6.

### 3) L'influence de la compétitivité sur le couplage entre les concentrations des composants

Dans cette section, l'effet de la compétitivité sur le couplage entre les concentrations des composants est montré de deux façons. La première consiste à changer la constante d'équilibre d'un des deux composants puis de comparer l'influence de ce changement sur la concentration de l'autre composant dans les cas compétitif et non compétitif. La deuxième façon est similaire à la première, mais ici la concentration d'injection d'un des deux composants est changée à la place de la constante d'équilibre.

#### L'influence de la compétitivité sur le couplage entre les concentrations des composants en changeant la constante d'équilibre d'un composant

Les figures 1.7 et 1.8, montrent que dans le cas où l'isotherme considéré est non compétitif [équation (1.1)], le changement de la constante d'équilibre du composant **B** de  $k_B = 7$  (figure 1.7) à  $k_B = 2$  (figure 1.8) ne change ni la position, ni la forme du pic de concentration du composant **A** ni son temps de rétention ( $t_A = 620$  [sec]). Ceci indique que les évolutions de concentrations des deux composants sont découplées.

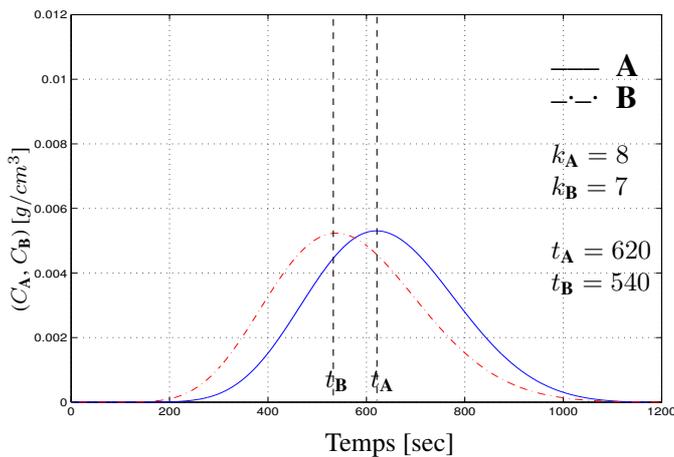


FIG. 1.7 – Les deux composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $k_A = 8, k_B = 7$ ) en considérant un isotherme linéaire non compétitif.

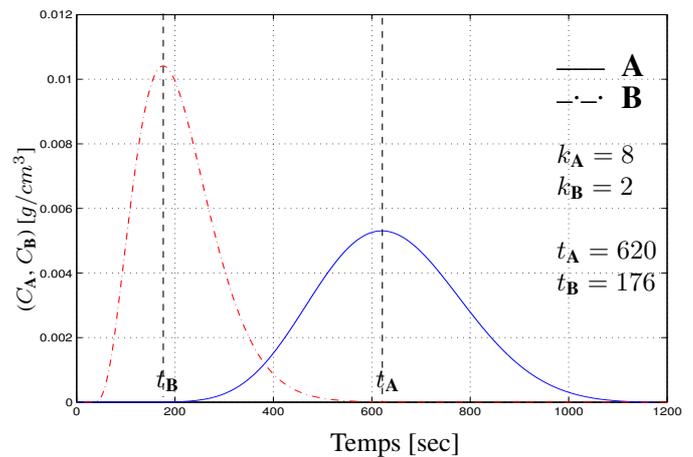


FIG. 1.8 – Les deux composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $k_A = 8, k_B = 2$ ) en considérant un isotherme linéaire non compétitif.

Sur les figures 1.9 et 1.10, les mêmes simulations que celles présentées sur les figures 1.7 et 1.8 sont répétées mais en considérant l'isotherme de Langmuir [équation (1.2)]. Dans ce cas, il est clair que le pic du composant **A** subit des modifications quand la constante d'équilibre du composant **B** varie de  $k_B = 7$  (figure 1.9) à  $k_B = 2$  (figure 1.10). Ainsi, le temps de rétention du composant **A** change de  $t_A = 456$  [sec] à  $t_A = 520$  [sec]; ce qui indique que la présence de la combativité entre les deux phases introduit un couplage entre les concentrations des composants existants dans un mélange.

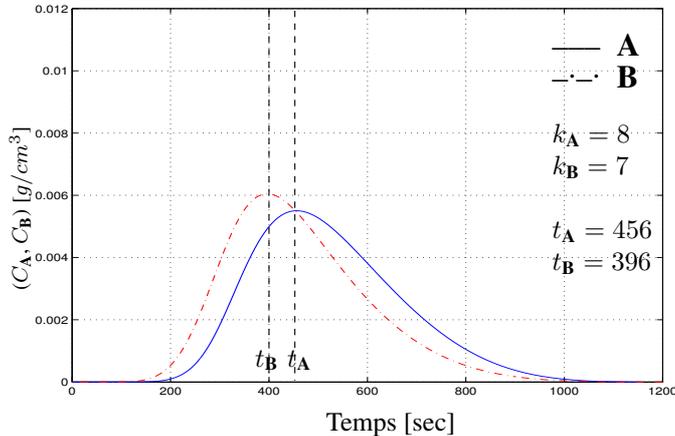


FIG. 1.9 – Les deux composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $k_A = 8$ ,  $k_B = 7$ ) en considérant l'isotherme compétitif de Langmuir.

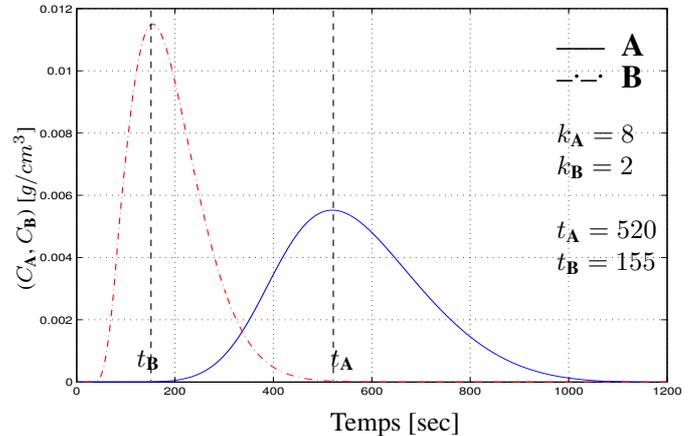


FIG. 1.10 – Les deux composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $k_A = 8$ ,  $k_B = 2$ ) en considérant l'isotherme compétitif de Langmuir.

### L'influence de la compétitivité sur le couplage entre les concentrations des composants en changeant la concentration d'injection d'un composant

Dans cette simulation, la concentration d'injection d'un composant varie pour tester l'influence de la compétitivité. Ainsi les figures 1.11, 1.12 montrent que dans le cas où l'isotherme considéré est non compétitif [équation (1.1)], l'augmentation de la concentration d'injection du composant **B** de  $C_B^{in} = 0.05$  [g/cm<sup>3</sup>] (figures 1.11) à  $C_B^{in} = 0.25$  [g/cm<sup>3</sup>] (figures 1.12) ne change ni la position, ni la forme du pic de concentration du composant **A** ni son temps de rétention ( $t_A = 620$  [sec]). Ceci indique que les évolutions de concentrations des deux composants sont découplées.

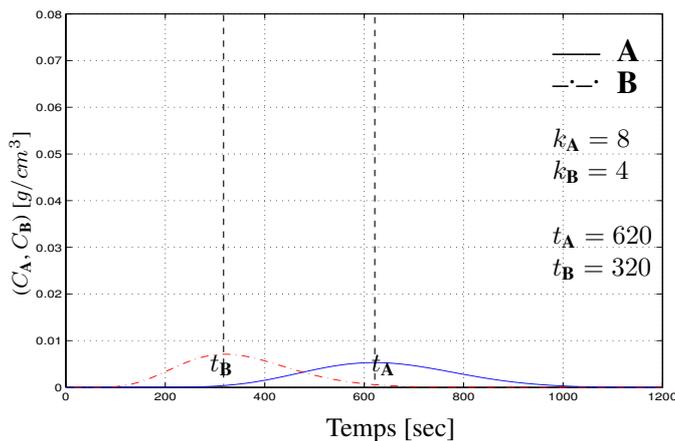


FIG. 1.11 – Les composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $C_A^{in} = 0.05$  [g/cm<sup>3</sup>],  $C_B^{in} = 0.05$  [g/cm<sup>3</sup>]) en considérant un isotherme linéaire non compétitif.

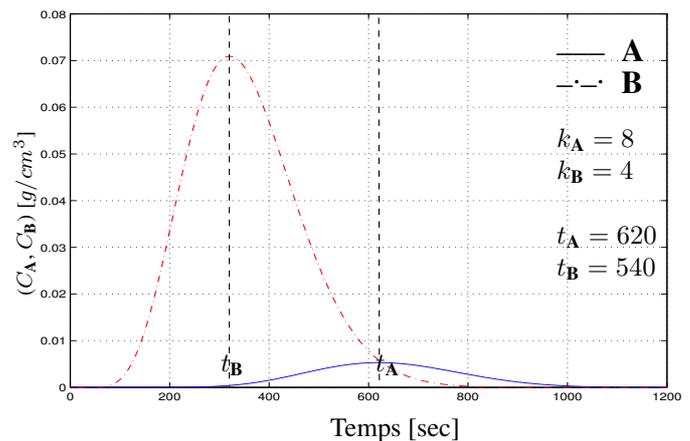


FIG. 1.12 – Les composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $C_A^{in} = 0.05$  [g/cm<sup>3</sup>],  $C_B^{in} = 0.25$  [g/cm<sup>3</sup>]) en considérant un isotherme linéaire non compétitif.

Sur les figures 1.14, 1.13, les mêmes simulations que celles présentées sur les figures 1.12, 1.11 sont répétées mais en considérant l'isotherme compétitif de Langmuir [équation (1.2)]. Dans ce cas, il est clair que le pic du composant **A** subit des changements quand la concentration d'injection du composant **B** augmente de  $C_B^{in} = 0.05 [g/cm^3]$  (figures 1.13) à  $C_B^{in} = 0.25 [g/cm^3]$  (figures 1.14). Ainsi, le temps de rétention du composant **A** change de  $t_A = 504 [sec]$  à  $t_A = 398 [sec]$ ; ce qui indique que la présence de la compétitivité entre les deux phases introduit un couplage entre les concentrations des composants existants dans un mélange.

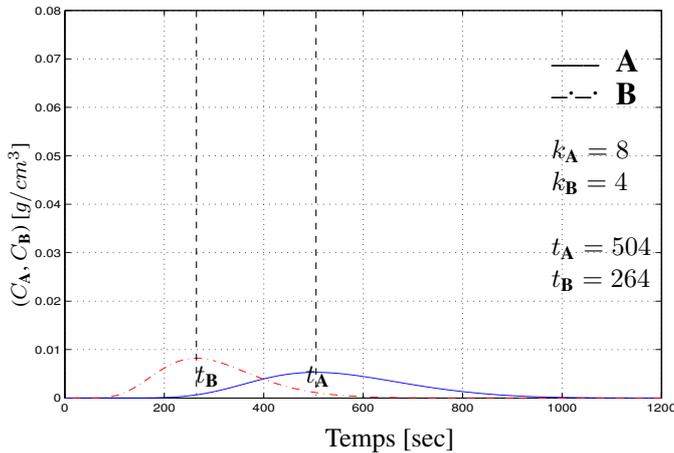


FIG. 1.13 – Les composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $C_A^{in} = 0.05 [g/cm^3]$ ,  $C_B^{in} = 0.05 [g/cm^3]$ ) en considérant l'isotherme compétitif de Langmuir.

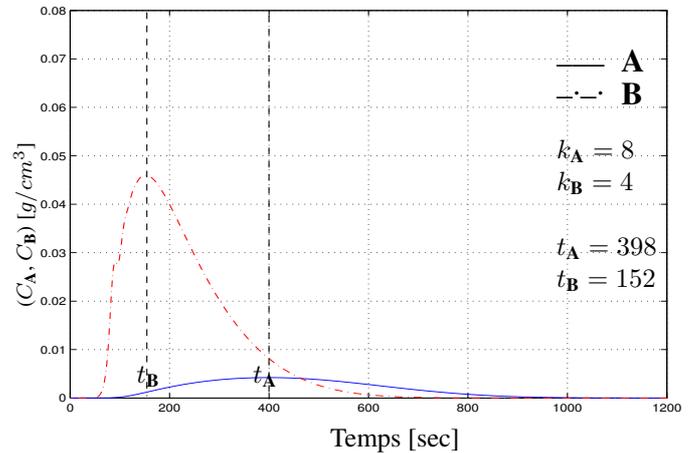


FIG. 1.14 – Les composants à la sortie de la colonne dans le cas ( $C_A^{in} = 0.05 [g/cm^3]$ ,  $C_B^{in} = 0.25 [g/cm^3]$ ) en considérant l'isotherme compétitif de Langmuir.

### 1.3 Applications de la chromatographie sur une colonne

La chromatographie sur une colonne peut être réalisée de deux manières, chromatographie sur un lit fixe ou chromatographie sur un lit mobile. Cette dernière est appelée chromatographie à contre-courant puisque le lit (la phase solide) circule en sens inverse par rapport à la phase liquide. Les deux manières de réaliser la chromatographie sur une colonne sont expliquées par ce qui suit.

#### 1.3.1 La chromatographie sur un lit fixe

Ce type de séparation est connu sous le nom de *Batch* dans lequel la phase solide est fixe et le mécanisme de séparation est comparable à celui d'une colonne. Mais cette méthode de séparation possède les inconvénients suivants :

- dans le cas où les composants à séparer ont des propriétés physiques proches, -ceci implique que les valeurs numériques de leur constante d'isotherme ( $k_i$ ) sont proches- cette méthode est de qualité modérée.
- l'opération de séparation n'est pas continue puisqu'elle est interrompue à chaque chargement du mélange : ce qui induit une perte de temps.

En raison de ces inconvénients, des améliorations ont conduit au remplacement du lit fixe par le lit mobile. Dans ce cas, la phase solide bouge en sens inverse par rapport à la phase liquide (**séparation à contre-courant**). Cette dernière augmente considérablement le pouvoir de séparation et réduit la consommation du désorbant. La séparation en contre-courant est l'objet de la section suivante.

### 1.3.2 La chromatographie à contre-courant

Cette méthode consiste à faire circuler en sens inverse -d'où le nom de la chromatographie à contre courant- la phase solide (l'adsorbant) et la phase liquide (le désorbant). À la différence de la séparation sur un lit fixe, cette procédure est continue dans le sens où les opérations de séparation ne s'interrompent pas pour re-injecter la charge fluide ou renouveler le solvant. En raison de la double circulation, un brassage intense se produit ce qui facilite significativement la séparation. La figure (1.15) montre une comparaison entre la séparation sur un lit fixe et la séparation à contre-courant où la phase solide bouge à une vitesse  $v_s$ . Dans ce cas, les vitesses de propagation résultantes ont des signes opposés, ceci augmente la capacité à distinguer les pics, et facilite considérablement la séparation.

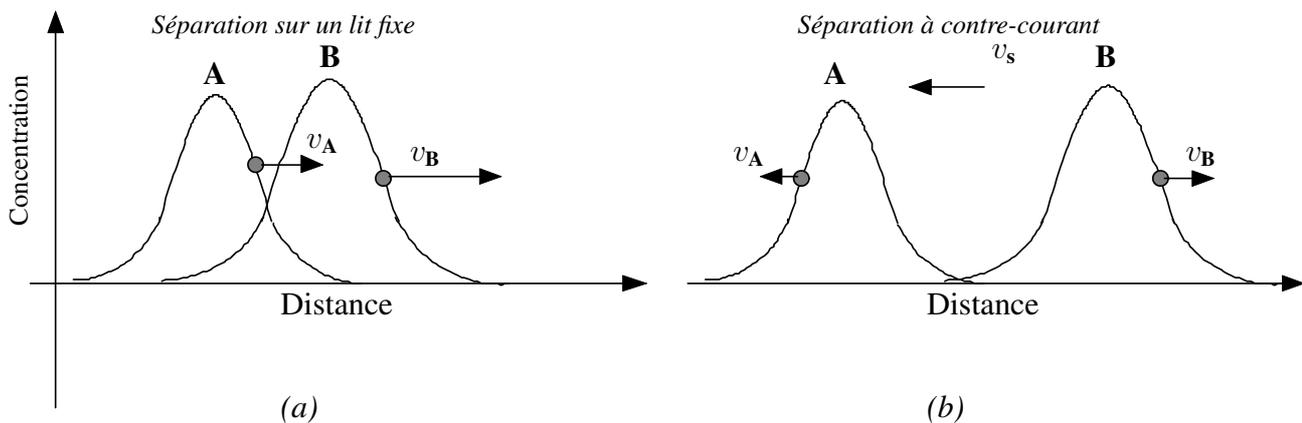


FIG. 1.15 – a) Chromatographie où la phase solide est fixe. b) chromatographie à contre-courant où les deux phases sont mobiles en sens inverse (les deux pics sont plus distingués et le pouvoir de séparation est augmenté).

Le principe de la séparation chromatographique à contre-courant est appliqué dans un procédé imaginaire (idéal) dit le lit mobile vrai qui est l'objet la section suivante. Anticipons sur la suite de ce chapitre pour souligner que le lit mobile simulé est la réalisation technique du procédé idéal.

## 1.4 Le lit mobile vrai

Le lit mobile vrai est un procédé de séparation chromatographique à contre-courant dans lequel la phase solide est aussi mobile que la phase liquide en sens inverse. Toutefois, le concept du lit mobile vrai reste idéal puisque la mobilité de la phase solide n'est pas réalisable en pratique pour des raisons techniques, cette mobilité est approchée (simulée) par la technologie du lit mobile simulé. Néanmoins, l'étude du fonctionnement du lit mobile vrai permet de mieux comprendre celui du lit mobile simulé, c'est la raison pour laquelle le lit mobile vrai est présenté dans la section suivante.

### 1.4.1 Description du lit mobile vrai

Ce procédé est constitué d'une colonne chromatographique divisée en quatre sections (zones) distinctes. Ces sections sont définies par leur emplacement par rapport aux robinets d'injection et de

soutirage, comme le montre la figure 1.16. Les robinets et les sections sont définis par la suite.

#### **Définition des robinets d'injection :**

1. **l'alimentation** : le robinet d'alimentation permet d'injecter le mélange des composants à séparer (**A + B**).
2. **le désorption** : le robinet de désorption permet de fournir le désorbant (le solvant). Le désorbant est utilisé pour nettoyer la phase solide (l'adsorbant) en désorbant les composants déjà adsorbés par cette phase. Notons que ce désorbant est très coûteux, donc une stratégie d'optimisation doit être adoptée pour réduire sa consommation tout en réalisant la pureté désirée.

#### **Définition des robinets de soutirage :**

1. **l'extraction** : le robinet d'extraction est l'endroit où le composant le plus adsorbé (**A**) par la phase solide est collecté.
2. **le raffinage** : le robinet de raffinage permet de collecter l'autre composant (**B**) qui est moins adsorbé par la phase solide.

#### **Définition des sections**

Les sections sont similaires dans leur structure physique mais la distribution des robinets entre les sections, les vitesses d'écoulement opposées de deux phases (solide et liquide) et la différence de constante d'équilibre de deux composants **A** et **B** font que chaque section joue un rôle différent (une *fonction* différente) dans le processus de séparation qui est expliqué dans la section 1.4.2.

Ainsi, le concept de section est plutôt *fonctionnel* et les sections sont définies par leur positionnement par rapport aux robinets, à savoir :

1. la section fonctionnelle I est située entre le robinet de la désorption et celui de l'extraction, son rôle est de désorber le composant **A**.
2. la section fonctionnelle II est située entre le robinet de l'extraction et celui de l'alimentation, son rôle est de désorber le composant **B**.
3. la section fonctionnelle III est située entre le robinet de l'alimentation et celui du raffinage, son rôle est d'adsorber le composant **A**.
4. la section fonctionnelle IV est située entre le robinet du raffinage et celui de la désorption, son rôle est d'adsorber le composant **B**.

### **1.4.2 Le mécanisme de séparation dans le lit mobile vrai**

Comme il a été mentionné dans la section 1.2.3, le principe de séparation est essentiellement basé sur la différence des vitesses de propagation des concentrations des ondes des composants à séparer. Ce principe est également à la base de la séparation dans le lit mobile vrai. Ici, chaque section joue un rôle particulier dans la séparation pour que les ondes se positionnent de telle sorte qu'un composant soit majoritaire dans le raffinage et l'autre soit majoritaire dans l'extraction. Les différents rôles des sections et le processus qui aboutit à la séparation sont présentés par la suite.

Supposons un adsorbant solide circulant du haut en bas du lit et un désorbant liquide circulant du bas vers le haut (voir figure 1.16). Considérons le cas où l'on cherche à séparer deux composants **A** et **B** et supposons que le constituant **A** est plus fortement retenu par l'adsorbant que le constituant **B**. La charge (**A+B**) est injectée au milieu du lit et le désorbant (*D*) est injecté en bas de celui-ci. La phase liquide (notée *L* sur la figure) entraîne le mélange injecté vers le haut du lit alors que le solide (noté *S* sur la figure) circule de haut en bas du lit.

La séparation se passe principalement dans les sections centrales (II et III) [21]. En injectant la charge (**A+B**), le composant **A** est tout de suite pris par le solide dans la section II (parce qu'il est le plus adsorbé), ce qu'ici, compte tenu de la compétition, ne permet que d'adsorber une très faible quantité du composant **B** puisque le solide est déjà (majoritairement) saturé en composant **A**. Par conséquent le composant **B** est (majoritairement) pris par le liquide vers la section III avec ce qui n'est pas adsorbé du composant **A** (une très faible quantité également).

Le composant **B** porté par le liquide quittant la section III vers la section IV est adsorbé par le solide dans cette section (puisque le composant **A** ne s'y trouve pas) et conduit vers la sortie du raffinage pour être collecté. Le liquide est donc renouvelé après avoir été débarrassé du composant **B** et réinjecté en bas du lit pour être réutiliser. Symétriquement, le composant **A** porté par le solide quittant la section II vers la section I est désorbé par le liquide dans cette section et conduit vers la sortie de l'extraction pour être récolté. Le solide est donc renouvelé après avoir été débarrassé du composant **A** et ré-circulé en haut du lit.

La faible quantité du composant **A** amenée par le liquide dans la section III est retournée par le solide vers la section I pour être désorbée et conduite vers l'extraction. De même, la faible quantité du composant **B** adsorbée par le solide dans la section II est retournée par le liquide vers la

section IV pour être adsorbée et amenée vers le raffinage.

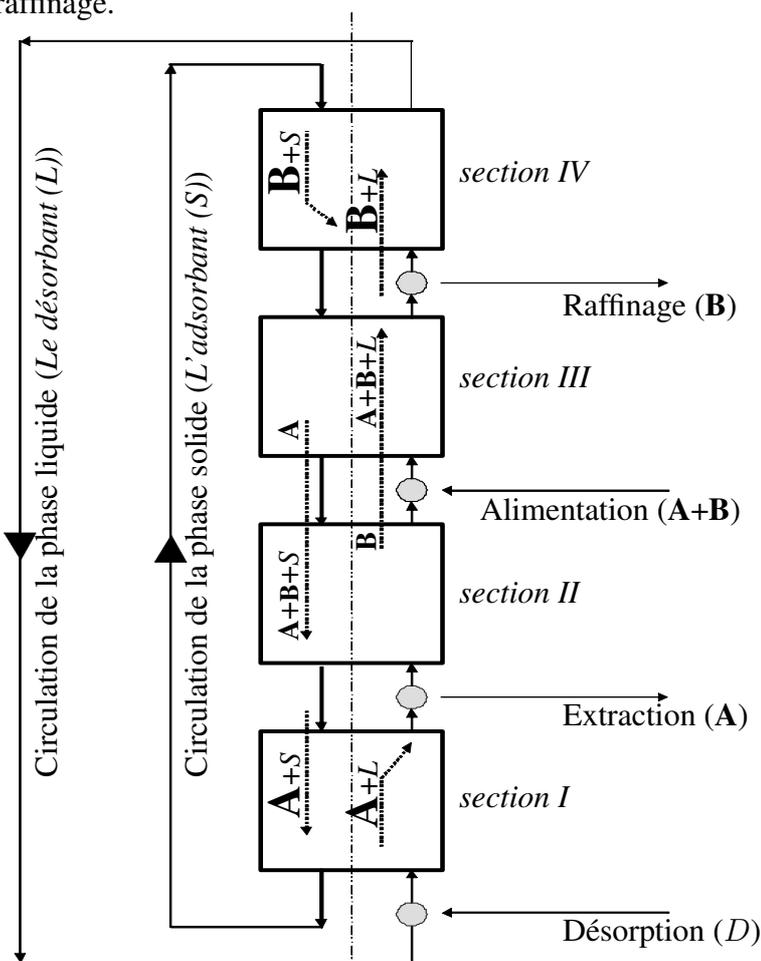


FIG. 1.16 – Schéma de principe du lit mobile vrai pour séparer deux composants **A** et **B**. Chaque section joue un rôle spécial dans la séparation. Le composant **A** est adsorbé par la phase solide dans la section III et désorbé par la phase liquide dans la section I puis il est conduit vers l'extraction, alors que le composant **B** est désorbé par la phase liquide dans la section II et adsorbé par la phase solide dans la section IV puis il est guidé vers le raffinage.

Il est très important de mentionner que le mécanisme de séparation ainsi expliqué n'est efficace que si les débits de la phase liquide dans les sections et celui de la phase solide, ainsi que les dimensions du procédé sont correctement choisis. Ceci rentre dans le cadre de la conception du procédé, ce qui est détaillé dans le chapitre 3.

## 1.5 Le Lit Mobile Simulé

Le mécanisme de séparation dans le lit mobile vrai décrit dans la section 1.4.2 est le même que celui qui a lieu dans le lit mobile simulé. En effet, le lit mobile simulé ne consiste qu'en une réalisation technique du lit mobile vrai puisque la mobilité de la phase solide n'est pas facilement réalisable en pratique. Pour réaliser la mobilité de la phase solide dans le lit mobile simulé, les robinets d'injection et de soutirage sont déplacés (commutés) périodiquement dans le sens de l'écoulement du fluide. En effet, dans le lit mobile simulé, chaque section est constituée d'une colonne chromatographique ou plus généralement, de plusieurs colonnes chromatographiques. Dans le cas où il y a plusieurs colonnes chromatographiques par section (voir figure 1.17), les robinets sont déplacés d'une colonne par commutation.

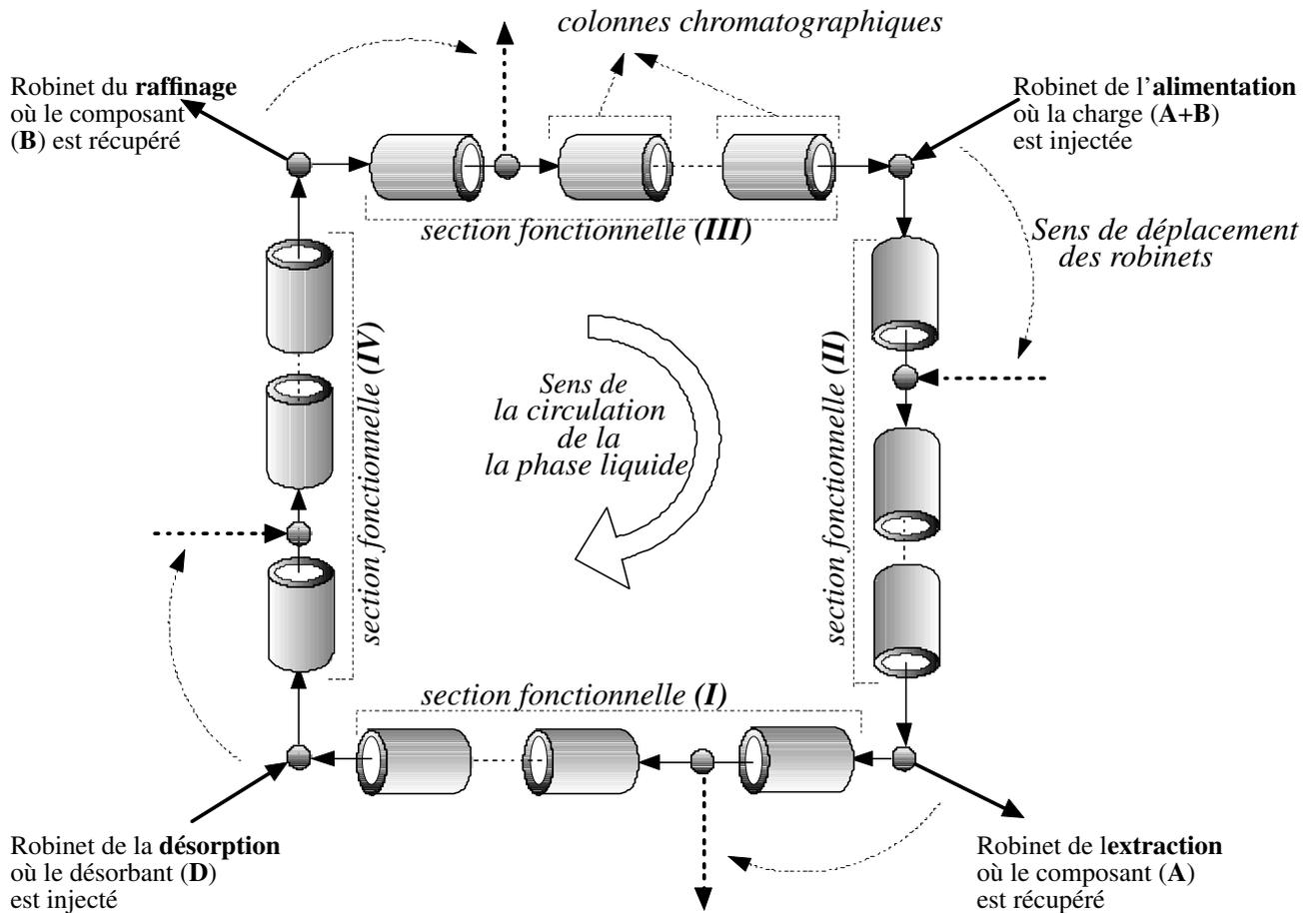


FIG. 1.17 – Schéma du principe d'un lit mobile simulé, le procédé est constitué de 4 sections fonctionnelles délimitées par 4 robinets (de désorption, d'extraction, d'alimentation et de raffinage), chaque section fonctionnelle est constituée de trois colonnes chromatographiques et placée entre deux robinets (par exemple, la section fonctionnelle I est située entre le robinet de la désorption et le robinet d'extraction). Les robinets sont déplacés d'une colonne par commutation, les flèches discontinues indiquent les nouvelles positions des robinets après une commutation, les sections fonctionnelles se déplacent donc par définition simultanément avec les robinets (figure 1.18)

À la limite, pour un nombre infini de colonnes et pour une période de commutation infiniment

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

courte, on peut converger vers le lit mobile vrai dans lequel la vitesse de la phase solide est donnée par :

$$v_s = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{L_N}{\mathcal{T}_{sw,N}}; \quad L_N < L_{N+1} \quad ; \quad \mathcal{T}_{sw,N} < \mathcal{T}_{sw,N+1}$$

où  $\mathcal{T}_{sw,N}$  est la période nécessaire pour que les robinets se déplacent d'une colonne de longueur  $L_N$  à une vitesse  $v_s$ . La période  $\mathcal{T}_{sw,N}$  représente la période de commutation des robinets.

Il est évident que dans le lit mobile simulé, les sections - d'après leur définition fonctionnelle- se déplacent simultanément avec les robinets. Ceci est présenté dans la figure 1.18 qui montre un schéma d'un lit mobile simulé où les robinets sont déplacés d'une colonne à partir du schéma de la figure 1.17 résultant d'un déplacement des sections fonctionnelles.

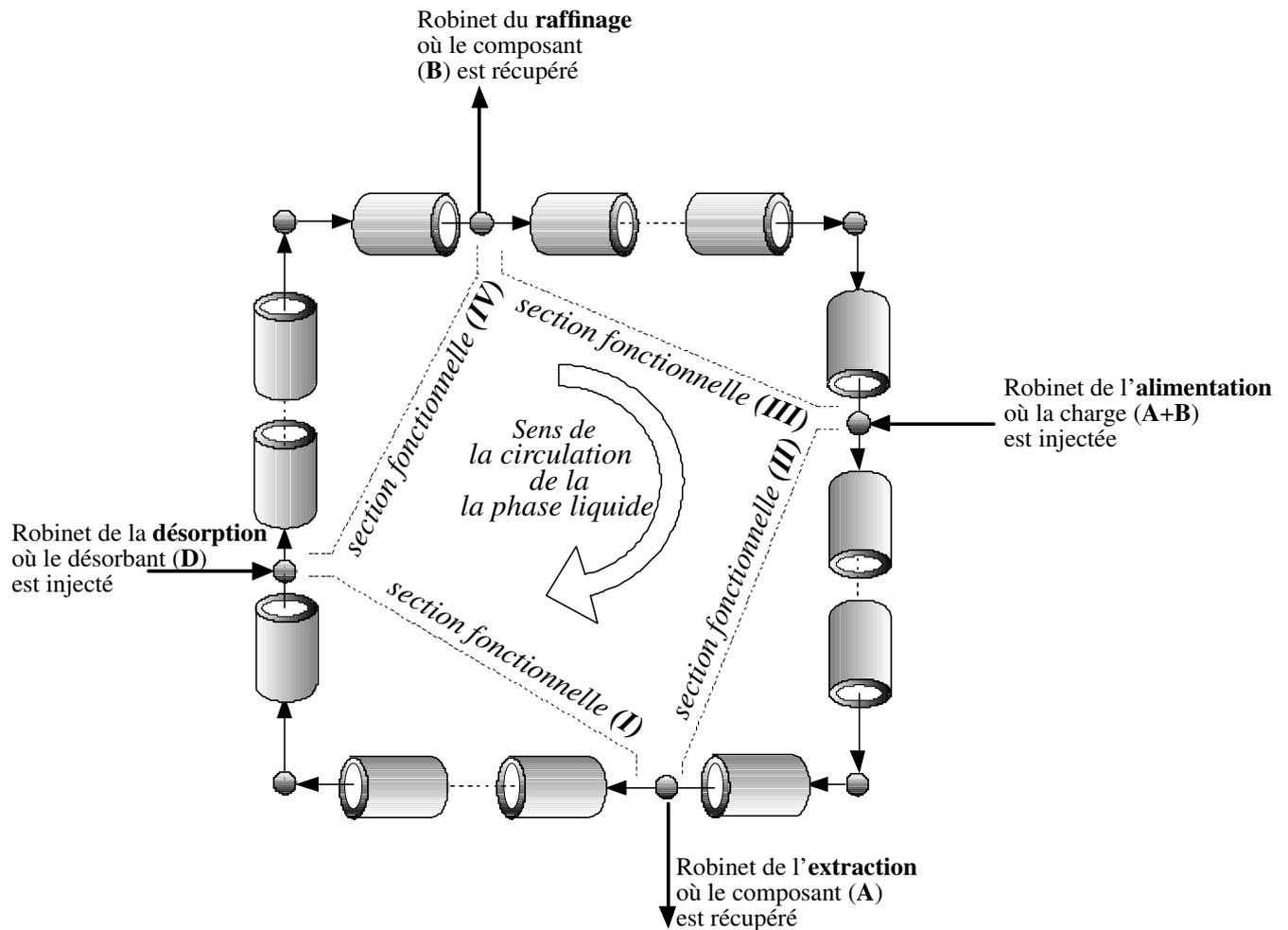


FIG. 1.18 – Schéma du principe d'un lit mobile simulé. Ce schéma montre le procédé après une commutation à partir du schéma de la figure 1.17. Les robinets sont déplacés d'une colonne dans le sens de la circulation du liquide résultant d'un déplacement des sections

Les sections fonctionnelles dans le lit mobile simulé sont connectées par les nœuds où les robinets sont installés, les équations qui représentent cette connexion sont abordées dans la section suivante.

### 1.5.1 La connexion des sections dans le lit mobile simulé

La connexion entre les sections fonctionnelles dans le lit mobile simulé est représentée par les équations du bilan de matière calculé à chaque nœud. La figure 1.19 représente schématiquement un lit mobile simulé constitué d'une colonne par section. Les débits volumiques internes dans les sections sont notés par  $Q^{(I)}, Q^{(II)}, Q^{(III)}, Q^{(IV)}$ , les débits externes (le débit de désorption, le débit d'extraction, le débit d'alimentation et le débit de raffinage) sont respectivement notés par  $Q_D, Q_{Ext}, Q_F$  et  $Q_{Raf}$ .

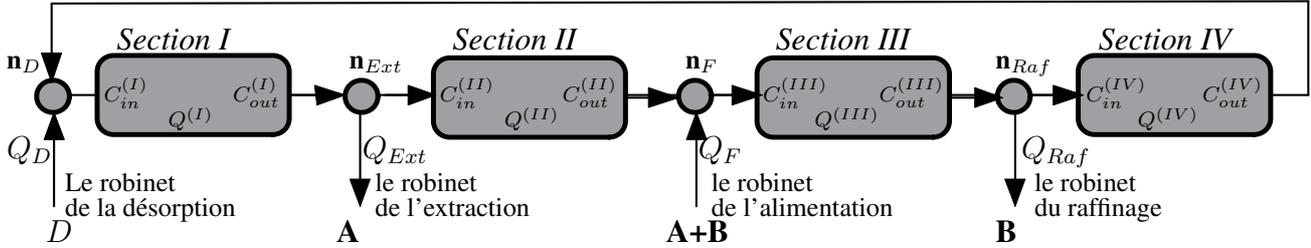


FIG. 1.19 – Représentation schématique du lit mobile simulé montrant la connexion des sections. La connexion est représentée par le bilan de matière dans les nœuds, à savoir : le nœud de désorption ( $n_D$ ), le nœud d'extraction ( $n_{Ext}$ ), le nœud d'alimentation ( $n_F$ ), le nœud de raffinage ( $n_{Raf}$ ).

Les sections sont connectées par les nœuds ( $n_D, n_{Ext}, n_F, n_{Raf}$ )

dans lesquelles le bilan est représenté par les équations algébriques suivantes [20], à savoir :

– le nœud de désorption ( $n_D$ ) :

$$Q_D = Q^{(I)} - Q^{(IV)} \quad (1.13)$$

$$C_{in}^{(I)} = \frac{Q^{(IV)}}{Q^{(IV)} + Q_D} C_{out}^{(IV)} \quad (1.14)$$

– le nœud d'extraction ( $n_{Ext}$ ) :

$$Q_{Ext} = Q^{(I)} - Q^{(II)} \quad (1.15)$$

$$C_{in}^{(II)} = C_{out}^{(I)} \quad (1.16)$$

– le nœud d'alimentation ( $n_F$ ) :

$$Q_F = Q^{(III)} - Q^{(II)} \quad (1.17)$$

$$C_{in}^{(III)} = \frac{Q^{(II)}}{Q^{(II)} + Q_F} C_{out}^{(II)} + \frac{Q_F}{Q^{(II)} + Q_F} C_F \quad (1.18)$$

– le nœud de raffinage ( $n_{Raf}$ ) :

$$Q_R = Q^{(III)} - Q^{(IV)} \quad (1.19)$$

$$C_{in}^{(IV)} = C_{out}^{(III)} \quad (1.20)$$

dans ces équations :

–  $Q_D, Q_{Ext}, Q_F$  et  $Q_R$  : correspondent respectivement aux débits volumiques [ $cm^3/sec$ ] du fluide dans la désorption, l'extraction, l'alimentation et le raffinage.

–  $Q^{(j)}$  : le débit volumique [ $cm^3/sec$ ] du fluide dans une section  $j$ , où  $j \in \{I, II, III, IV\}$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

- $C_{in}^{(j)}$  : la concentration  $[g/cm^3]$  à l'entrée d'une section  $j$ , où  $j \in \{I, II, III, IV\}$ .
- $C_{out}^{(j)}$  : la concentration  $[g/cm^3]$  à la sortie d'une section  $j$ , où  $j \in \{I, II, III, IV\}$

La figure 1.20 montre que le concept d'une section dans le lit mobile simulé peut être géométrique, c'est le cas où une section est vue comme un ensemble de colonnes géographiquement déterminées. Ainsi, les sections géométriques (A, B, C, D) sont fixes, à la différence des sections fonctionnelles qui se déplacent avec les commutations des robinets.

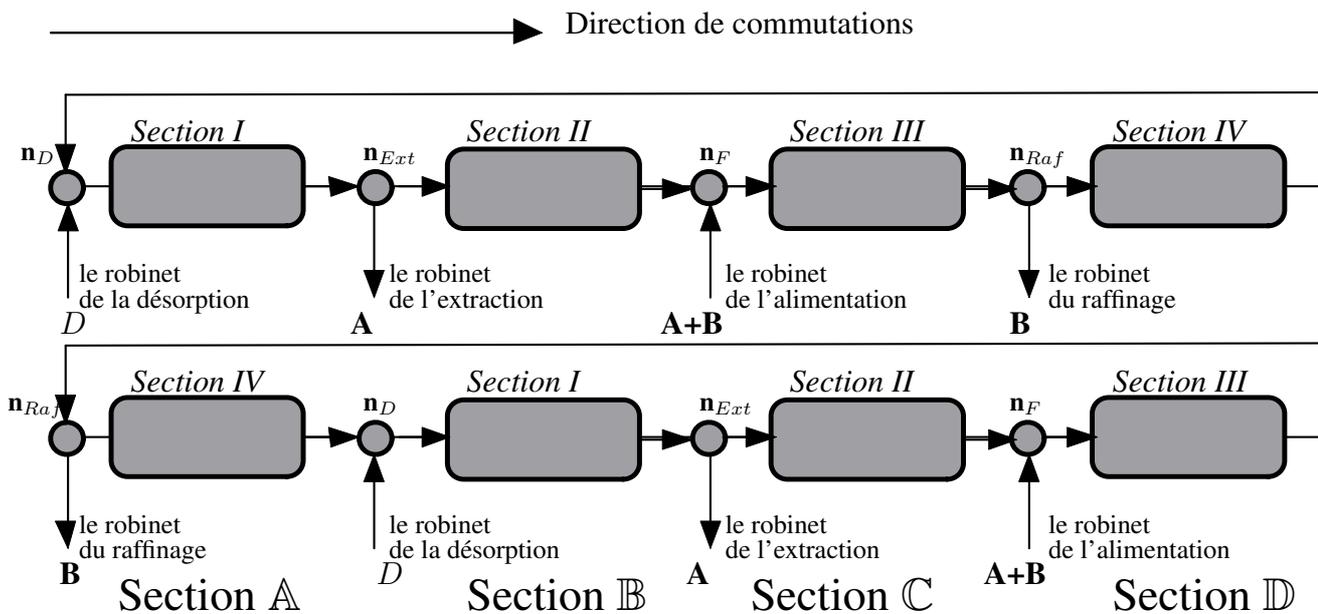


FIG. 1.20 – Représentation schématique du lit mobile simulé. Les sections géométriques (A, B, C, D) sont fixes et ne se déplacent pas avec les commutations successives

## 1.6 Fonctionnement du lit mobile simulé

Les commutations périodiques des robinets dans le lit mobile simulé font que ce procédé fonctionne en régime cyclique, ainsi le procédé n'a pas de régime stationnaire ponctuel mais un régime stationnaire cyclique. Afin de mieux comprendre le comportement dynamique du procédé, des simulations sont présentées par la suite dans lesquelles les profils des concentrations sont tracés dans le temps puis dans l'espace. Une distinction est apportée entre les profils des concentrations issus d'une section fonctionnelle ou d'une section géométrique.

Dans cet exemple de simulation, chaque section est composée de deux colonnes, soit un total de huit colonnes. Chaque colonne est modélisée par une série de mélangeurs en cascade parfaitement agités. En effet, cette méthode de modélisation qui consiste à discrétiser la colonne est issue d'une approximation considérant qu'une colonne peut être approchée par une série de cellules (mélangeurs) parfaitement agitées. La hauteur d'un mélangeur est suffisamment petite pour qu'un équilibre entre les deux phases soit presque instantanément établi. Cette modélisation est basée sur la théorie dite théorie des plateaux qui est présentée en détails dans le chapitre 2. Ainsi, le nombre de mélangeurs considérés dans une colonne est égal à 20, le reste des paramètres utilisés dans la simulation est présenté dans le tableau 1.2.

Débit de désorption	$Q_D = 106.44 [cm^3/sec]$
Débit d'extraction	$Q_{Ext} = 75.14 [cm^3/sec]$
Débit d'alimentation	$Q_F = 5.62 [cm^3/sec]$
Débit de raffinage	$Q_{Raf} = 36.92 [cm^3/sec]$
Débit de recyclage	$Q_{IV} = 103.56 [cm^3/sec]$
Période de commutation	$t_{sw} = 30 [sec]$
Longueur d'une colonne	$L = 50 [cm]$
Constante de Langmuir pour le composant <b>A</b>	$k_A = 2 [cm^3/g]$
Constante de Langmuir pour le composant <b>B</b>	$k_B = 1.5 [cm^3/g]$
Capacité maximale d'adsorption	$q_{mA} = q_{mB} = 5 [g/cm^3]$
Concentration dans l'alimentation	$C_{FA} = C_{FB} = 5 \cdot 10^{-4} [g/cm^3]$
Porosité du lit	$\varepsilon = 0.4$

TAB. 1.2 – Les paramètres utilisés dans les simulations du lit mobile simulé

### 1.6.1 L'évolution temporelle des profils de concentration dans le lit mobile simulé

La figure 1.21 montre l'évolution temporelle des profils de concentrations tracés à partir d'un point géographiquement déterminé (la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$ ). Ce profil de concentration est comparable à celui d'une colonne chromatographique déjà montré (figure 1.4 par exemple). Les pics de concentration sont tracés au cours d'un intervalle comportant quelques commutations. Le pic de concentration du composant **A** (le composant le plus fortement adsorbé) se propage à une vitesse inférieure à celle du composant **B**. Les pics se produisent périodiquement toutes les huit commutations car un robinet fait un tour complet en huit commutations en se déplaçant d'une colonne par commutation.

En effet, le profil de concentration tracé sur la figure 1.21 à partir d'un point géographiquement déterminé (à la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$ ) montre que le procédé fonctionne en régime cyclique. Cependant, il ne représente pas complètement la dynamique du procédé puisque la séparation n'est pas observée dans ce profil.

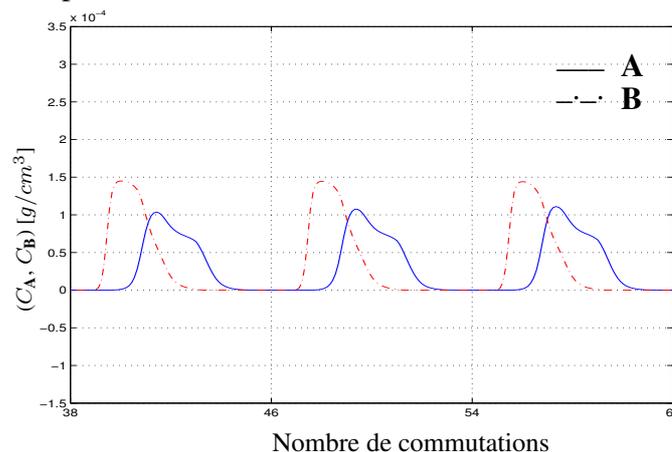


FIG. 1.21 – Les profils de concentration de deux composants à la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Les pics de concentrations se produisent périodiquement toutes les huit commutations étant donné que le nombre total des colonnes est de huit dans cet exemple.

Afin de remarquer la séparation entre les deux composants, il faut tracer les courbes des concentrations aux endroits où les composants sont récupérés (l'extraction et le raffinage). Ceci correspond à la sortie de la première section fonctionnelle et à la sortie de la troisième section fonctionnelle.

Ainsi la figure 1.22 montre l'évolution des concentrations de deux composants qui est illustrée au cours de quelques commutations (de la 45<sup>ème</sup> à la 50<sup>ème</sup> commutation). Il est clair comment les composants sont bien séparés où le composant **A** est majoritaire à la sortie de section fonctionnelle *I* (à l'extraction) et le composant **B** est majoritaire à la sortie de la section fonctionnelle *III* (le raffinage). Remarquons que les deux composants sont présents à l'entrée de la section fonctionnelle *III* où le mélange **A+B** est injecté, alors qu'à l'entrée de la section fonctionnelle *I*, les composants sont quasiment absents puisque le désorbant est injecté à cet endroit.

Remarquons que les profils de concentrations dans les sections fonctionnelles subissent des discontinuités issues du déplacement soudain des robinets à chaque commutation.

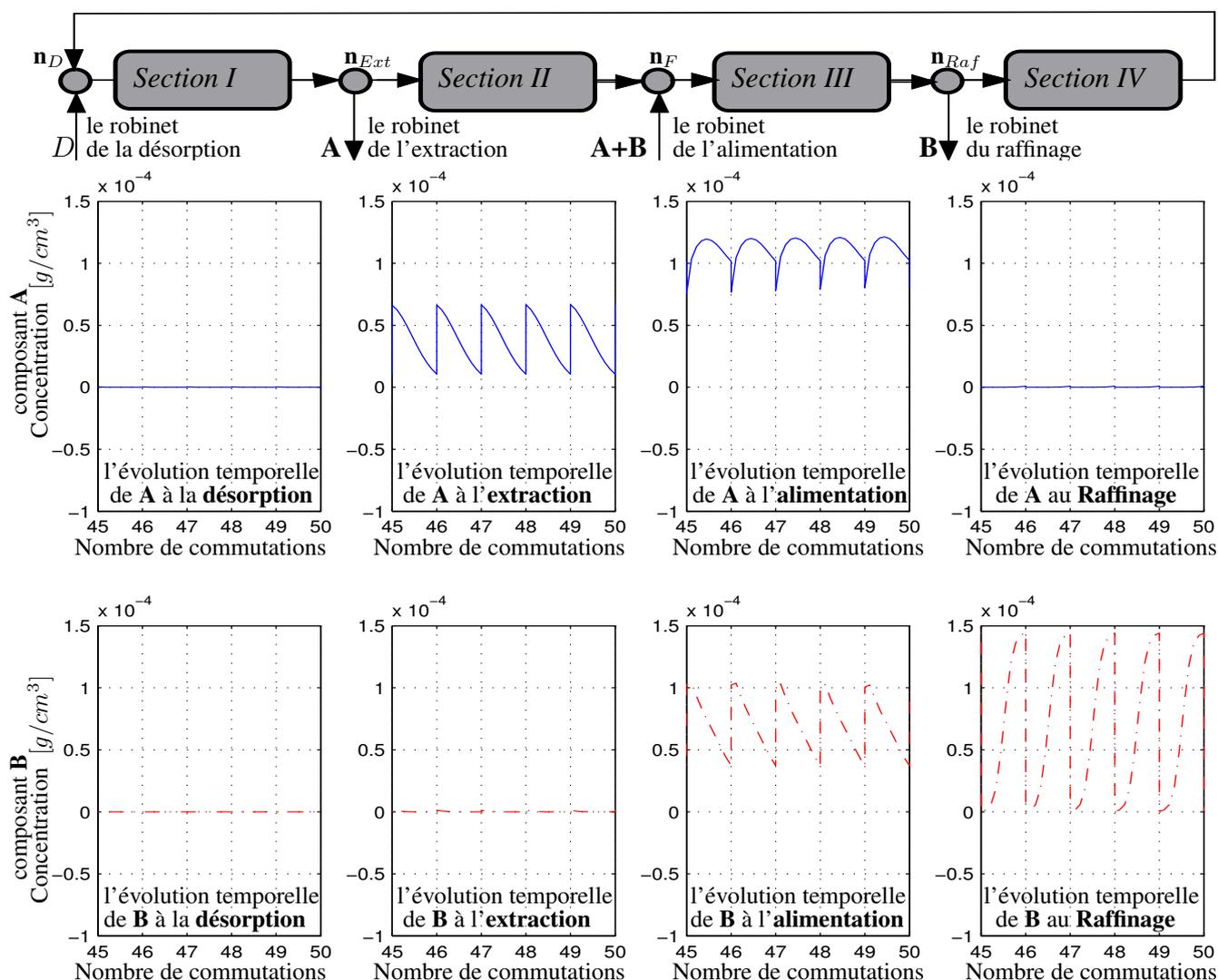


FIG. 1.22 – Évolution temporelle - pendant quelques commutations (de 45 à 50)- des concentrations aux sorties des sections fonctionnelles (la désorption, l'extraction, l'alimentation et le raffinage). Le composant **A** est majoritaire à l'extraction et le composant **B** est majoritaire au raffinage. L'évolution temporelle des concentrations subit des discontinuités issues du déplacement soudain des robinets à chaque commutation.

## 1.6.2 La distribution spatiale des profils de concentration dans le lit mobile simulé

Dans cet exemple, la distribution spatiale des concentrations des deux composants est étudiée pendant les deux premières périodes de commutations.

La figure 1.23, montre la distribution spatiale du profil de concentration des deux composants au début de la première période de commutation ( $t = 2$  [sec]). L'instant  $t = 1$  [sec] correspond au début de l'injection où le lit est vide (les concentrations initiales sont égales à zéro). Les profils de concentration des deux composants sont quasiment identiques. Le point d'injection de la charge (**A+B**) se situe toujours à l'entrée de la troisième section fonctionnelle et correspond au mélangeur 81, puisque le nombre de colonnes jusqu'à la troisième section est égale à 4 (dans lesquelles il existe 80 mélangeurs).

La figure 1.24, montre la distribution spatiale du profil de concentration des deux composants à la fin de la première période de commutation ( $t = 30$  [sec]), (rappelons que la période de commutation est égale à 30 [sec]). Pour l'instant (à  $t=30$  [sec]), aucune commutation n'a eu lieu, et les composants commencent à se séparer légèrement par l'écoulement de la phase liquide. Le composant le moins adsorbé **B** se propage vers le raffinat plus vite que le composant **A**. Tant que les commutations n'ont pas encore commencé, le composant **A** est conduit aussi vers le raffinat.

Pour que le composant **A** soit dirigé vers l'extraction, la phase solide doit l'adsorber et l'amener en sens inverse par rapport au composant **B** (séparation à contre courant). Ceci est réalisé en déplaçant les robinets avec le sens d'écoulement du fluide afin de simuler le mouvement inverse de la phase solide.

Dans la figure 1.25 les robinets viennent de se déplacer d'une colonne (soit 20 mélangeurs) dans le sens d'écoulement du fluide. Remarquons que, le profil tracé dans cette figure (1.25) n'est pas déformé et est identique à celui tracé dans la figure précédente (1.24): cela implique que les valeurs de concentrations initiales au début de la deuxième commutation ( $t = 31$  [sec]) sont égales aux valeurs de concentrations à la fin de la première commutation ( $t = 30$  [sec]). Ceci signifie que le profil spatial de concentration à la fin d'une période de commutation représente les valeurs initiales de concentration pour la commutation suivante. Ceci est détaillé dans le chapitre 2.

La figure 1.26, montre la distribution spatiale des profils de concentration au début de la deuxième période de commutation ( $t = 32$  [sec]). Le profil de concentration commence à se déformer. À la fin de la deuxième période (figure 1.27) où  $t = 60$  [sec], la séparation des deux composants devient visible: le profil de concentration du composant **A** se déplace vers l'extraction alors que celui du composant **B** continue à se diriger vers le raffinage.

Dans la figure 1.28, les robinets se sont encore déplacés à l'instant  $t = 61$  [sec] d'une colonne avec le sens d'écoulement du fluide, pour initialiser la troisième période de commutation.

Remarquons que dans toutes les figures, les profils de concentration se déforment d'une commutation à une autre et la présence des composants dans les sorties de récupération (l'extraction et le raffinage) n'est pas significatif. Ceci n'est pas étonnant, puisque le procédé est au début de l'opération.

Quand le procédé arrive au régime cyclique stationnaire, les profils de concentration spatiaux cessent de se déformer avec les commutations successives. Si les conditions opératoires (les débits par exemple) sont bien réglées, les ondes se positionnent de telle sorte que le composant **A** soit majoritaire

dans l'extraction et que le composant **B** soit majoritaire dans le raffinage. Ceci est présenté dans les figures 1.30 et 1.29.

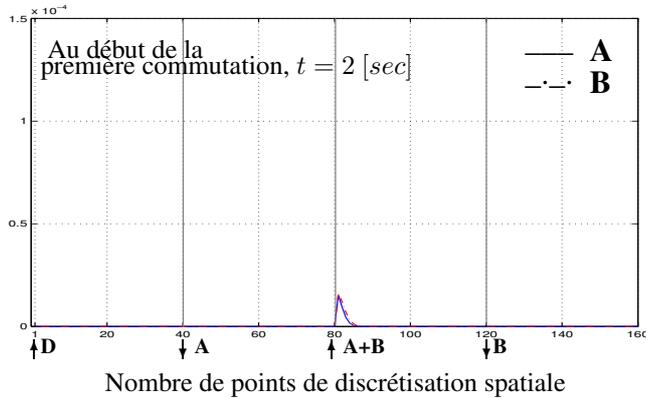


FIG. 1.23 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé au début de la première commutation ( $t = 2$  [sec])

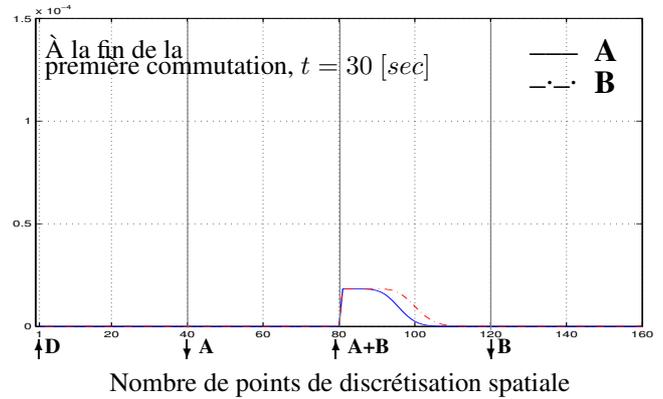


FIG. 1.24 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé à la fin de la première commutation ( $t = 30$  [sec])

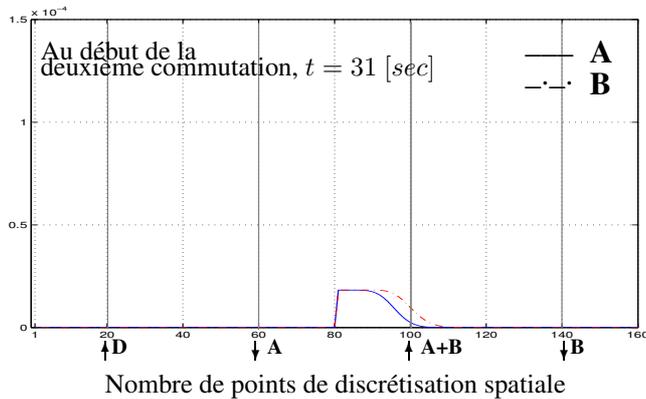


FIG. 1.25 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé au début de la deuxième commutation ( $t = 31$  [sec])

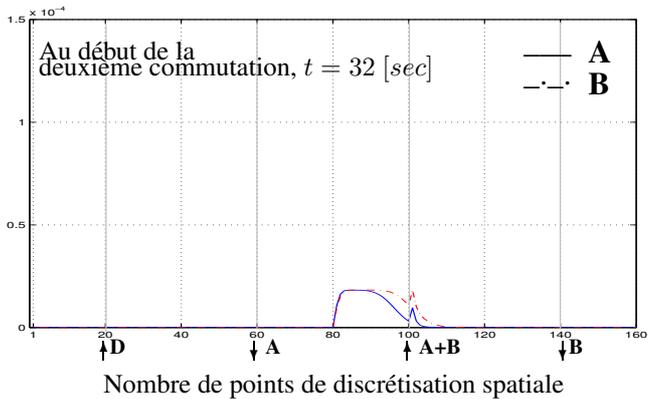


FIG. 1.26 – La distribution évolution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé au début de la deuxième commutation ( $t = 32$  [sec])

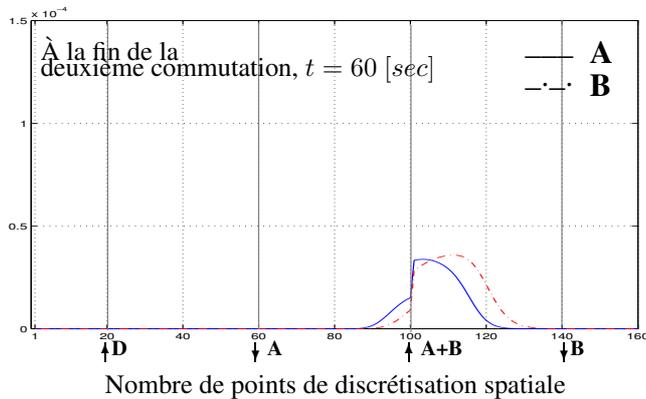


FIG. 1.27 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé à la fin de la deuxième commutation

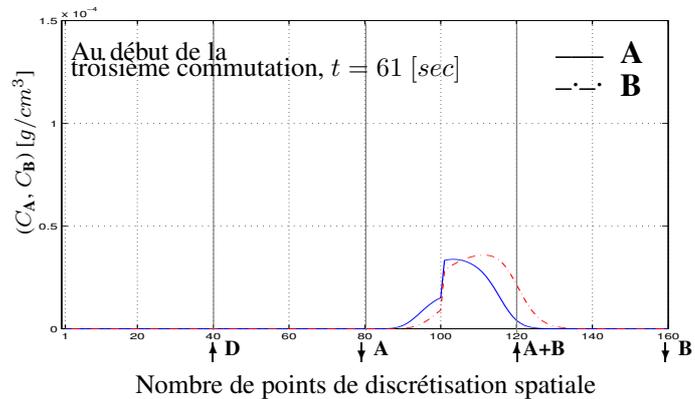


FIG. 1.28 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé au début de la troisième commutation

Les figures 1.30 et 1.29 montrent la distribution spatiale des concentrations dans le régime stationnaire (par exemple, à la fin de la commutation 432 et à la fin de la commutation 441). Dans le régime stationnaire, les ondes ne se déforment plus et se situent de telle sorte que le composant **A** soit majoritaire dans l'extraction et que le composant **B** soit majoritaire dans le raffinage.

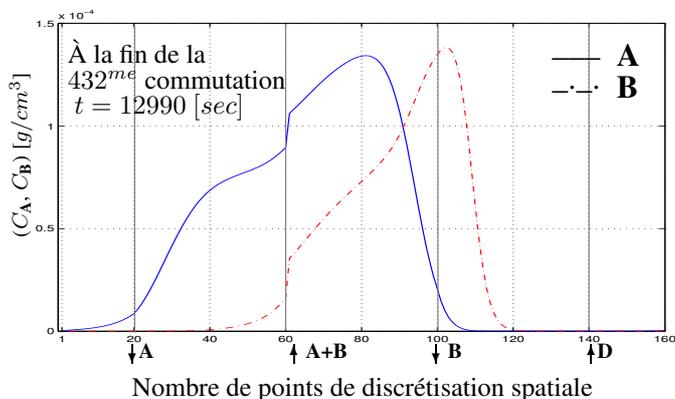


FIG. 1.29 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé à la fin de la 432<sup>me</sup> commutation (dans le régime stationnaire)

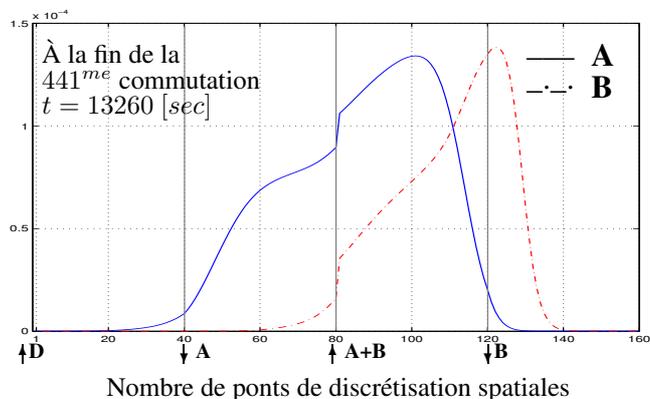


FIG. 1.30 – La distribution spatiale du profil de concentration le long du lit mobile simulé à la fin de la 441<sup>me</sup> commutation (dans le régime stationnaire)

Les puretés moyennes sur une période de commutation des composants récupérés à l'extraction et au raffinage sont tracées dans le temps (figure 1.31). Dans cet exemple de simulation, les puretés atteignent le régime stationnaire après environ 400 commutations, ce qui est équivalent à 3.3 heures.

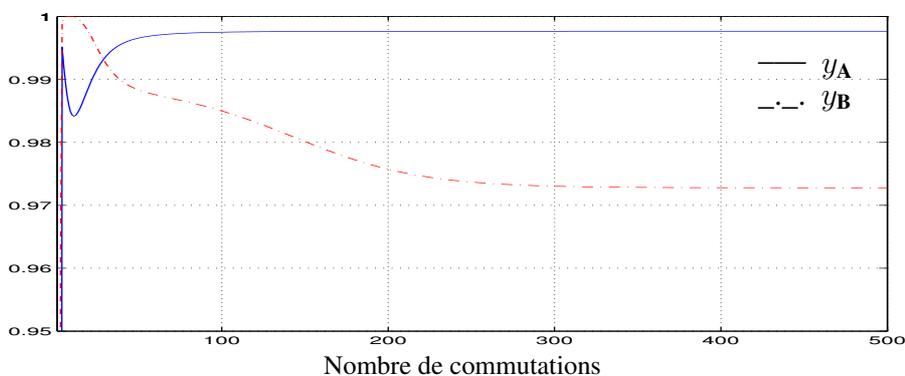


FIG. 1.31 – L'évolution temporelle des puretés moyennes sur une période de commutation des composants récupérés. La pureté du composant **A** en régime stationnaire correspond à  $y_A = 99.97\%$  et celle du composant à **B**  $y_B = 97.3\%$ .

## 1.7 L'objectif de la commande d'un lit mobile simulé

Le lit mobile simulé est un procédé destiné à séparer deux composants. Ainsi, la pureté de ces composants est une contrainte à respecter et toute stratégie de commande a pour but primordial de trouver des lois de commande susceptibles d'aboutir aux puretés désirées (contractuelle) des composants.

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

Sur le plan économique, la séparation chromatographique par le lit mobile simulé est coûteuse pour plusieurs raisons, parmi lesquelles, le coût du solvant (le désorbant). Ainsi, une stratégie de commande consiste à réduire la consommation de ce solvant tout en réalisant les puretés désirées. D'autres critères économiques peuvent également être considérés dans une stratégie de commande optimale, comme la productivité, le rendement, l'efficacité et le respect de la date de livraison.

Les détails concernant la problématique de la commande du procédé, l'état de l'art et le schéma de commande développé dans cette thèse sont présentés dans le chapitre 3.

## 1.8 Conclusion

Dans ce chapitre, la description du lit mobile simulé ainsi que le principe de la séparation chromatographique sur lequel repose le procédé ont été abordés.

Le lit mobile simulé est un procédé de séparation chromatographique à contre-courant qui permet de séparer deux composants initialement mélangés dans un liquide. Ce procédé est constitué de plusieurs colonnes chromatographiques connectées en série et groupées en quatre sections. Ces sections sont déterminées par leur positionnement par rapport aux robinets d'injection et ceux de soutirage. Le mécanisme de séparation dans le lit mobile simulé a été expliqué par l'intermédiaire du procédé idéal (lit mobile vrai) dont le lit mobile simulé est la réalisation industrielle.

Quant à la séparation chromatographique, il s'agit d'une méthode de séparation basée sur la différence d'affinité des substances à séparer à l'égard de deux phases. Cette différence d'affinité aboutit à des vitesses différentes de propagation des composants et ainsi, conduit à la séparation.

Dans une séparation chromatographique, la concentration d'un composant existant dans le mélange est distribuée dans les deux phases. Cette distribution peut être modélisée par une fonction (isotherme) linéaire ou non linéaire. La considération d'un isotherme compétitif aboutit à un couplage entre les concentrations des composants du mélange. Ceci a été montré par un exemple de simulation d'un modèle mathématique d'une colonne chromatographique.

# Chapitre 2

## Modélisation du lit mobile simulé

### 2.1 Introduction

La conception optimale d'un lit mobile simulé en terme d'opérabilité dépend de différents facteurs tels que le nombre de colonnes, leur longueur, leur diamètre, les débits dans les sections et la période de commutation des robinets. En raison de la dynamique complexe du procédé, le choix des paramètres opératoires est loin d'être trivial. C'est la raison pour laquelle, il est nécessaire de recourir à un modèle dynamique.

Ce chapitre présente la modélisation d'un lit mobile simulé. Dans un premier temps, les différentes approches de modélisation d'une colonne chromatographique sont présentées puisque la colonne chromatographique est l'unité principale de séparation dans un lit mobile simulé. Puis, la modélisation complète d'un lit mobile simulé est développée.

Généralement il existe deux stratégies de modélisation [20], [25]

1. La première stratégie de modélisation d'un lit mobile simulé est basée sur le concept du lit mobile vrai dans lequel les commutations n'existent pas, ceci aboutit à une modélisation simplifiée. Cette stratégie simplifie considérablement le problème et le modèle peut être simulé efficacement en terme de temps de calcul. Ce modèle est capable de prédire le comportement d'un lit mobile simulé dans le cas où le nombre de colonnes considérées par section est supérieur à trois avec un isotherme linéaire. Mais d'un côté et pour des raisons économiques, il est préférable d'utiliser moins de colonnes, d'un autre côté et pour effectuer des séparations de haute qualité, la non-linéarité doit être prise en compte [45]. Dans ce cas, le modèle simplifié n'est plus suffisamment représentatif. Alors, une modélisation plus rigoureuse doit être adoptée, c'est le cas de la deuxième stratégie.
2. La deuxième stratégie dite "modélisation rigoureuse" aborde directement le lit mobile simulé en considérant explicitement les effets des commutations. Cette modélisation est effectuée en connectant les modèles des colonnes chromatographiques et en introduisant les effets de commutations.

Avant d'expliquer la modélisation rigoureuse d'un lit mobile simulé, les différentes approches de modélisation d'une colonne chromatographique sont présentées dans la section suivante.

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

## 2.2 Modélisation d'une colonne chromatographique

Généralement, pour la modélisation d'une colonne chromatographique, deux types de modèles peuvent être distingués [39],[31],[44] :

1. Modélisation par des équations différentielles aux dérivées partielles.
2. Modélisation par des mélangeurs en cascade parfaitement agités.

Ces modèles sont basés sur le principe physique de transport et plus précisément celui du transport de masse. Puisque dans une séparation chromatographique les opérations sont généralement isothermiques, le transport de chaleur est négligé. Ainsi, dans les modèles les plus fréquemment utilisés, les hypothèses suivantes sont prises en compte :

- le processus chromatographique est isothermique et la température ne change pas pendant la séparation.
- les particules de la phase solide adsorbante sont sphériques et ont le même diamètre.
- le gradient de concentration dans la direction radiale est négligé.

Les différents modèles appartenant aux deux types abordés ci-dessus sont présentés dans la suite.

### 2.2.1 Modélisation par des équations différentielles aux dérivées partielles

Selon les phénomènes physiques considérées, plusieurs modèles d'équations différentielles aux dérivées partielles peuvent être distingués avec des complexités variées. Les modèles sont présentés ci-après en commençant par le modèle le plus simple (le modèle idéal).

#### 1-Le modèle idéal

Dans ce modèle les hypothèses suivantes sont prises en compte :

- la résistance au transfert de matière entre les deux phases est négligée ce qui rend l'établissement de l'équilibre entre les deux phases instantané.
- la dispersion axiale de l'écoulement du fluide est négligée, ce qui conduit à négliger la diffusion.

En considérant ces hypothèses, le bilan de matière pour chaque composant aboutit au modèle aux équations hyperboliques suivantes qui représente **le modèle idéal** :

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} + \frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon} \frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t} = -u \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.1)$$

L'isotherme :

$$q_i(t,x) = q_i^{eq}(t,x) = F_i(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x)) \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.2)$$

- $t$  : le temps [sec].
- $x$  : l'abscisse [cm].
- $C_i$  : la concentration d'un composant  $i$  dans la phase liquide [ $g/cm^3$ ].
- $q_i$  : la concentration d'un composant  $i$  dans la phase solide [ $g/cm^3$ ].
- $q_i^{eq}$  : la concentration d'un composant  $i$  dans la phase solide à l'équilibre avec la phase liquide [ $g/cm^3$ ].

- $F_i(C_A, C_B)$  : l'isotherme exprimant l'état de l'équilibre entre les deux phases d'un composant  $i$ .
- $u$  : la vitesse d'écoulement de la phase liquide [ $cm/sec$ ].
- $\varepsilon$  : la porosité du lit.
- $\varepsilon \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t}$  : un terme qui représente l'accumulation de matière dans la phase liquide.
- $(1 - \varepsilon) \frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t}$  : un terme qui représente l'accumulation de matière dans la phase solide.
- $u \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x}$  : un terme qui représente la convection.

L'équation représentant le modèle idéal (2.1) est associée aux conditions aux limites suivantes :

- La condition aux limites à gauche représente l'évolution des concentrations  $C_i^{in}(t)$  à l'entrée de la colonne , ceci est exprimé par l'équation suivante :

$$C_i(t,0) = C_i^{in}(t) ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.3)$$

- La condition aux limites à droite représente l'évolution des concentrations à la sortie de la colonne, ceci est exprimé par l'équation suivante :

$$\frac{\partial C_i(t,L)}{\partial x} = 0 ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.4)$$

Étant donné la simplicité du modèle idéal (2.1) et le fait qu'il ne retient que les phénomènes essentiels (adsorption-désorption, convection) de la séparation chromatographique ; il a été utilisé dans le premier chapitre, section 1.2.3 afin d'expliquer la principale raison de la séparation et de prédire le temps de rétention des pics chromatographiques. Dans ce modèle, un isotherme linéaire non compétitif ( $q_i = F_i(C_A, C_B) = k_i C_i$ ) a été utilisé, ce qui transforme l'équation (2.1) en l'équation d'onde suivante :

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} = -v_i \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.5)$$

$$v_i = \frac{u\varepsilon}{\varepsilon + (1 - \varepsilon)k_i} \quad (2.6)$$

où

- $v_i$  est la vitesse de propagation du composant  $i$ .

Un modèle du lit mobile simulé basé sur le modèle idéal (sous l'hypothèse d'un équilibre linéaire) a été proposé par [32] où le modèle a été résolu analytiquement. Le temps de calcul est négligeable mais la comparaison avec une solution d'un modèle plus réaliste montre que le modèle idéal n'est pas suffisamment représentatif [27], cependant il donne une compréhension raisonnable du comportement dynamique du procédé [46].

## 2-Le modèle dispersif d'équilibre

Ce modèle peut être utilisé quand le transport de matière est dominé par la dispersion axiale et dans le cas où le transfert de matière entre les deux phases est instantané. Ceci ajoute au modèle idéal le terme de la diffusion conduisant au modèle suivant :

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} + \frac{(1 - \varepsilon)}{\varepsilon} \frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t} = -u \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} + D_{ax} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2} ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.7)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

L'isotherme :

$$q_i(t,x) = q_i^{eq}(t,x) = F_i(C_A(t,x), C_B(t,x)) \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.8)$$

dans lequel :

- $D_{ax} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2}$  : un terme qui représente la diffusion dans le liquide.
- $D_{ax}$  : le coefficient de dispersion axiale [ $cm^2/sec$ ]. Cet coefficient est calculé par la relation empirique suivante [26] [13] :

$$D_{ax} = \frac{uL}{P_e} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.9)$$

où  $P_e$  est le nombre de Peclet qui est calculé par la relation suivante :

$$P_e = \frac{0.2}{\varepsilon} + \frac{0.11}{\varepsilon} \left[ \frac{R_e}{\varepsilon} \right]^{0.48} \quad (2.10)$$

$R_e$  est le nombre de Reynolds :

$$R_e = \frac{2\varepsilon u R \rho}{\eta} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.11)$$

où :

- $\rho$  : la densité du fluide [ $g/cm^3$ ].
- $\eta$  : la viscosité du fluide [ $g/cm \ s$ ].

Le bilan de matière sous l'hypothèse d'équilibre linéaire non compétitif  $q_i(t,x) = F_i(C_A(t,x), C_B(t,x)) = k_i C_i(t,x)$ , conduit à l'équation parabolique suivante :

$$\gamma_i \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} = -u \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} + D_{ap} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.12)$$

où :

$$\gamma_i = 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} k_i \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.13)$$

$$D_{ap} = D_{ax} + \frac{u^2 R}{3k_{eff}} \frac{\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} k_i^2}{1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon}} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.14)$$

dans lesquelles :

- $k_{eff,i}$  : le coefficient de transfert de matière du composant  $i$  [ $cm/sec$ ].
- $R$  : le rayon d'une particule [ $cm$ ].

Conventionnellement, le modèle (2.12) est dit "Dispersive model for Linear Isotherms" (**DLI**) et a été proposé par [39] qui montre que les deux phénomènes principaux (la dispersion axiale et la résistance au transfert de matière) dans la chromatographie linéaire sont additifs et sont réunis dans un seul paramètre  $D_{ap,i}$ . En ajustant les paramètres de l'équation (2.14), le modèle peut être simplifié en favorisant uniquement un des deux effets [25].

Une solution dite fermée pour ce modèle (2.12) et pour des conditions aux limites générales, a été proposée par [48]. Cette solution conduit à transformer le modèle en une équation de chaleur puis à appliquer une double transformation de Laplace. Cette méthode a été adoptée par [26] pour générer un modèle du lit mobile simulé. Les mêmes auteurs [26] et [27] ainsi que [76], considèrent que ce modèle est à la fois suffisamment représentatif du procédé et d'une complexité modérée.

### 3-Le modèle dispersif de transport

Ce modèle prend en compte les effets de la résistance au transfert de matière et la dispersion axiale, ceci aboutit aux équations suivantes :

- Le bilan de matière dans la phase liquide :

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} + \frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon} \frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t} = -u \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} + D_{ax} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.15)$$

- Le transfert entre les phases :

$$\frac{\partial q_i(t,x)}{\partial t} = \frac{3k_{eff,i}}{R} (q_i(t,x) - q_i^{eq}(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x))) \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.16)$$

- L'isotherme :

$$q_i^{eq}(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x)) = F_i(C_{\mathbf{A}}(t,x), C_{\mathbf{B}}(t,x)) \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (2.17)$$

Le modèle décrit par les équations (2.15) et (2.16) fait partie d'un groupe de modèles dits "**Rate Models**" puisqu'ils contiennent une expression (équation 2.16) qui décrit la dynamique de l'établissement de l'équilibre entre les deux phases.

Ce modèle a été appelé "**Distributed Plug-Flow model (DPF model)**" par [40] qui a proposé une résolution numérique pour celui-ci avec tous types d'isotherme. Les équations ont été transformées en équations différentielles ordinaires en utilisant le schéma de Leonard [49]. Ce modèle est considéré comme plus réaliste que les modèles précédents, mais il n'est pas compatible avec des applications en temps réel à cause du temps de calcul élevé [26].

### 4-Le modèle général

Le modèle général (**The general rate model**) prend en compte la présence d'une troisième phase. Cette phase est le liquide stagnant dans les pores de la phase solide (figure 2.1, b). Ceci ajoute au modèle précédent (le modèle dispersif de transport) une diffusion interne (diffusion dans les pores). Ce modèle a été proposé par [31] en utilisant les équations de continuité fournies par [72] sous les hypothèses citées au début de la section 2.2 et en prenant compte encore les hypothèses suivantes :

- le liquide dans les pores (la troisième phase) est stagnant, alors il n'y a pas de vitesse de convection dans les pores.
- l'équilibre est instantanément établi entre le liquide stagnant dans les pores et la phase solide.

Ainsi le modèle général est représenté par les équations suivantes :

– Le bilan de matière dans la phase liquide :

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial t} + \frac{(1 - \varepsilon_b)}{\varepsilon_b} \frac{3k_{l,i}}{R} (C_i(t,x) - C_{p,i}(t,x,R)) = -u \frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} + D_{ax} \frac{\partial^2 C_i(t,x)}{\partial x^2} \quad (2.18)$$

– Le bilan de matière dans la phase liquide stagnant (l'accumulation dans les pores + l'accumulation dans la phase solide = la diffusion dans les pores (la loi de Fick)) :

$$(1 - \varepsilon_p) \frac{\partial q_i(t,x,r)}{\partial t} + \varepsilon_p \frac{\partial C_{p,i}(t,x,r)}{\partial t} = \varepsilon_p D_p \left[ \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C_{p,i}(t,x,r)}{\partial r} \right) \right] \quad (2.19)$$

où :

- $C_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase liquide mobile [ $g/cm^3$ ].
- $C_{p,i}$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase liquide stagnante [ $g/cm^3$ ].
- $q_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase solide [ $g/cm^3$ ].
- $D_{ax}$  : le coefficient de la dispersion axiale [ $cm^2/sec$ ].
- $D_p$  : le coefficient de la diffusion interne [ $cm^2/sec$ ].
- $\varepsilon_p$  : la porosité interne (dans les pores).
- $\varepsilon_b$  : la porosité externe (dans la phase liquide).
- $r$  : la coordonnée radiale [ $cm$ ].
- $k_{l,i}$  : le coefficient de transfert de masse [ $cm/sec$ ].

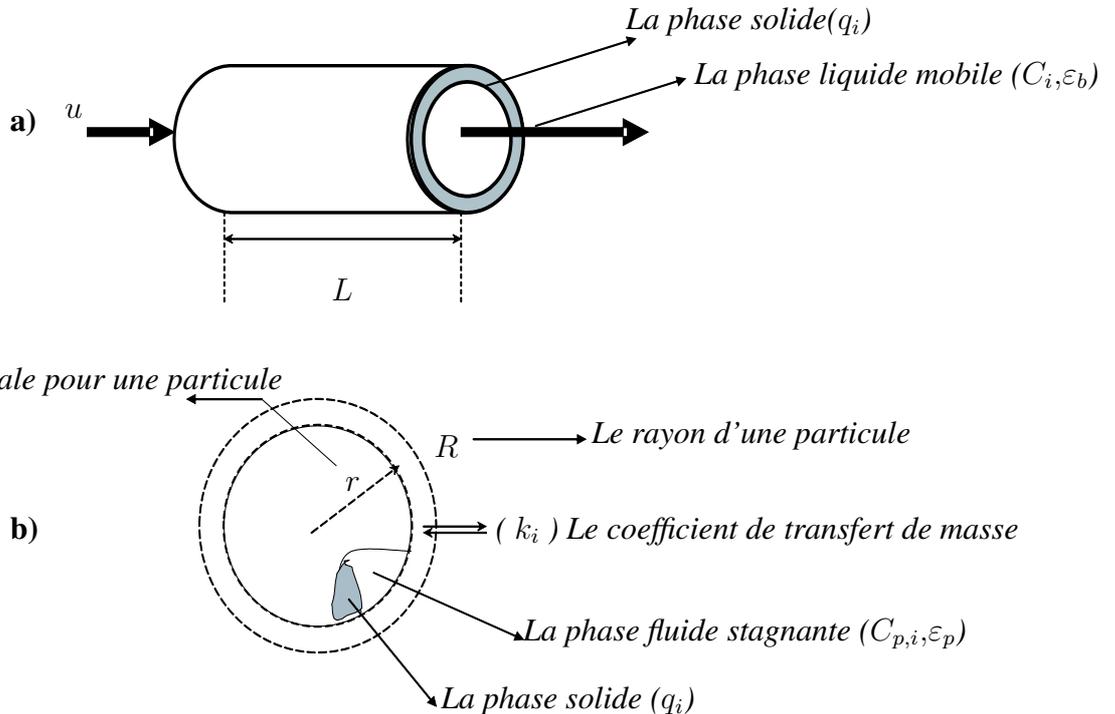


FIG. 2.1 – **a)** Une colonne chromatographique de longueur  $L$ . **b)** Anatomie d'une particule de la phase stationnaire dans laquelle, la concentration d'un composant  $i$  dans la phase solide est notée  $q_i$  et celle dans la phase liquide stagnante est notée par  $C_{p,i}$ .

Ce modèle combiné avec un isotherme non linéaire est considéré comme le plus réaliste et le plus représentatif de la réalité physique. Il existe une résolution numérique pour ce modèle. Cette résolution est proposée par [31] en considérant un isotherme non linéaire. La solution consiste à discrétiser l'équation (2.18) du bilan dans la phase liquide en utilisant la méthode des éléments finis, alors que la méthode de collocation orthogonale est utilisée pour résoudre la deuxième équation (2.19). Le code de cette solution est réalisé sous FORTRAN 77 et disponible sous demande en contactant (guting@ent.ohiou.edu) d'après [31]. Ce modèle a été adopté pour générer un modèle du lit mobile simulé [46]. Mais étant donné la complexité de ce modèle, les applications en-ligne (optimisation et contrôle) ne sont pas possibles à cause du temps de calcul incompatible.

Le modèle général est associé aux conditions initiales et aux conditions aux limites suivantes :

### Les conditions aux limites

Le modèle général est associé aux conditions aux limites suivantes [31]:

– La condition à l'entrée de la colonne ( $x = 0$ ):

$$\frac{\partial C_i(t,x)}{\partial x} = \frac{u}{D_{ax}}(C_i(t,x) - C_i^{in}(t)) \quad ; \quad (x = 0) \quad (2.20)$$

où  $C_i^{in}(t)$  est la concentration à l'entrée de la colonne.

– La condition à la sortie de la colonne ( $x = L$ ):

$$\frac{\partial C_i(t,L)}{\partial x} = 0 \quad (2.21)$$

– Les conditions aux limites pour la phase fluide stagnante :

pour  $r = 0$ :

$$\frac{\partial C_{p,i}(t,x,0)}{\partial r} = 0 \quad (2.22)$$

pour  $r = R$

$$\frac{\partial C_{p,i}(t,x,R)}{\partial r} = \frac{k_{l,i}}{\varepsilon_p D_p} (C_i(t,x) - C_{p,i}(t,x,R)) \quad (2.23)$$

### 2.2.2 Modélisation par des mélangeurs en cascade parfaitement agités

Cette modélisation est basée sur le concept de la théorie des plateaux qui a été proposée par Martin et Synge en 1941 [57].

La théorie des plateaux [73] correspond à une modélisation de la chromatographie selon laquelle chaque composant se déplace progressivement en une suite d'étapes distinctes. La colonne de longueur  $L$  est découpée en  $N$  petites cellules fictives de même hauteur  $H$  figure (2.2). Dans chaque cellule, la concentration d'un composant dans la phase stationnaire est en équilibre avec sa concentration dans la phase mobile. À chaque nouvel équilibre, le composant progresse d'une cellule supplémentaire appelée plateau théorique ou bien mélangeur.

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

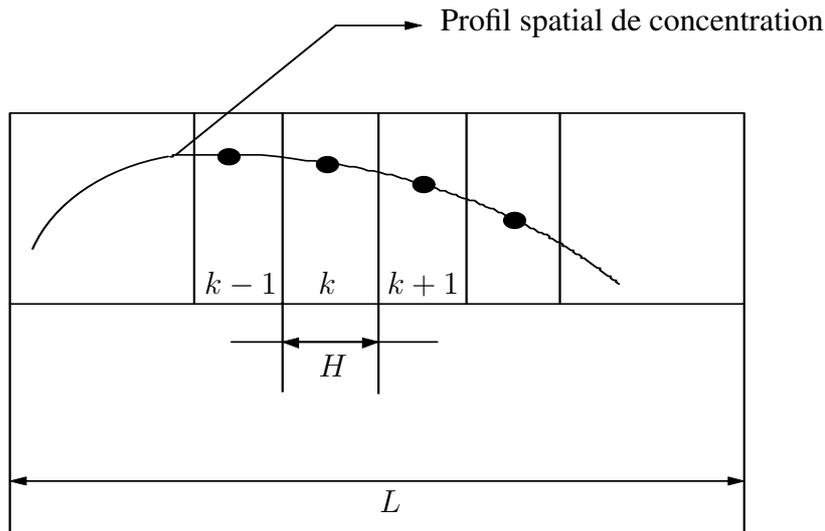


FIG. 2.2 – Représentation schématique d'une colonne chromatographique découpée en petites cellules fictives (mélangeurs) d'hauteur  $H$ . Dans chaque mélangeur, la concentration d'un composant dans la phase liquide est en équilibre avec sa concentration dans la phase solide. L'efficacité de la colonne augmente avec l'augmentation du nombre de mélangeurs.

La taille de la cellule est déterminée de telle sorte que le composant ait le temps suffisant pour réaliser l'équilibre avec les deux phases. Ainsi, plus la hauteur de cellule est petite, plus l'échange entre les deux phases dans la colonne est efficace et par conséquent, le nombre de cellules dans une colonne donnée augmente. C'est pourquoi le nombre de plateaux théoriques dans une colonne indique l'efficacité de la colonne. L'efficacité d'une colonne est une notion qui permet de caractériser la qualité de séparation.

Le nombre de ces plateaux  $N$  et leur hauteur  $H$  dans une colonne de longueur  $L$  sont liés par la relation suivante :

$$N = \frac{L}{H} \quad (2.24)$$

L'efficacité de la colonne est proportionnelle au nombre de plateaux ( $N$ ) et inversement proportionnelle à sa hauteur ( $H$ ). Plus  $N$  est grand, plus  $H$  est petite et donc plus la colonne a une efficacité importante. Le nombre des plateaux ( $N$ ) peut être estimé par la relation suivante :

$$N = 16 \frac{t_r}{W} \quad (2.25)$$

où,

- $W$  est la base du triangle tracé en tangente d'un pic de concentration sortant d'une colonne chromatographique de longueur  $L$  figure (2.3).
- $t_r$  est le temps de rétention (le temps nécessaire pour que le pic de concentration apparaisse à la sortie de la colonne de longueur  $L$ ).

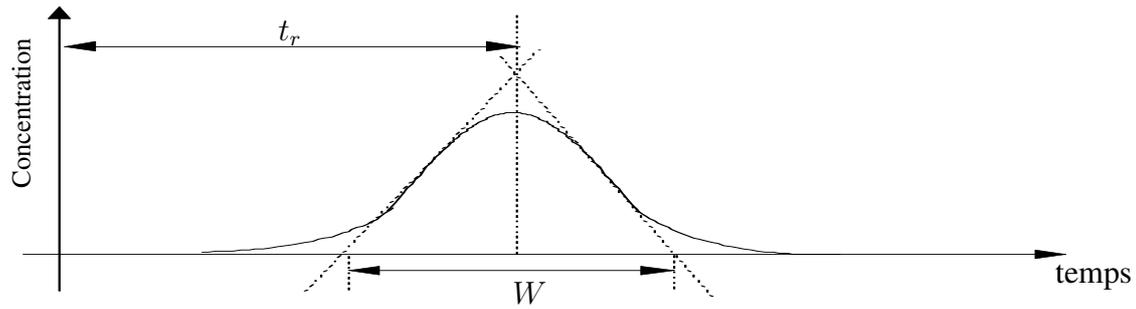


FIG. 2.3 – Pic chromatographique de concentration. Cette courbe permet de calculer l'efficacité d'une colonne chromatographique en mesurant  $W$  et  $t_r$  et en appliquant l'équation (2.25). Ceci implique que l'efficacité est plus grande quand le pic chromatographique est plus étroit.

La théorie des plateaux permet d'avoir des résultats qui sont pratiquement vérifiés. Mais elle néglige le fait que la chromatographie est un phénomène dynamique, résultat du passage continu de la phase mobile sur la phase stationnaire. Ceci implique que la vitesse d'écoulement influence l'efficacité de la colonne, par conséquent, le nombre de plateaux théoriques est fonction de cette vitesse. Cela est proposé par l'équation de Van Deemter (2.26)[39]. Cette équation établit une relation entre la vitesse d'écoulement  $u$ , la diffusion turbulente  $A$ , la diffusion longitudinale  $B$  et la résistance au transfert de matière  $C$ . L'équation de Van Deemter est exprimée en terme de hauteur équivalente à un plateau théorique (**HEPT**) comme suit,

$$HEPT = h = A + \frac{B}{u} + Cu \quad (2.26)$$

La courbe tracée sur la figure (2.4) [39] représentant l'équation de Van Deemter, montre qu'il y a une vitesse optimale  $u_{opt}$  qui correspond à une valeur minimale de  $HEPT$ , et donc correspond à une efficacité maximale de la colonne chromatographique.

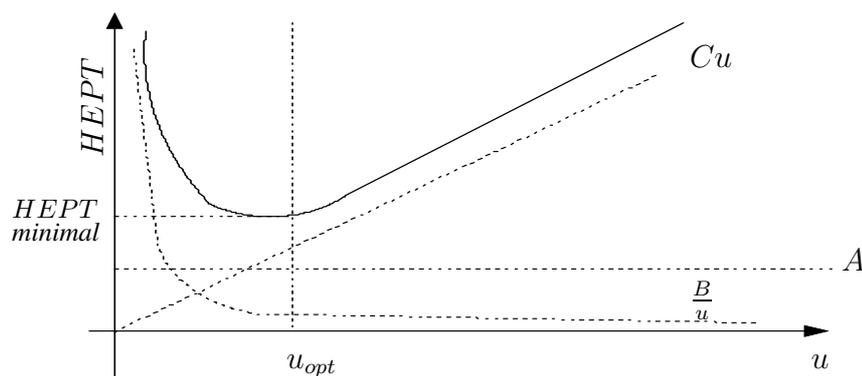


FIG. 2.4 – Variation de la hauteur équivalente à un plateau théorique (**HEPT**) en fonction de la vitesse d'écoulement de la phase liquide. La vitesse  $u_{opt}$  correspond à une hauteur minimale des plateaux théoriques, ceci conduit à une efficacité maximale d'une colonne chromatographique.

### 2.2.3 Modélisation mathématique basée sur la théorie des plateaux d'une colonne chromatographique

La théorie des plateaux implique qu'une colonne chromatographique est considérée comme une série de mélangeurs fictifs parfaitement agités dans lesquels l'équilibre entre les deux phases est instantanément établi. Dans un mélangeur parfaitement agité, la concentration ne dépend que du temps, ainsi il est modélisé par une équation différentielle ordinaire.

Le nombre de mélangeurs considéré dans une colonne doit être supérieur à une certaine limite afin de représenter suffisamment la réalité physique.

La figure 2.5 montre deux mélangeurs en cascade  $k$ ,  $k - 1$ . Dans un mélangeur parfaitement agité, la distribution de concentrations d'un composant est uniforme. Ainsi, la concentration dans le mélangeur  $k$  ( $C_{k,i}$ ) pour un composant  $i$  est la même dans tout l'espace de ce mélangeur.

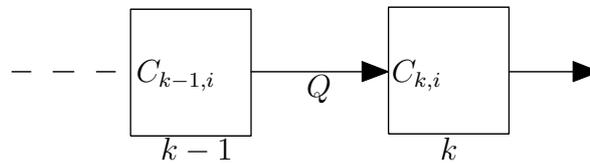


FIG. 2.5 – Deux mélangeurs en cascade  $k$  et  $k - 1$ .

La modélisation mathématique d'une colonne chromatographique est développée ainsi :

- Dans un mélangeur  $k$  de volume  $V$ , la quantité de matière d'un composant  $i$  ( $M_{k,i}(t)$ ) existant à un moment donné  $t$  est égale à la quantité existant dans la phase liquide ( $M_{k,i}^l(t)$ ) ajoutée à la quantité existant dans la phase solide ( $M_{k,i}^s(t)$ ), à savoir :

$$M_{k,i}(t) = M_{k,i}^l(t) + M_{k,i}^s(t) \quad (2.27)$$

pour un lit de porosité  $\varepsilon$  la quantité de matière peut être exprimée en fonction de la concentration et du volume d'un mélangeur, à savoir :

$$M_{k,i}(t) = \varepsilon C_{k,i}(t)V + (1 - \varepsilon)q_{k,i}(t)V \quad (2.28)$$

dans cette équation :  $C_{k,i}(t)$ : la concentration du composant  $i$  dans la phase liquide d'un mélangeur  $k$  à l'instant  $t$  [ $g/cm^3$ ].  $q_{k,i}(t)$ : la concentration du composant  $i$  dans la phase solide d'un mélangeur  $k$  à l'instant  $t$  [ $g/cm^3$ ].

En dérivant la quantité  $M_{k,i}(t)$  dans l'équation (2.28) on obtient :

$$\frac{d}{dt}M_{k,i}(t) = \left( \varepsilon \frac{d}{dt}C_{k,i}(t) + (1 - \varepsilon) \frac{d}{dt}q_{k,i}(t) \right) V \quad (2.29)$$

- D'un autre côté, le bilan des masses dans le mélangeur  $k$  et dans le mélangeur précédent  $k - 1$  à l'instant  $t$ , figure 2.5, est exprimé par l'équation suivante :

$$\frac{d}{dt}M_{k,i}(t) = D_{k-1,i}^m(t) - D_{k,i}^m(t) \quad (2.30)$$

où :  $D_{k,i}^m(t)$  est le débit massique d'un composant  $i$  dans le mélangeur  $k$ ,  $D_{k-1,i}^m(t)$  est le débit massique d'un composant  $i$  dans le mélangeur  $k - 1$ .

En remplaçant l'expression de débit massique en fonction de débit volumique ( $D^m = Q.C$ ) :

$$\frac{d}{dt}M_{k,i}(t) = Q(C_{k-1,i}(t) - C_{k,i}(t)) \quad (2.31)$$

–  $Q$  : le débit volumique de la phase liquide [ $cm^3/sec$ ] dans la colonne qui constitue les mélangeurs.

Comparant cette dernière équation avec l'équation (2.29), cela donne l'équation différentielle représentant la dynamique d'un mélangeur ( $k$ ) :

$$\varepsilon \frac{d}{dt}C_{k,i}(t) + (1 - \varepsilon) \frac{d}{dt}q_{k,i}(t) = \frac{Q}{V} (C_{k-1,i}(t) - C_{k,i}(t)) \quad (2.32)$$

Supposons que le nombre de mélangeurs dans une colonne est  $N_k$ , en connectant les  $N_k$  équations des mélangeurs, un modèle pour une colonne chromatographique est ainsi obtenu.

### 2.2.4 Le modèle de simulation choisi dans le présent travail

Tout d'abord il est important de signaler que le schéma de commande prédictive non linéaire développé dans cette thèse est indépendant du type de modèle utilisé. Ce schéma nécessite un simulateur comme une boîte noire qui permet de prédire l'évolution des variables d'état (les concentrations), dans lequel tous les types de modèles peuvent être utilisés quelles que soient leurs structures mathématiques.

Ainsi, le modèle représenté par l'équation (2.32) est utilisé pour la synthèse d'une loi de commande prédictive non linéaire présentée dans le chapitre 4. Notons que les simulations réalisées dans les chapitres 1 et 2 sont basées sur ce modèle.

## 2.3 Modélisation du lit mobile simulé

La modélisation rigoureuse du lit mobile simulé est développée dans cette section. À la différence de la modélisation simplifiée du lit mobile simulé basée sur le modèle d'un lit mobile vrai, la modélisation rigoureuse prend en compte la dynamique discrète issue des commutations des robinets. Rappelons que les commutations des robinets dans le lit mobile simulé sont faites pour simuler le mouvement de la phase solide.

Notons que chaque section est constituée de plusieurs colonnes chromatographiques, ainsi le modèle d'une section est comme un modèle d'une colonne chromatographique de longueur équivalente aux longueurs des colonnes qui constituent cette section.

Par conséquent, un modèle rigoureux de lit mobile simulé est construit en :

1. reliant les modèles des sections.
2. introduisant les effets des commutations.

Ceci est développé par la suite.

### 2.3.1 La connexion des sections d'un lit mobile simulé

Les quatre sections dans le lit mobile simulé sont connectées par des nœuds où les robinets d'injection et ceux de soutirage sont installés, la connexion des sections est représentée par les équations algébriques citées dans le chapitre 1 (1.14), (1.16), (1.18) et (1.20). Ces équations permettent d'une part, de calculer les débits externes (de la désorption, de l'extraction, de l'alimentation et du raffinage) en fonction des débits internes dans les sections, et d'autre part, de calculer les concentrations à l'entrée de chaque section. La connexion des sections d'un lit mobile simulé correspond aux conditions aux limites pour les équations aux dérivées partielles.

### 2.3.2 Les effets des commutations

Afin de modéliser un lit mobile simulé, les effets de commutations successives des robinets doivent être introduits. Ces effets influencent les conditions aux limites (la connexion des sections) ainsi que les valeurs initiales des concentrations à chaque commutation. En effet, il existe deux façons d'introduire les effets de commutations, la première consiste à considérer que le concept d'une section est fonctionnel et la deuxième considère que le concept d'une section est géométrique. Les deux concepts sont expliqués par la suite.

#### Les effets des commutations en adoptant le concept fonctionnel des sections

Comme il a été mentionné dans le chapitre 1 (section 1.6), le concept fonctionnel considère qu'une section est déterminée par les robinets qui sont installés à ses extrémités, ainsi les sections se déplacent simultanément avec les commutations des robinets. Ceci implique que les conditions aux limites des équations aux dérivées partielles modélisant les sections glissent avec les sections. Dans ce cas, les commutations ne conduisent pas à un changement des conditions aux limites.

La figure 2.6 montre que les sections fonctionnelles gardent leurs indices spatiaux avec les commutations des robinets. Par exemple, les indices spatiaux des concentrations dans la section *I* qui sont distribués entre l'indice  $x_1$  et l'indice  $x_2$  ne changent pas avec la succession des commutations. Ainsi, le profil de concentration à la sortie de la section *I* prend toujours l'indice spatial  $x_2$ , à savoir  $C_{out}^I(t, x_2)$ .

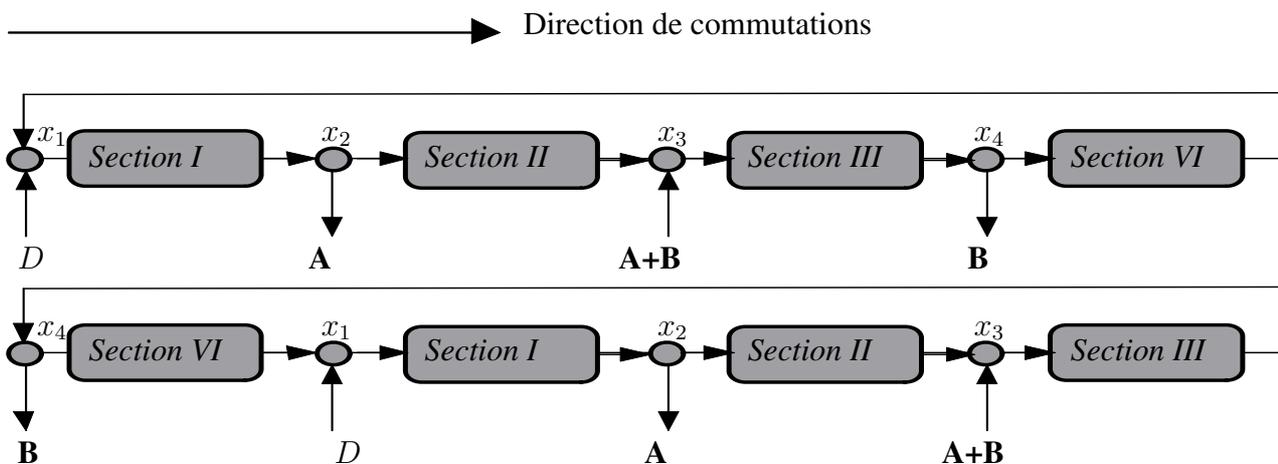


FIG. 2.6 – Représentation schématique du lit mobile simulé. Les sections fonctionnelles se déplacent simultanément avec les commutations des robinets et les conditions aux limites ne changent pas.

Cette modélisation montre une discontinuité sur les concentrations. La figure 2.7 illustre le profil de concentration à la sortie de la section fonctionnelle  $I$ . Le profil de concentration est tracé en fonction de quelques commutations. Il est clair que le profil de concentration subit une discontinuité à chaque commutation.

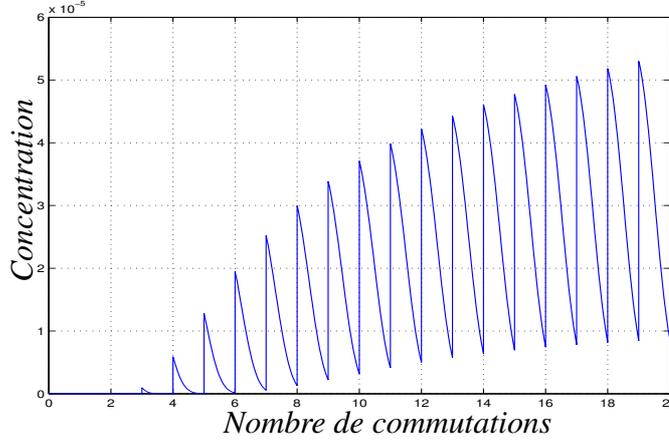


FIG. 2.7 – Profil de concentration à la sortie de la section fonctionnelle  $I$  ( $C_{out}^I(t, x_2)$ ), le profil subit des discontinuités issues des commutations des robinets.

Les conditions initiales doivent être également changées à chaque commutation. En effet, quand les robinets se déplacent, chaque section fonctionnelle ( $j$ ) se déplace et prend géographiquement la place de la section fonctionnelle suivante ( $j + 1$ ). Par conséquent, pour commencer la commutation actuelle  $k$ , la valeur initiale d'un profil de concentration au point  $x_i$  d'une section fonctionnelle  $j$  est égal à la valeur finale du profile de concentration au point  $x_i$  de la section fonctionnelle  $j + 1$  à la commutation précédente. Ceci est traduit mathématiquement par l'équation suivante, à savoir :

$$C^j(t_k^+, x_i) = C^{j+1}(t_{k-1}^-, x_i) \quad ; \quad j \in \{I, II, III, IV\} \quad (2.33)$$

où

- $C^j(t_k^+, x_i)$  : le profil de concentration d'une section fonctionnelle  $j$  au point  $x_i$  au début de la commutation actuelle  $k$ .
- $C^{j+1}(t_{k-1}^-, x_i)$  : le profil de concentration d'une section fonctionnelle  $j + 1$  au point  $x_i$  à la fin de la commutation précédente  $k - 1$ .
- $t_k^+$  : l'instant initial dans la commutation  $k$
- $t_{k-1}^-$  : l'instant final dans la commutation  $k - 1$

La figure 2.8 permet de voir schématiquement l'initialisation des profils de concentration, par exemple : le plan (P1) montre l'évolution temporelle du profil de concentration au point  $x_i$  durant la période de commutation ( $[t_k, t_{k+1}]$ ) de la section fonctionnelle  $II$ . Cette évolution est représentée par :  $C^{(II)}(t, x_i)$  où  $t \in [t_k, t_{k+1}]$ . À la commutation suivante ( $t \in [t_{k+1}, t_{k+2}]$ ), la section fonctionnelle  $II$  prend géographiquement la place de la section fonctionnelle  $III$ , ainsi le profil de concentration  $C^{(II)}(t, x_i)$  (illustré dans le plan P4) est initialisé à la valeur finale du profil de concentration  $C^{(III)}(t, x_i)$  où  $t \in [t_k, t_{k+1}]$  (illustré dans le plan P3) .

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

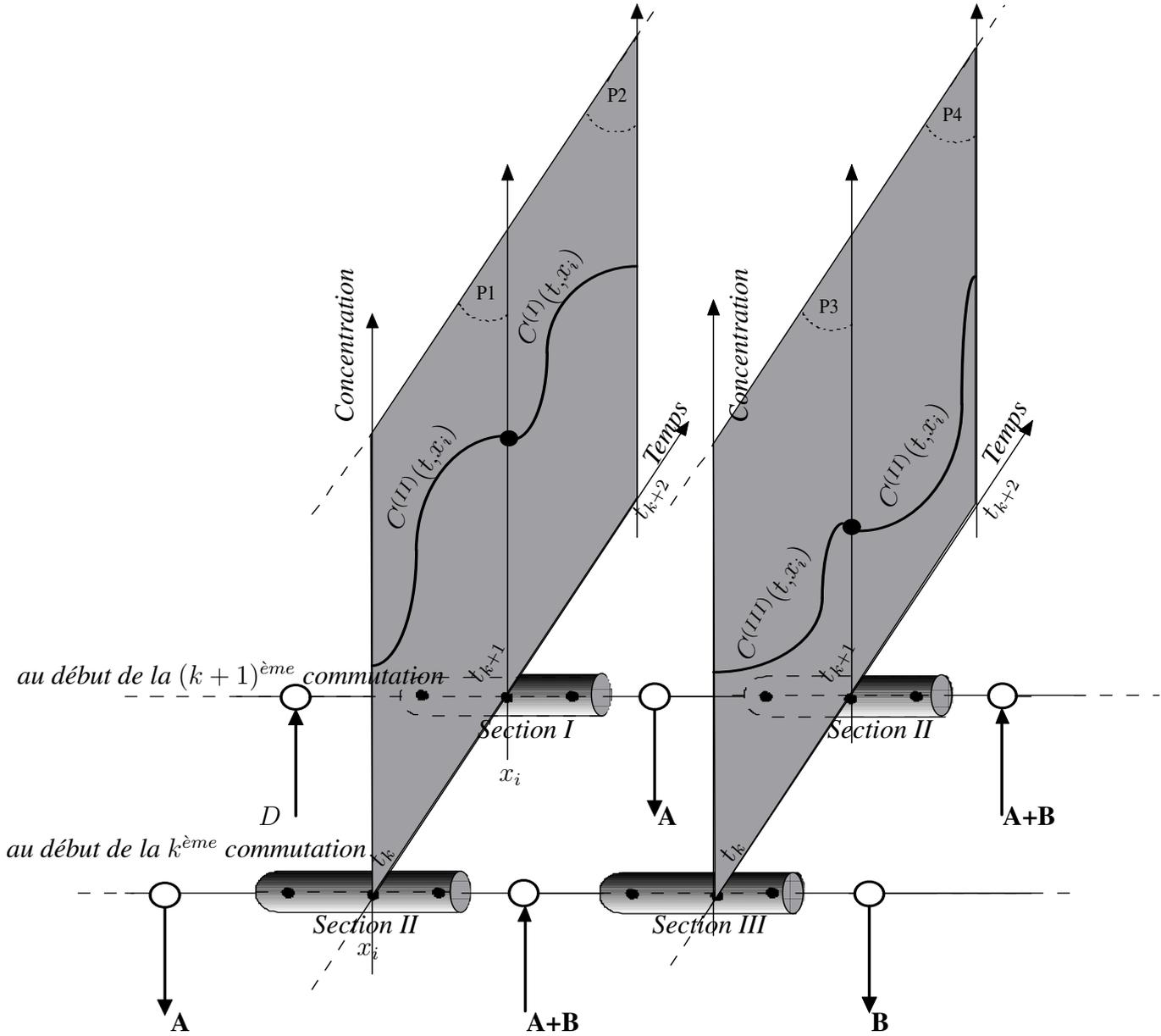


FIG. 2.8 – Représentation schématique d’initialisation des profils de concentration. Un profil de concentration est initialisé par la valeur finale du profil appartenant à la section suivante. Par exemple dans le plan P4, le profil  $C^{(II)}(t, x_i)$  pour la commutation  $(t_{k+1}, t_{k+2})$  est initialisé par la valeur finale du profil  $C^{(III)}(t, x_i)$  qui a été évalué pendant la commutation précédente  $(t_k, t_{k+1})$ . (plan P3)

**Les effets des commutations en adoptant le concept géométrique des sections**

À la différence du concept fonctionnel des sections (comme il a été mentionné dans le chapitre 1), le concept géométrique considère qu’une section est vue comme un ensemble de colonnes géographiquement déterminées. Par conséquent, les sections géométriques ne se déplacent pas avec les commutations des robinets. Ceci implique que les conditions aux limites des équations aux dérivées partielles qui modélisent les sections, ne glissent pas avec les sections. Dans ce cas les commutations conduisent à un changement des conditions aux limites.

La figure 2.9 montre que les sections géométriques ( $\mathbb{A}$ ,  $\mathbb{B}$ ,  $\mathbb{C}$ ,  $\mathbb{D}$ ) ne gardent pas leurs indices spatiaux avec les commutations des robinets. Par exemple, les indices spatiaux des concentrations dans la section géométrique  $\mathbb{A}$  distribués entre l'indice  $x_1$  et l'indice  $x_2$ , se distribuent entre l'indice  $x_4$  et l'indice  $x_1$  dans la commutation suivante. Ainsi, le profil de concentration à la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$  prend l'indice spatial  $x_2$  pour la commutation actuelle ( $C_{out}^{\mathbb{A}}(t, x_2)$ ) et prend l'indice  $x_1$  pour la commutation suivante ( $C_{out}^{\mathbb{A}}(t, x_1)$ ).

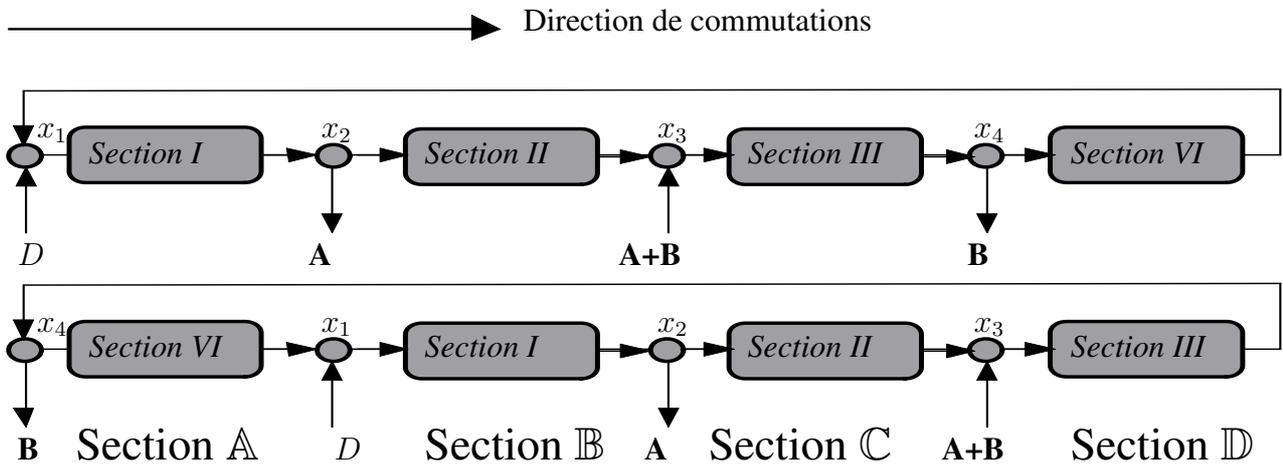


FIG. 2.9 – Représentation schématique du lit mobile simulé. Les sections géométrique ( $\mathbb{A}$ ,  $\mathbb{B}$ ,  $\mathbb{C}$ ,  $\mathbb{D}$ ) ne se déplacent pas avec les commutations des robinets, mais les conditions aux limites changent avec les commutations.

La figure 2.10 montre l'évolution d'un profil de concentration à la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Le profil de concentration est tracé en fonction de quelques commutations. Remarquons que la dynamique reste cyclique, mais sans discontinuité.

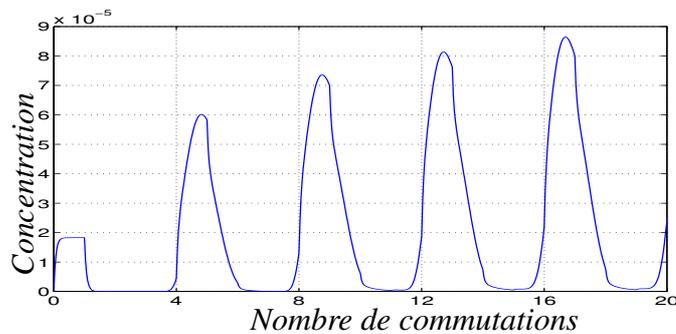


FIG. 2.10 – Profil de concentration à la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Le profil montre une dynamique cyclique.

Pour mieux comprendre la différence entre une section géométrique et une section fonctionnelle, remarquons sur la figure 2.11 l'évolution temporelle du profil de concentration à l'entrée de la section géométrique  $\mathbb{A}$  pendant 4 commutations. Ce profil représente également la succession des profils de concentration à l'entrée des sections fonctionnelles qui traversent l'entrée de la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Les figures 2.12, 2.13 et 2.14 montrent également la succession d'un profil de concentration à l'entrée des sections fonctionnelles qui traversent les entrées des sections géométriques  $\mathbb{B}$ ,  $\mathbb{C}$ ,  $\mathbb{D}$ .

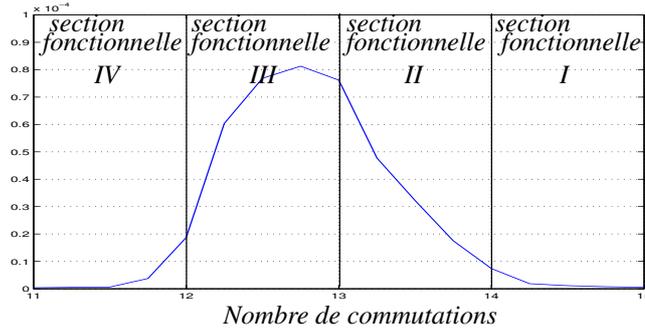


FIG. 2.11 – La succession d’un profil de concentration à l’entrée des sections fonctionnelles dans la section géométrique  $\mathbb{A}$  pendant 4 commutations successives.

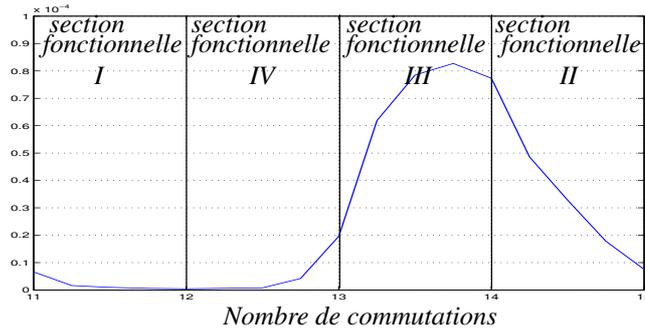


FIG. 2.12 – La succession d’un profil de concentration à l’entrée des sections fonctionnelles dans la section géométrique  $\mathbb{B}$  pendant 4 commutations successives.

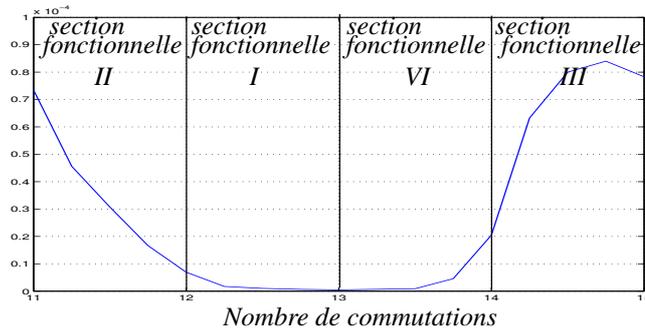


FIG. 2.13 – La succession d’un profil de concentration à l’entrée des sections fonctionnelles dans la section géométrique  $\mathbb{C}$  pendant 4 commutations successives.

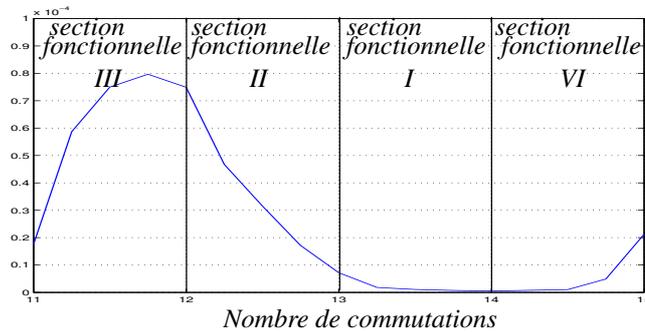


FIG. 2.14 – La succession d’un profil de concentration à l’entrée des sections fonctionnelles dans la section géométrique  $\mathbb{D}$  pendant 4 commutations successives.

La figure 2.15 permet d’une part, de voir la succession d’un profil de concentration à l’entrée

des sections fonctionnelles dans la section géométrique  $\mathbb{A}$ , et d'autre part, de montrer l'évolution temporelle des mêmes profils de concentration observés dans les sections fonctionnelles. Ainsi, la sous-figure **a** montre l'évolution temporelle d'un profil de concentration à la sortie de la section géométrique  $\mathbb{A}$  de la 12<sup>ème</sup> à la 15<sup>ème</sup> commutation. Les sous figures **b**, **c**, **d**, **i** montrent respectivement l'évolution temporelle du profil de concentration à l'entrée des sections fonctionnelles *I*, *II*, *III*, *IV* de la 12<sup>ème</sup> à la 15<sup>ème</sup> commutation. Remarquons que les profils de concentration dans les sections fonctionnelles *I*, *II*, *III*, *IV* subissent des discontinuités.

Pendant la 12<sup>ème</sup> commutation, c'est la section fonctionnelle *IV* qui traverse la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Pendant la 13<sup>ème</sup> commutation, c'est la section fonctionnelle *III* qui traverse la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Pendant la 14<sup>ème</sup> commutation, c'est la section fonctionnelle *II* qui traverse la section géométrique  $\mathbb{A}$ . Pendant la 15<sup>ème</sup> commutation, c'est la section fonctionnelle *I* qui traverse la section géométrique  $\mathbb{A}$ .

(Pour la 12<sup>ème</sup>, 13<sup>ème</sup>, 14<sup>ème</sup>, 15<sup>ème</sup> commutation, la section fonctionnelle *IV*, *III*, *II*, *I* traverse respectivement la section géométrique  $\mathbb{A}$ .)

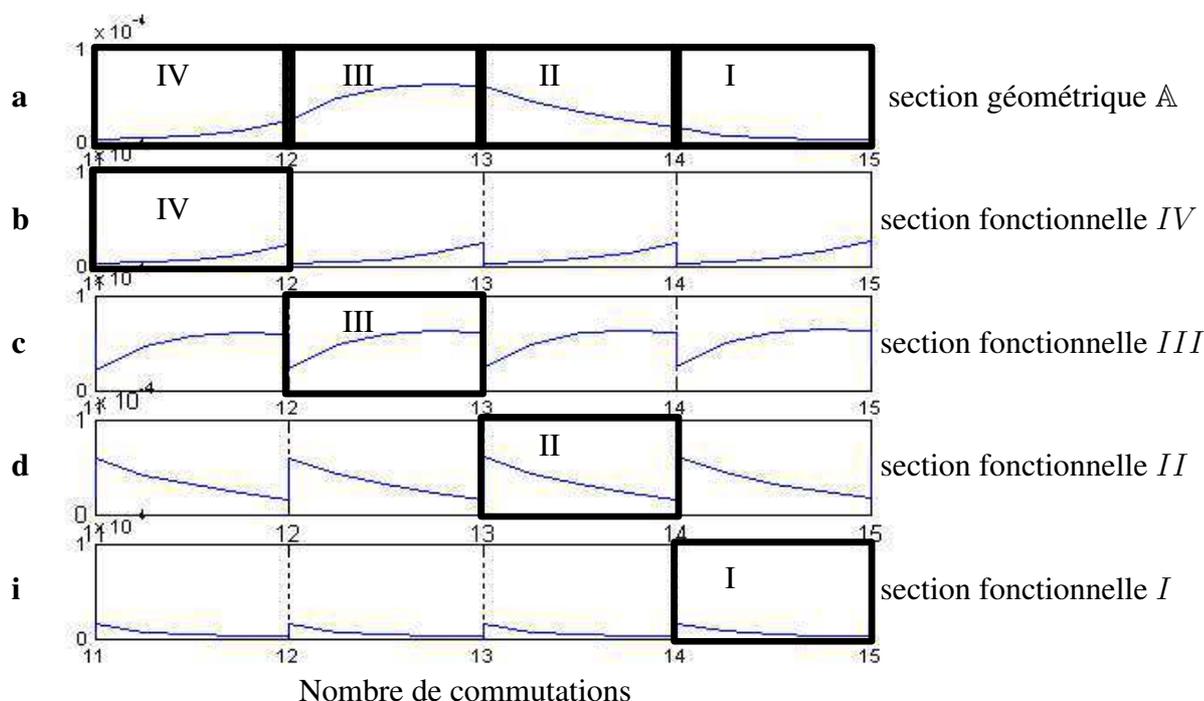


FIG. 2.15 – Les sections fonctionnelles *IV*, *III*, *II*, *I*, traversent la section géométrique  $\mathbb{A}$  avec les commutations successives. **a**) Profil de concentration à l'entrée de la section géométrique  $\mathbb{A}$  en fonction de 4 commutations (de la 12<sup>ème</sup> commutation à la 15<sup>ème</sup> commutation). **b**), **c**), **d**), **i**) Profils de concentration à l'entrée des sections fonctionnelles *IV*, *III*, *II*, *I* (de la 12<sup>ème</sup> commutation à la 15<sup>ème</sup> commutation).

## 2.4 Conclusion

Dans ce chapitre, la modélisation rigoureuse d'un lit mobile simulé a été présentée. Cette modélisation consiste à connecter les modèles des colonnes chromatographiques et à introduire les effets

des commutations. Les différentes approches de la modélisation d'une colonne chromatographique ont été également présentées. Une colonne chromatographique peut être modélisée par des équations différentielles aux dérivées partielles ou bien par une série de mélangeurs en cascade parfaitement agités. La complexité des équations aux dérivées partielles varie selon les phénomènes physiques prises en compte (dispersion axiale, résistance au transfert de matière,...) alors que la modélisation par des mélangeurs parfaitement agités néglige la dispersion axiale et considère que l'équilibre entre les deux phases est instantanément établi dans chaque mélangeur.

# Chapitre 3

## Conception et optimisation du procédé

### 3.1 Introduction

L'intérêt de ce chapitre consiste d'une part à analyser dans quelles conditions opérationnelles le lit mobile simulé peut effectuer une séparation "*complète*" des composants et d'autre part, comment ces conditions peuvent être optimisées pour que les opérations soient moins coûteuses. Les variables qui représentent les conditions opérationnelles sont les débits de la phase liquide dans les quatre sections ainsi que la période de commutation des robinets qui est équivalente au débit de la phase solide d'un lit mobile vrai.

L'optimisation de certaines variables dimensionnelles est également abordée dans ce chapitre. Généralement les variables dimensionnelles sont les dimensions de la colonne (sa longueur et son diamètre), le diamètre des particules de la phase solide, le nombre total de colonnes et la distribution de ces colonnes dans les sections.

Étant donné la grande complexité du procédé, le grand nombre de paramètres et le fait que le procédé soit lent, l'optimisation par des méthodes expérimentales et empiriques peut être très lente et très coûteuse [81],[69]. Par conséquent, il est indispensable de développer des méthodes mathématiques et des méthodes basées sur des simulations numériques. Pour cette raison, ce chapitre consiste en un survol des travaux existants dans la littérature impliquant ainsi l'utilisation de méthodes et d'outils destinés à la conception et à l'optimisation du procédé.

Une grande partie de ces méthodes est basée sur le modèle d'un lit mobile vrai comme une approximation du lit mobile simulé. Cependant, un lit mobile vrai utilisé pour concevoir le lit mobile simulé doit être *équivalent* à celui-ci; pour cela, ce chapitre commence par la présentation du concept d'équivalence entre les deux procédés.

### 3.2 Équivalence entre le lit mobile simulé (LMS) et le lit mobile vrai (LMV)

Rappelons tout d'abord que le lit mobile vrai est un concept théorique dans lequel la phase solide est vraiment mobile. Or la mobilité d'une phase solide n'est pas possible pour des raisons techniques, telle que la dégradation de la phase solide qui est engendrée par son mouvement [20]. Pour mettre

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

en place ce procédé (le lit mobile vrai), le mouvement de la phase solide est simulé en déplaçant les robinets dans le sens de l'écoulement de la phase liquide, ce qui n'est autre que le concept du lit mobile simulé.

Toutefois, le déplacement des robinets introduit une source de difficulté considérable et un temps de calcul important en vue de la conception et de l'optimisation. Par conséquent, de nombreux travaux utilisent le concept d'un lit mobile vrai pour calculer ces variables opérationnelles (les débits). Puis, en utilisant les équations d'équivalence (développées ci-après), les variables opérationnelles du lit mobile simulé en sont déduites.

Afin d'établir l'équivalence entre le lit mobile vrai et le lit mobile simulé, il faut prendre en compte les trois règles suivantes [24] :

1. La période de commutation doit être calculée en prenant la vitesse du solide égale à la vitesse du déplacement des robinets comme le montre la figure 3.1, **a**. Ceci se traduit mathématiquement par la relation suivante :

$$\mathcal{T}_{sw} = \frac{L}{u_S} \quad (3.1)$$

où :

- $u_S$  : la vitesse du solide [ $cm/sec$ ].
- $\mathcal{T}_{sw}$  : la période de commutation [ $sec$ ].
- $L$  : la longueur de colonne [ $cm$ ].

Les débits volumiques de la phase liquide et de la phase solide sont calculés en fonction des vitesses des deux phases par les équations suivantes :

$$Q^S = (1 - \varepsilon)A_c u_S \quad (3.2)$$

$$Q = \varepsilon A_c u \quad (3.3)$$

- $Q^S$  : le débit volumique de la phase solide [ $cm^3/sec$ ].
- $u$  : la vitesse de la phase liquide. [ $cm/sec$ ].
- $Q$  : le débit volumique de la phase liquide [ $cm^3/sec$ ].
- $A_c$  : la surface d'une section de la colonne [ $cm^2$ ].
- $\varepsilon$  : la porosité du lit.

En exprimant l'équation (3.1) en fonction du débit volumique du solide (3.2), la période de commutation est alors calculée comme suit :

$$\mathcal{T}_{sw} = \frac{(1 - \varepsilon)V_c}{Q^S} \quad (3.4)$$

où :

- $V_c$  : le volume de la colonne [ $cm^3$ ].

2. La vitesse de la phase fluide dans une section  $j$  d'un lit mobile simulé ( $u_{LMS}^{(j)}$ ), doit être égale à la vitesse de la phase fluide dans une section  $j$  d'un lit mobile vrai équivalent ( $u^{(j)}$ ) ajoutée à la vitesse de la phase solide  $u_S$  ( comme le montre la figure 3.1, **b**), à savoir :

$$u_{LMS}^{(j)} = u^{(j)} + u_S \quad ; \quad j \in \{I, II, III, IV\} \quad (3.5)$$

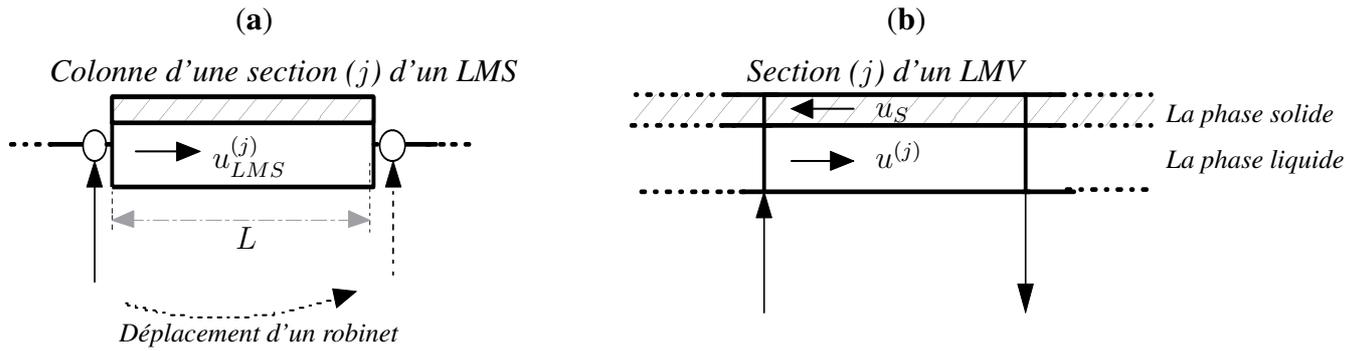


FIG. 3.1 – L'équivalence entre le lit mobile vrai (LMV) et le lit mobile simulé (LMS). **a)** Dans un LMS, les robinets se déplacent d'une colonne de longueur  $L$  à une vitesse égale à celle de la phase solide d'un LMV équivalent. **b)** La vitesse de la phase liquide dans une section  $j$  d'un LMS ( $u_{LMS}^{(j)}$ ) est égale à la vitesse de la phase liquide dans une section  $j$  d'un LMV équivalent ( $u^{(j)}$ ) ajoutée à la vitesse de la phase solide ( $u_S$ )

L'utilisation de l'équation (3.2) et de l'équation (3.3) dans l'équation d'équivalence (3.5) aboutit à l'équation d'équivalence en terme de débit volumique, à savoir :

$$Q_{LMS}^{(j)} = Q^{(j)} + \frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} Q^S \quad (3.6)$$

où :

- $Q_{LMS}^{(j)}$  : le débit volumique du liquide dans une section  $j$  dans le lit mobile simulé [ $cm^3/sec$ ].
- $Q^{(j)}$  : le débit volumique du liquide dans une section  $j$  dans le lit mobile vrai [ $cm^3/sec$ ].

3. Les débits externes d'un lit mobile simulé doivent être égaux aux débits externes d'un lit mobile vrai équivalent :

$$Q_{LMS}^{(k)} = Q^{(k)} \quad (3.7)$$

où  $k$  est l'indice des débits externes ( $Ex$ ,  $Raf$ ,  $F$ ,  $D$ ) qui représentent respectivement l'extraction, le raffinage, l'alimentation et la désorption.

Notons que les relations d'équivalence sont considérées en régime stationnaire pour les deux modèles des procédés (LMS et LMV). L'utilisation d'un modèle du lit mobile vrai en régime stationnaire pour concevoir et optimiser un lit mobile simulé est une simplification importante puisqu'elle revient à négliger la dynamique transitoire et la dynamique cyclique qui caractérisent le lit mobile simulé. Une modélisation rigoureuse du lit mobile simulé qui tient compte de la dynamique cyclique est nécessaire pour obtenir des résultats plus fiables. Cependant, un modèle du lit mobile vrai peut être utilisé pour une estimation initiale des variables, ce qui accélère la recherche du point de départ de l'optimisation [33].

### 3.3 La conception opérationnelle du procédé

La conception opérationnelle désigne le calcul des variables opérationnelles du procédé qui aboutissent à une séparation "complète" des composants. Les variables opérationnelles sont les débits de

la phase liquide dans les quatre sections et le débit de la phase solide. Généralement, la démarche est développée dans un premier temps pour calculer les variables opérationnelles du lit mobile vrai et ensuite, déduire les variables opérationnelles d'un lit mobile simulé par les équations d'équivalence (3.4), (3.6) et (3.7).

Les variables opérationnelles sont calculées par *les conditions de séparation* qui sont des limites (intervalles) imposées sur les débits dans les sections afin d'obtenir une séparation "*complète*". Ces conditions sont présentées dans la section suivante.

### 3.3.1 Les conditions de séparation

Dans le premier chapitre (section 1.4.2), le mécanisme de séparation dans le procédé a été expliqué. Il reste à savoir dans quelles conditions cette séparation peut être effectuée. La solution consiste à régler les débits du fluide et celui du solide dans les quatre sections de telle sorte que le composant le plus adsorbé soit amené vers l'extraction et celui le moins adsorbé vers le raffinage. Le réglage de ces débits donne les conditions de séparation aboutissant à une séparation *complète*.

Les conditions de séparation sont présentées premièrement dans cette section, ensuite les approches existantes basées sur ces conditions sont abordées. Ces approches correspondent à la théorie de la marge de sécurité (*Safety margin theory*), la théorie triangulaire (*triangle theory*), la théorie de l'onde stationnaire (*Sanding wave design*) et la méthodologie du volume de séparation (*Separation volume methodology*).

Les conditions de séparation présentées dans la suite sont basées sur les considérations suivantes :

- La dispersion axiale et la résistance au transfert de matière sont négligées.
- L'équilibre entre les deux phases est décrite par un isotherme linéaire non compétitif ( $q_i = k_i C_i$ ),  $i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}$ .
- La porosité du lit est la même dans toutes les colonnes.
- Les opérations sont isothermiques.
- La phase liquide est incompressible (procédé dit *mode isocratique*).

Dans une section d'un lit mobile vrai, la quantité d'un composant  $i$  est partagée entre les deux phases. Une partie de cette quantité est portée par la phase liquide avec un débit massique  $\dot{M}_i$ , et l'autre partie est portée par la phase solide avec un débit massique  $\dot{M}_i^S$ . Les débits massiques du composant  $i$  sont liés aux débits volumiques de la phase liquide  $Q$  et de la phase solide  $Q^S$  par les relations suivantes :

$$\dot{M}_i = QC_i \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (3.8)$$

$$\dot{M}_i^S = Q^S q_i \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (3.9)$$

où:

- $\dot{M}_i$  : le débit massique du composant  $i$  dans la phase liquide [ $g/s$ ].
- $\dot{M}_i^S$  : le débit massique du composant  $i$  dans la phase solide [ $g/s$ ].
- $C_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase liquide [ $g/cm^3$ ].
- $q_i$  : la concentration du composant  $i$  dans la phase solide [ $g/cm^3$ ].

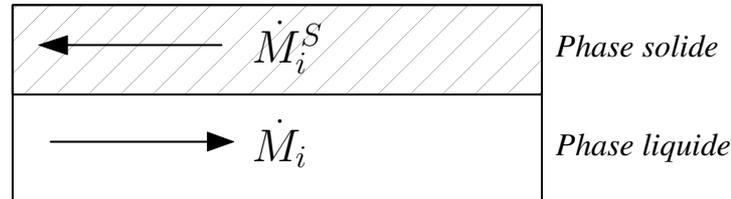


FIG. 3.2 – Une section d'un lit mobile vrai. Quand il s'agit d'une adsorption d'un composant  $i$ , son débit massique dans la phase solide ( $\dot{M}_i^S$ ) doit être supérieur à son débit massique dans la phase liquide ( $\dot{M}_i$ ), et quand il s'agit d'une désorption d'un composant  $i$  alors, son débit massique dans la phase solide ( $\dot{M}_i^S$ ) doit être inférieur à son débit massique dans la phase liquide ( $\dot{M}_i$ )

La figure 3.2 montre une section d'un lit mobile vrai dans laquelle la relation entre  $\dot{M}_i^S$  et  $\dot{M}_i$  doit être réglée selon l'opération effectuée dans cette section -soit adsorption, soit désorption-.

Rappelons que l'adsorption correspond à l'action d'attraper un composant et de l'accumuler sur la surface de la phase solide alors que la désorption est l'action inverse qui consiste à enlever le composant déjà adsorbé par la phase solide et de l'accumuler dans la phase liquide. Par conséquent, pour effectuer une opération d'adsorption, le débit massique d'un composant  $i$  dans la phase solide doit être supérieur à son débit massique dans la phase liquide ( $\dot{M}_i^S > \dot{M}_i$ ). Inversement, quand il s'agit d'une désorption, le débit massique du composant  $i$  dans la phase solide doit être inférieur à son débit massique dans la phase liquide ( $\dot{M}_i^S < \dot{M}_i$ ) [7].

Ainsi, les relations entre le débit massique dans la phase solide et celui dans la phase liquide pour chaque composant sont à l'origine des conditions de séparation développées ci-après.

Considérons qu'un composant **A** est plus adsorbé qu'un composant **B** ( $k_A > k_B$ ). Selon le mécanisme de séparation dans un lit mobile vrai (chapitre 1 section 1.4.2), chaque composant est adsorbé, ou bien désorbé selon la section dans laquelle il circule. Ainsi, les conditions de séparation sont présentées selon la section, à savoir :

1. **La condition de séparation dans la section I** : dans la première section les deux composants **A** et **B** sont désorbés -la quantité du composant **B** dans le solide est négligeable donc la désorption du composant **A** est favorisée-. Par conséquent les débits massiques dans le solide doivent être inférieurs à ceux dans le liquide pour les deux composants :

$$\dot{M}_A^{S(I)} < \dot{M}_A^{(I)} \quad (3.10)$$

$$\dot{M}_B^{S(I)} < \dot{M}_B^{(I)} \quad (3.11)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

Pour en déduire la condition de séparation en fonction des débits volumiques -qui sont manipulables- les relations (3.8) et (3.9) sont utilisées dans les équations (3.10) et (3.11) pour donner :

$$Q^S q_A < Q^{(I)} C_A \quad (3.12)$$

$$Q^S q_B < Q^{(I)} C_B \quad (3.13)$$

Selon l'hypothèse d'un équilibre linéaire ( $q_i = k_i C_i$ ) les équations ci-dessus deviennent :

$$\frac{Q^{(I)}}{Q^S} > k_A \quad (3.14)$$

$$\frac{Q^{(I)}}{Q^S} > k_B \quad (3.15)$$

Comme  $k_A > k_B$ , puisque le composant **A** est plus fortement retenu par la phase solide que le composant **B**, l'inégalité (3.15) est une conséquence de (3.14) et peut donc être supprimée. Alors on arrive à déterminer la condition de séparation dans la première section :

$$\frac{Q^{(I)}}{Q^S} > k_A \quad (3.16)$$

Cela signifie que, pour effectuer la désorption des deux composants **A** et **B** dans la première section, le rapport du débit volumique du liquide sur celui du solide doit être supérieur à  $k_A$  dans cette section .

2. **La condition de séparation dans la section II** : pour que les deux composants (**A** et **B**) soient respectivement dirigés vers l'extraction et le raffinage, les deux conditions suivantes doivent être établies :

(a) le composant **B** est désorbé dans cette section et conduit par la phase liquide vers la troisième section . Ceci implique que son débit massique dans la phase solide doit être inférieur à celui dans la phase liquide, à savoir :

$$\dot{M}_B^{S(II)} < \dot{M}_B^{(II)} \quad (3.17)$$

En utilisant les équations (3.8), (3.9) et en considérant un équilibre linéaire on obtient la condition suivante :

$$\frac{Q^{(II)}}{Q^S} > k_B \quad (3.18)$$

(b) le composant **A** est adsorbé dans la deuxième section et conduit vers la première section par la phase solide. Ceci implique que son débit massique dans le solide doit être supérieur à celui dans le liquide:

$$\dot{M}_A^{S(II)} > \dot{M}_A^{(II)} \quad (3.19)$$

En utilisant les relations (3.8), (3.9) et en considérant un équilibre linéaire cela donne la condition suivante :

$$\frac{Q^{(II)}}{Q^S} < k_A \quad (3.20)$$

La combinaison des deux équations (3.18) et (3.20) définit la condition de séparation dans la deuxième section, à savoir :

$$k_B < \frac{Q^{(II)}}{Q^S} < k_A \quad (3.21)$$

3. **La condition de séparation dans la section III** : la situation dans cette section ne change pas par rapport à la deuxième section, les composants **A** et **B** continuent d'être respectivement adsorbés et désorbés . Ce qui aboutit à une condition de séparation semblable à la deuxième section :

$$k_B < \frac{Q^{(III)}}{Q^S} < k_A \quad (3.22)$$

Mais, étant donné que le débit volumique dans la troisième section est supérieur à celui dans la deuxième section selon le bilan dans le nœud d'alimentation ( $Q^{(III)} = Q^{(II)} + Q_F$ ), les conditions de séparation dans la deuxième et la troisième section deviennent respectivement:

$$\frac{Q^{(II)}}{Q^S} > k_B \quad (3.23)$$

$$\frac{Q^{(III)}}{Q^S} < k_A \quad (3.24)$$

D'après l'équation (3.23), le débit massique du composant **B** dans le liquide est supérieur à son débit massique dans le solide. Ceci favorise la désorption du composant **B** dans la deuxième section. Et d'après l'équation (3.24) le débit massique du composant **A** dans le liquide est inférieur à son débit massique dans le solide favorisant ainsi l'adsorption du composant **A** dans la troisième section. Ceci traduit le mécanisme de séparation dans le lit mobile vrai, où la deuxième section est principalement destinée à désorber le composant **B**, alors que la troisième section est principalement destinée à adsorber le composant **A**.

Les deux équations (3.23) et (3.24) peuvent être écrites sous la forme compacte suivante :

$$k_B < \frac{Q^{(II)}}{Q^S} < \frac{Q^{(III)}}{Q^S} < k_A \quad (3.25)$$

4. **La condition de séparation dans la section IV** : dans cette section, les deux composants sont adsorbés -la quantité du composant **A** dans le liquide est négligeable donc l'adsorption du composant **B** est favorisée-. Par conséquent, les débits massiques des deux composants dans la

phase solide doivent être supérieurs à ceux dans la phase liquide. En faisant des manipulations semblables aux précédentes on obtient les conditions de séparation suivantes :

$$\frac{Q^{(IV)}}{Q^S} < k_A \quad (3.26)$$

$$\frac{Q^{(IV)}}{Q^S} < k_B \quad (3.27)$$

Vu que  $k_B < k_A$ , la condition de séparation dans la quatrième section est limitée à une seule inégalité, à savoir :

$$\frac{Q^{(IV)}}{Q^S} < k_B \quad (3.28)$$

Les conditions de séparation dans un lit mobile vrai peuvent être rassemblées dans le tableau 3.1 suivant :

section I	$\frac{Q^{(I)}}{Q^S} > k_A$
section II	$\frac{Q^{(II)}}{Q^S} > k_B$
section III	$\frac{Q^{(III)}}{Q^S} < k_A$
section IV	$\frac{Q^{(IV)}}{Q^S} < k_B$

TAB. 3.1 – Les conditions de séparation dans un lit mobile vrai en considérant un équilibre linéaire non compétitif entre les deux phases.

En utilisant l'équation d'équivalence (3.6) entre le lit mobile simulé et le lit mobile vrai dans les conditions de séparation d'un lit mobile vrai (tableau 3.1), les conditions de séparation dans le lit mobile simulé peuvent être ainsi obtenues, à savoir :

section I	$\frac{Q_{LMS}^{(I)}}{Q^S} - \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} > k_A$
section II	$\frac{Q_{LMS}^{(II)}}{Q^S} - \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} > k_B$
section III	$\frac{Q_{LMS}^{(III)}}{Q^S} - \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} < k_A$
section IV	$\frac{Q_{LMS}^{(IV)}}{Q^S} - \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} < k_B$

TAB. 3.2 – Les conditions de séparation dans un lit mobile simulé en considérant un équilibre linéaire non compétitif entre les deux phases.

Plusieurs approches concernant la conception opérationnelle du procédé qui existent dans la littérature, sont basées sur les conditions de séparation développées précédemment. Ces approches sont présentées dans la section suivante.

### 3.3.2 La théorie de la marge de sécurité "*Security margin theory*"

Les conditions de séparation sont présentées par [20] en utilisant une marge de sécurité notée ( $\gamma$ ), à savoir :

$$\gamma_i = \frac{Q^S}{Q^{(j)}} k_i; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}; \quad j \in \{I, II, III, IV\} \quad (3.29)$$

en utilisant cette marge ( $\gamma_i$ ), les conditions de séparation peuvent être présentées de la façon suivante :

section I	$\gamma_{\mathbf{A}} < 1; \quad \gamma_{\mathbf{B}} < 1$
section II	$\gamma_{\mathbf{A}} > 1; \quad \gamma_{\mathbf{B}} < 1$
section III	$\gamma_{\mathbf{A}} > 1; \quad \gamma_{\mathbf{B}} < 1$
section IV	$\gamma_{\mathbf{A}} > 1; \quad \gamma_{\mathbf{B}} > 1$

TAB. 3.3 – Les conditions de séparation dans un lit mobile vrai présentées par [20] sous la forme d'une marge de sécurité notée ( $\gamma$ ) en considérant un équilibre linéaire non compétitif.

Aussi, une autre façon permet de récrire ces conditions en fonction d'une marge de sécurité  $\beta^{(j)} > 1$  [47] :

section I	$\frac{Q^{(I)}}{Q^S} = k_{\mathbf{A}} \beta^{(I)}$
section II	$\frac{Q^{(II)}}{Q^S} = k_{\mathbf{B}} \beta^{(II)}$
section III	$\frac{Q^{(III)}}{Q^S} = \frac{k_{\mathbf{A}}}{\beta^{(III)}}$
section IV	$\frac{Q^{(IV)}}{Q^S} = \frac{k_{\mathbf{B}}}{\beta^{(IV)}}$

TAB. 3.4 – Les conditions de séparation dans un lit mobile vrai présentées par l'intermédiaire des marges  $\beta^{(j)} > 1$  en considérant un équilibre linéaire non compétitif. Ces marges doivent être supérieures à 1 pour effectuer une séparation complète.

Étant donné que le débit dans la troisième section est supérieur à celui dans la deuxième section, la condition suivante s'avère nécessaire :

$$\beta^{(II)} \beta^{(III)} < \frac{k_{\mathbf{A}}}{k_{\mathbf{B}}} \quad (3.30)$$

Pour effectuer une séparation complète, les marges  $\beta$  doivent être supérieures à 1 :

$$\beta^{(j)} > 1 \quad ; \quad j \in (I, II, III, IV) \quad (3.31)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

En considérant que les variables  $\beta$  sont égales, les équations (3.30) et (3.31) peuvent être écrites sous la forme compacte suivante :

$$\sqrt{\frac{k_A}{k_B}} > \beta^{(j)} > 1 \quad ; \quad j \in (I, II, III, IV) \quad (3.32)$$

Quand les valeurs de  $k_A$  et de  $k_B$  sont très proches l'équation (3.32) devient :

$$1_{(k_A \rightarrow k_B)} > \beta^{(j)} > 1 \quad ; \quad j \in (I, II, III, IV) \quad (3.33)$$

Cette équation (3.33) montre que le choix de la variable  $\beta$  est très limité quand les valeurs numériques de  $k_A$  et de  $k_B$  sont très proches ce qui correspond à une séparation difficile. Généralement, quand le facteur de séparation ( $k_A/k_B$ ) est inférieur à 1.4, la séparation est considérée comme difficile [32].

### 3.3.3 La théorie triangulaire "*Triangle theory*"

Dans cette approche, les paramètres caractérisant les conditions de séparation sont représentés sous une forme graphique dans laquelle la région permettant une séparation complète prend une forme triangulaire, d'où le nom de cette méthodologie : la théorie triangulaire.

Les conditions de séparation développées par la théorie triangulaire sont, en principe, les mêmes que la théorie de la marge de sécurité, sauf qu'ici la porosité interne est prise en compte en supposant la présence d'une troisième phase liquide stagnante dans la phase solide. La théorie triangulaire est basée sur la théorie d'équilibre où la dispersion axiale et la résistance au transfert de matière sont négligées.

Le paramètre clé qui caractérise cette théorie est conventionnellement noté  $m$  dans la littérature correspondante. Ce paramètre caractérise le rapport entre le débit liquide et le débit solide dans une section  $j$ , tout en tenant compte de la présence d'un liquide stagnant dans le solide d'une porosité interne  $\varepsilon_p$  [16], le paramètre clé  $m$  est présenté par l'équation suivante :

$$m_j = \frac{Q^{(j)} - \varepsilon_p Q^S}{Q^S (1 - \varepsilon_p)} \quad (3.34)$$

où :

–  $\varepsilon_p$  : la porosité interne (le rapport entre le volume du liquide et celui du solide dans la phase liquide stagnante).

En utilisant les équations d'équivalence entre le lit mobile simulé et le lit mobile vrai (3.6) et (3.4) le rapport  $m$  devient pour un lit mobile simulé :

$$m_j = \frac{Q_{LMS}^{(j)} \mathcal{T}_{sw} - V_c \varepsilon^*}{V_c (1 - \varepsilon^*)} \quad (3.35)$$

où  $\varepsilon^*$  est la porosité totale du lit calculée par l'équation suivante :

$$\varepsilon^* = \varepsilon + (1 - \varepsilon) \varepsilon_p \quad (3.36)$$

$\varepsilon$  : est la porosité externe du lit (le rapport entre le volume du liquide et celui du solide dans la colonne).

– **Les conditions de séparation dans le cadre de la théorie triangulaire :**

Définissons tout d'abord le flux  $f_i^j$  d'un composant  $i$  dans une section  $j$

$$f_i^j = Q^S(1 - \varepsilon_p)(m_j C_i^j - q_i^j) \quad (3.37)$$

Pour effectuer une séparation complète, ce flux  $f_i^j$  doit satisfaire les conditions suivantes [56]:

section I	$f_{\mathbf{A}}^I > 0$	$f_{\mathbf{B}}^I > 0$
section II	$f_{\mathbf{A}}^{II} < 0$	$f_{\mathbf{B}}^{II} > 0$
section III	$f_{\mathbf{A}}^{III} < 0$	$f_{\mathbf{B}}^{III} > 0$
section IV	$f_{\mathbf{A}}^{IV} < 0$	$f_{\mathbf{B}}^{IV} < 0$

TAB. 3.5 – Les conditions de séparation du lit mobile vrai dans le cadre de la théorie triangulaire en fonction du flux  $f_i^j$  exprimé par l'équation 3.37.

En utilisant l'équation du flux (3.37), les dernières inégalités (tableau 3.5) peuvent s'exprimer en fonction des paramètres  $m$ , à savoir :

$$m_1 > \frac{q_{\mathbf{A}}^I}{C_{\mathbf{A}}^I}; \quad m_1 > \frac{q_{\mathbf{B}}^I}{C_{\mathbf{B}}^I} \quad (3.38)$$

$$\frac{q_{\mathbf{B}}^{II}}{C_{\mathbf{B}}^{II}} < m_2 < \frac{q_{\mathbf{A}}^{II}}{C_{\mathbf{A}}^{II}} \quad (3.39)$$

$$\frac{q_{\mathbf{B}}^{III}}{C_{\mathbf{B}}^{III}} < m_3 < \frac{q_{\mathbf{A}}^{III}}{C_{\mathbf{A}}^{III}} \quad (3.40)$$

$$m_4 < \frac{q_{\mathbf{A}}^{IV}}{C_{\mathbf{A}}^{IV}}; \quad m_4 < \frac{q_{\mathbf{B}}^{IV}}{C_{\mathbf{B}}^{IV}} \quad (3.41)$$

Ces équations représentent les conditions de séparation dans le cadre de la théorie triangulaire. Selon le type de l'isotherme utilisé, ces équations peuvent être réécrites comme suit :

**(a) Les conditions de séparation dans le cadre de la théorie triangulaire en considérant un équilibre linéaire non compétitif**

Dans le cas où l'équilibre entre les deux phases est représenté par un isotherme linéaire non compétitif ( $q_i = k_i C_i$ ) et en prenant en compte  $m_3 > m_2$ , les conditions de séparation dans le cadre de la théorie triangulaire, les équations (3.38), (3.39), (3.40) et (3.41) deviennent :

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

section I	$k_{\mathbf{A}} < m_1 < \infty$
section II	$m_2 > k_{\mathbf{B}}$
section III	$m_3 < k_{\mathbf{A}}$
section IV	$\frac{-\varepsilon_p}{(1-\varepsilon_p)} < m_4 < k_{\mathbf{B}}$
sous la condition	$m_3 > m_2$ puisque $Q^{(III)} > Q^{(II)}$

TAB. 3.6 – Les conditions de séparation du lit mobile vrai dans le cadre de la théorie triangulaire en considérant un équilibre **linéaire non compétitif** entre les deux phases ( $k_{\mathbf{A}} > k_{\mathbf{B}}$ ).

La condition  $m_3 > m_2$  vient du fait que le débit dans la troisième section est naturellement supérieur à celui dans la deuxième section selon le bilan dans le nœud d'alimentation où  $Q^{(III)} = Q^{(II)} + Q_F$  (voir section 1.5.1, chapitre 1).

Quand l'équilibre entre les deux phases est décrit par un isotherme linéaire ( $q_i = k_i C_i$ ), la région de séparation complète est un triangle rectangle (**abw**) dans le plan  $(m_2, m_3)$ . La figure 3.3 représente le plan  $(m_2, m_3)$  et montre les zones de séparation suivantes :

1. **La zone de la séparation complète (le triangle abw)** : en choisissant les variables  $m_2$  et  $m_3$  dans cette zone (**abw**) et en considérant également les contraintes sur  $m_4$  et  $m_1$ , une séparation complète des deux composants **A** et **B** (purs à 100%) est obtenue . Ceci signifie que le rapport des débits du liquide et du solide dans les sections *II* et *III* permet de réaliser la condition de séparation dans ces sections où le composant **A** doit être adsorbé dans la troisième section ( $m_3 < k_{\mathbf{A}}$ ) et le composant **B** doit être désorbé dans la deuxième section ( $k_{\mathbf{B}} < m_2$ ). Également, la contrainte sur  $m_1$  ( $k_{\mathbf{A}} < m_1 < \infty$ ) permet de réaliser la condition de séparation dans la section *I* où le composant **A** est désorbé; la contrainte sur  $m_4$  ( $\frac{-\varepsilon_p}{(1-\varepsilon_p)} < m_4 < k_{\mathbf{B}}$ ) permet de réaliser la condition de séparation dans la section *IV* où le composant **B** est adsorbé.
2. **La zone de la séparation qui permet d'obtenir seulement le composant A pur** : cette zone est située au-dessus du triangle (**abw**) et ne permet d'extraire que le composant **A** pur à 100%. Dans cette zone, la variable  $m_3$  est supérieure à  $k_{\mathbf{A}}$ , cela signifie que dans la troisième section le débit massique du composant **A** dans le liquide est supérieur à celui dans le solide. Par conséquent, ici le composant **A** est désorbé conduit donc à la contamination du raffinat tandis que le composant **A** est pur à 100% dans l'extraction .
3. **la zone de la séparation qui permet d'obtenir seulement le composant B pur** : cette zone est située à gauche du triangle (**abw**) et ne permet d'extraire que le composant **B** pur à 100%. Dans cette zone, la variable  $m_2$  est inférieure à  $k_{\mathbf{B}}$  ceci signifie que dans la section *II* le débit massique du composant **B** dans le liquide est inférieur à celui dans le solide. Par conséquent, ici le composant **B** est adsorbé ce qui mène à la contamination de l'extrait tandis que le composant **B** est pur à 100% dans le raffinage.

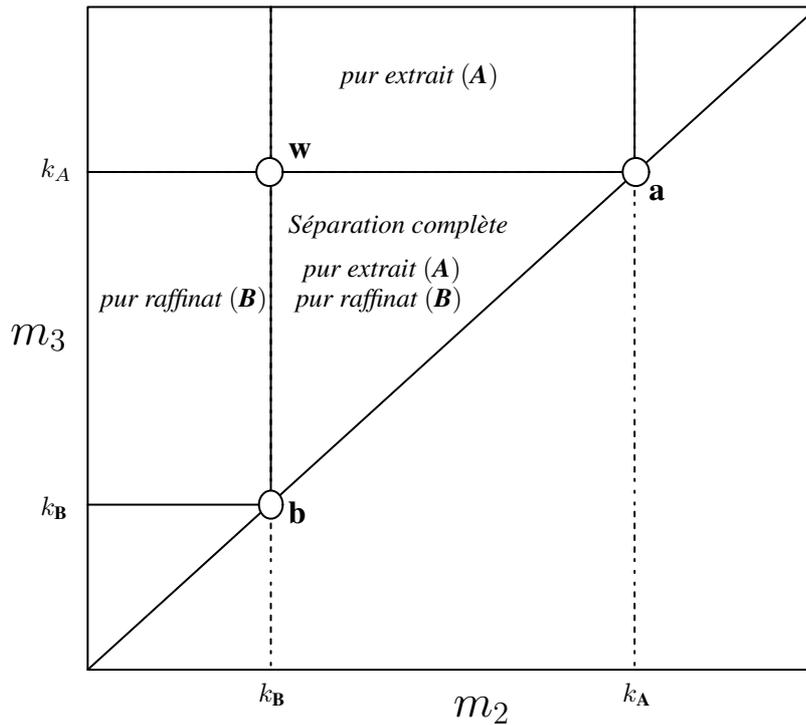


FIG. 3.3 – Plan de séparation ( $m_2, m_3$ ) contenant plusieurs zones de séparation pour un isotherme **linéaire non compétitif**. La zone ( $abw$ ) permet de réaliser une séparation complète des deux composants (**A** et **B**). La zone qui est située exactement au-dessus du triangle ( $abw$ ) permet de séparer le composant (**A**) pur à 100% alors que la zone qui est située exactement à gauche du triangle ( $abw$ ) permet de séparer le composant (**B**) pur à 100%.

### (b) Les conditions de séparation dans le cadre de la théorie triangulaire en considérant un équilibre non linéaire compétitif

Supposons que l'équilibre entre les deux phases soit non linéaire et décrit par l'isotherme compétitif de Langmuir binaire suivant :

$$q_i = \frac{H_i C_i}{1 + k_A C_A + k_B C_B} \quad i \in \mathbf{A}, \mathbf{B} \quad (3.42)$$

où  $H_i = q_{mi} k_i$  est le coefficient de Henry.

Les conditions de séparation exprimées par les équations (3.38), (3.39), (3.40) et (3.41) dans ce cas deviennent [56] [3][55] :

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

section I	$H_{\mathbf{A}} < m_1 < \infty$
section II	$m_2 > m_{2,min}(m_2, m_3, C_{\mathbf{A}}^F, C_{\mathbf{B}}^F)$
section III	$m_3 < m_{3,max}(m_2, m_3, C_{\mathbf{A}}^F, C_{\mathbf{B}}^F)$
section IV	$\frac{-\epsilon_p}{1-\epsilon_p} < m_4 < m_{4,max}(m_2, m_3, C_{\mathbf{B}}^F)$
sous la condition	$m_3 > m_2$

TAB. 3.7 – Les conditions de séparation du lit mobile vrai dans le cadre de la théorie triangulaire en considérant un équilibre **compétitif non linéaire** entre les deux phases.

Dans ce tableau 3.7, la limite inférieure de  $m_2$  ( $m_{2,min}(m_2, m_3, C_{\mathbf{A}}^F, C_{\mathbf{B}}^F)$ ), la limite supérieure de  $m_3$  ( $m_{3,max}(m_2, m_3, C_{\mathbf{A}}^F, C_{\mathbf{B}}^F)$ ) et la limite supérieure de  $m_4$  ( $m_{4,max}(m_2, m_3, C_{\mathbf{B}}^F)$ ) sont calculées dans le régime stationnaire en fonction des concentrations dans l'alimentation ( $C_i^F, i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}$ ). Par exemple, la limite supérieure de  $m_4$  exprimée par l'équation (3.41) ( $q_{\mathbf{B}}^{IV}/C_{\mathbf{B}}^{IV}$ ) est brièvement calculée comme suit :

étant donné que le composant **A** est *absent* dans la section *IV*, l'équation de l'isotherme (3.42) pour le composant **B** dans cette section devient :

$$q_{\mathbf{B}}^{IV} = \frac{H_{\mathbf{B}}C_{\mathbf{B}}^{IV}}{1 + k_{\mathbf{B}}C_{\mathbf{B}}^{IV}} \quad (3.43)$$

en remplaçant cette équation (3.43) dans la limite supérieure de  $m_4$  et en considérant la solution stationnaire en fonction de la concentration dans l'alimentation ( $C_{\mathbf{B}}^F$ ), on obtient :

$$m_4 < \frac{q_{\mathbf{B}}^{IV}}{C_{\mathbf{B}}^{IV}} = \frac{H_{\mathbf{B}}}{1 + k_{\mathbf{B}}C_{\mathbf{B}}^{IV}(C_{\mathbf{B}}^F)} \quad (3.44)$$

la manipulation de l'équation (3.44) aboutit enfin à l'expression analytique de la limite supérieure de  $m_4$  (les détails du calcul sont présentés dans [56]) :

$$m_{4,max}(m_2, m_3) = \frac{1}{2} \left( H_{\mathbf{B}} + m_3 + k_{\mathbf{B}}C_{\mathbf{B}}^F(m_3 - m_2) - \sqrt{[H_{\mathbf{B}} + m_3 + k_{\mathbf{B}}C_{\mathbf{B}}^F(m_2 - m_3)]^2 - 4H_{\mathbf{B}}m_3} \right) \quad (3.45)$$

La limite inférieure de  $m_2$  et la limite supérieure de  $m_3$  sont déterminées par les frontières de la zone (**arwb**) comme le montre la figure 3.4. Ces limites peuvent être calculées explicitement en fonction des coefficients d'adsorption ( $k_i, H_i, i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}$ ) et des concentrations d'alimentation ( $C_i^F, i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\}$ ) par les relations suivantes :

– La ligne droite **wf**

$$(H_{\mathbf{A}} - w_G(1 + k_{\mathbf{A}}C_{\mathbf{A}}^F))m_2 + k_{\mathbf{A}}C_{\mathbf{A}}^F w_G m_3 = w_G(H_{\mathbf{A}} - w_G) \quad (3.46)$$

où  $w_G > 0$  est la racine supérieure de l'équation quadratique suivante :

$$(1 + k_A C_A^F + k_B C_B^F)w^2 - [H_A(1 + k_B C_B^F) + H_B(1 + k_A C_A^F)]w + H_A H_B = 0 \quad (3.47)$$

– La ligne droite **wb**

$$(H_A - H_B(1 + k_A C_A^F))m_2 + k_A C_A^F H_B m_3 = H_B(H_A - H_B) \quad (3.48)$$

– La ligne droite **ab**

$$m_3 = m_2 \quad (3.49)$$

– La courbe **ra**

$$m_3 = m_2 + \frac{(\sqrt{H_A} - \sqrt{m_2})^2}{k_A C_A^F} \quad (3.50)$$

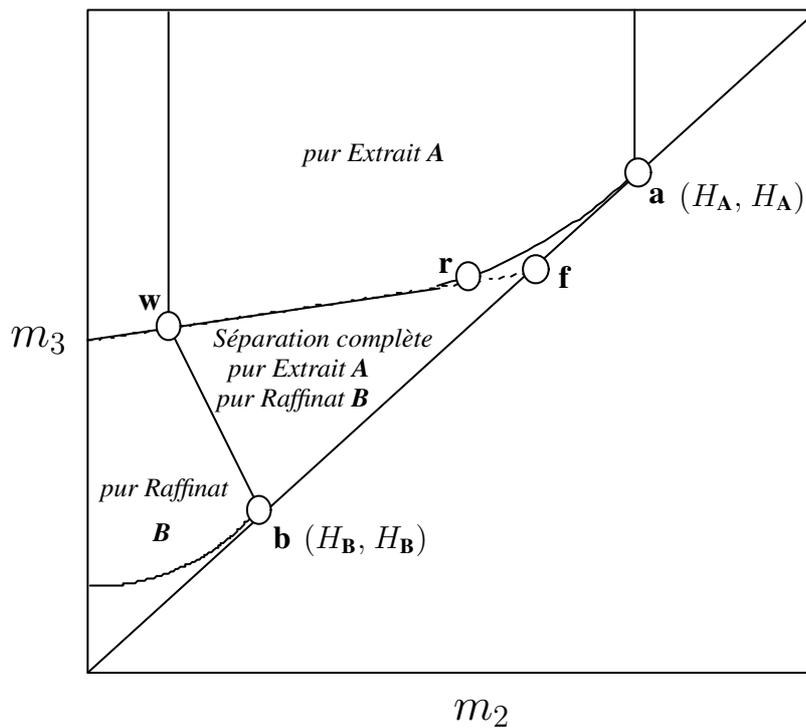


FIG. 3.4 – Plan de séparation  $(m_2, m_3)$  contenant plusieurs zones de séparation pour un système **non linéaire**. La zone (**arwbf**) permet de réaliser une séparation complète des deux composants (**A** et **B**).

Les points d'intersection sont déterminés par les coordonnées suivantes :

– Le point **a**

$$(H_A, H_A) \quad (3.51)$$

– Le point **b**

$$(H_{\mathbf{B}}, H_{\mathbf{B}}) \quad (3.52)$$

– Le point **f**

$$(w_G, w_G) \quad (3.53)$$

– Le point **r**

$$\left( \frac{w_G^2}{H_{\mathbf{A}}}, \frac{w_G[w_F(H_{\mathbf{A}} - w_G)(H_{\mathbf{A}} - H_{\mathbf{B}}) + H_{\mathbf{B}}w_G(H_{\mathbf{A}} - w_F)]}{H_{\mathbf{A}}H_{\mathbf{B}}(H_{\mathbf{A}} - w_F)} \right) \quad (3.54)$$

où  $w_F > 0$  est la racine inférieure de l'équation quadratique (3.47).

– Le point **w**

$$\left( \frac{H_{\mathbf{B}}w_G}{H_{\mathbf{A}}}, \frac{w_G[w_F(H_{\mathbf{A}} - H_{\mathbf{B}}) + H_{\mathbf{B}}(H_{\mathbf{B}} - w_F)]}{H_{\mathbf{B}}(H_{\mathbf{A}} - w_F)} \right) \quad (3.55)$$

Remarquons que la limite inférieure de  $m_1$  -représentée dans le tableau 3.7- est indépendante de  $m_2$ , de  $m_3$  et de la concentration d'alimentation  $C_i^F$  alors que la limite supérieure de  $m_4$  en dépend explicitement. Par contre, les contraintes sur  $m_3$  et  $m_2$  ne dépendent pas de  $m_1$  et de  $m_4$  et définissent la zone de la séparation complète (**arwb**) dans le plan  $(m_2, m_3)$  représentée sur la figure 3.4.

Comme dans le cas linéaire, la zone de la séparation complète est entourée par deux zones dans lesquelles un seul composant peut être obtenu pur à 100%. Mais dans le cas non linéaire, les frontières des zones de séparation dépendent de la composition de l'alimentation ( $C_i^F$ ) et les contraintes sur les débits dans la deuxième et la troisième section sont couplées.

Dans le cas où les composants dans le liquide sont en état très dilué ( $C_i^F \approx 0$ ), l'isotherme compétitif non linéaire de Langmuir approche l'isotherme linéaire non compétitif; ainsi les lignes dans la figure 3.4 approchent celles dans la figure 3.3 et la zone de la séparation complète devient un triangle rectangle comme le montre la figure 3.5.

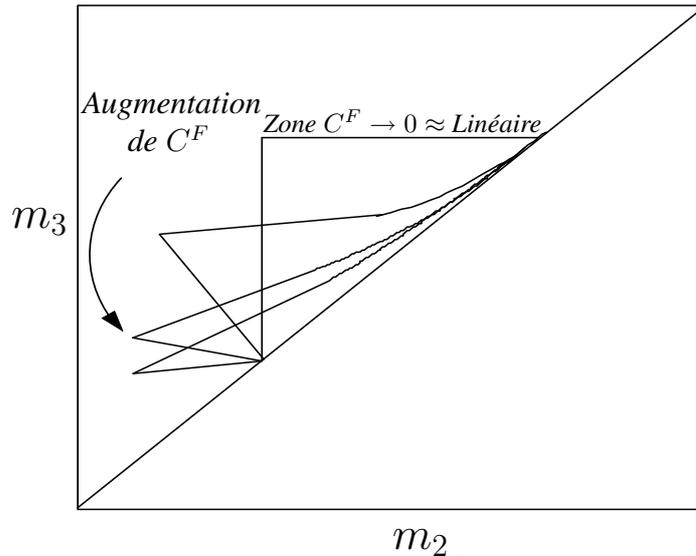


FIG. 3.5 – Effets des concentrations dans l'alimentation  $C_i^F$  sur la zone de la séparation complète dans l'espace  $(m_2, m_3)$ . Avec l'augmentation des concentrations dans l'alimentation, la zone de la séparation complète se déforme et devient plus étroite. Dans le cas où les composants sont en état dilué ( $C_i^F \approx 0$ ), la forme de la zone de la séparation complète approche la forme de la zone de la séparation complète tracée en considérant un isotherme linéaire non compétitif.

### Le calcul des paramètres opérationnels (les débits)

Après avoir choisi les variables  $m_j$  à partir des figures 3.3 et 3.4, les débits dans le LMS qui permettent de réaliser la séparation choisie (complète ou autre) sont calculés par la relation suivante [16] :

$$Q_{LMS}^{(j)} = \frac{V_c [m_j (1 - \varepsilon^*) + \varepsilon^*]}{\mathcal{T}_{sw}} \quad (3.56)$$

Cette équation (3.56) permet de calculer les débits dans les sections, mais généralement, ces débits sont accessibles à la manipulation par l'intermédiaire des débits externes (le débit de désorption  $Q_D$ , d'extraction  $Q_{Ex}$ , d'alimentation  $Q_F$ , de raffinage  $Q_R$ ). Pour cela, les débits externes doivent être calculés par les équations de bilan dans les nœuds situés entre les sections, à savoir :

$$Q_D = Q^{(I)} - Q^{(IV)} \quad (3.57)$$

$$Q_{Ex} = Q^{(I)} - Q^{(II)} \quad (3.58)$$

$$Q_F = Q^{(III)} - Q^{(II)} \quad (3.59)$$

$$Q_R = Q^{(III)} - Q^{(IV)} \quad (3.60)$$

### Simulation numérique pour tester la théorie triangulaire

L'objectif de cet exemple de simulation est de tester les zones de séparation dans le cadre de la théorie triangulaire en considérant un équilibre non linéaire compétitif. Cette simulation consiste dans un premier temps à choisir les variables  $m_j$  à partir de la figure 3.4, puis à calculer les débits correspondants en utilisant l'équation (3.56). Les débits ainsi obtenus sont utilisés dans un simulateur d'un lit mobile simulé afin de prédire l'évolution des puretés des composants. Notons que le modèle

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

de simulation utilisé ici est le même que celui qui est adopté pour les simulations dans les chapitres précédents. Dans cet exemple, la longueur ( $L_c$ ) et le diamètre ( $D_c$ ) d'une colonne sont respectivement égaux à 50 [cm] et à 5 [cm], le reste des données est présenté ci-après :

$V_c$	981.7477[ $cm^3$ ]
$k_A$	2
$k_B$	1.5
$H_A = q_{m_A} k_A$	10
$H_B = q_{m_B} k_B$	7.5
$C_A^F = C_B^F$	$10^{-4}[g/cm^3]$
$\epsilon^*$	0.4

TAB. 3.8 – Les données numériques utilisées.

1) Le choix des  $m_j$  :

En utilisant les équations (de 3.46) à (3.50), le diagramme ( $m_2, m_3$ ) est obtenu et tracé dans la figure 3.6.

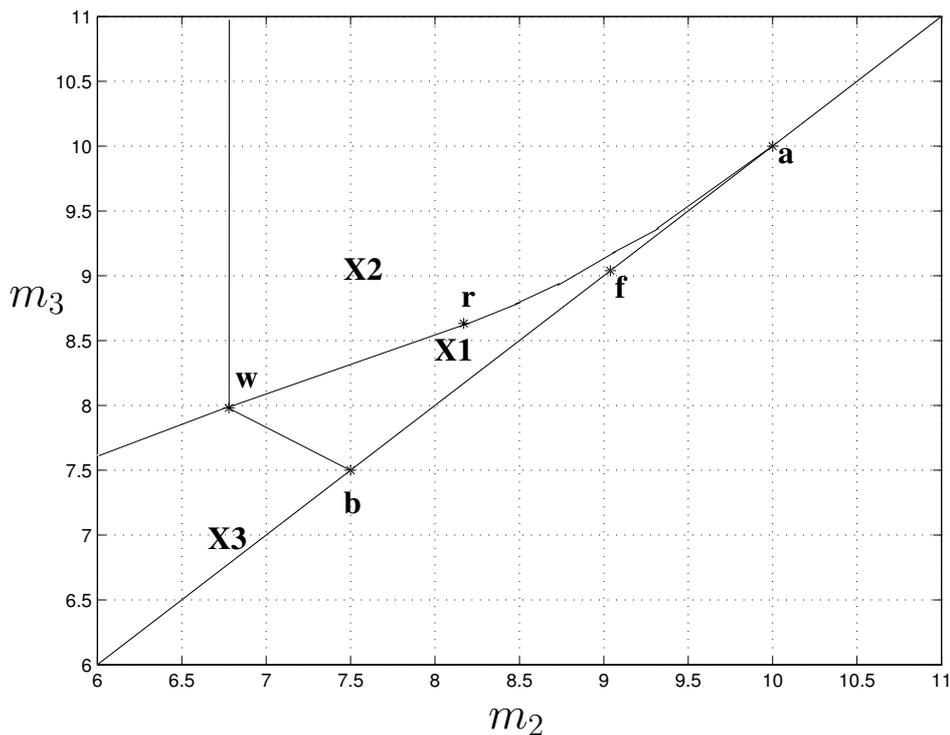


FIG. 3.6 – Espace de séparation ( $m_2, m_3$ ) selon les données présentées dans le tableau (3.8). Le point **XI** ( $m_2 = 8, m_3 = 8.4$ ) appartient à la zone de la séparation complète (**arwbf**), le point **X2** ( $m_2 = 7.5, m_3 = 9$ ) appartient à la zone de la séparation complète pour le composant **A** et le point **X3** ( $m_2 = 6.7, m_3 = 6.85$ ) appartient à la zone de la séparation complète pour le composant **B**.

Après avoir tracé le diagramme ( $m_2, m_3$ ) dans la figure 3.6, trois points sont choisis à partir des trois zones différentes de séparation, à savoir :

le point  $\mathbf{X1}(m_2 = 8, m_3 = 8.4)$  appartient à la zone de séparation complète, le point  $\mathbf{X2}(m_2 = 7.5, m_3 = 9)$  appartient à la zone qui permet d'obtenir seulement le composant **A** pur, alors que le point  $\mathbf{X3}(m_2 = 6.7, m_3 = 6.85)$  appartient à la zone qui donne seulement le composant **B** pur.

## 2) Calculs des débits :

Les débits sont calculés en fonction de la zone de séparation choisie, ainsi les trois cas suivants sont étudiés :

### (a) Test de la zone de séparation complète :

En choisissant le point  $\mathbf{X1}(m_2 = 8, m_3 = 8.4)$  qui appartient à la zone de la séparation complète et en utilisant  $m_1 = 1.5 * H_A = 15$  et  $m_4 = (m_{4,max}(m_2, m_3) + m_{4,min}(m_2, m_3))/2 = 3.5776$ , les débits correspondants sont calculés par l'équation (3.56). Les débits externes sont ainsi calculés par les équations (3.57, 3.58, 3.59, 3.60). Cela donne les valeurs des débits suivantes ( $Q_D = 224.2789$ ,  $Q_{Ex} = 137.4447$ ,  $Q_F = 7.8540$ ,  $Q_{IV} = 83.3354$ ). En utilisant ces débits dans le simulateur du lit mobile simulé, les deux composants sont obtenus purs à 100% comme le montre la figure 3.7.

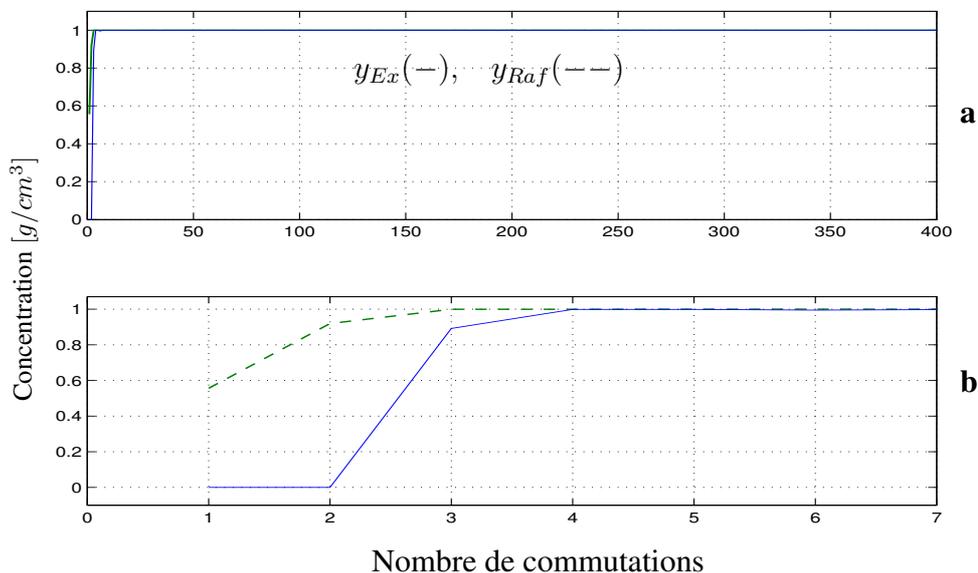


FIG. 3.7 – **a)** L'évolution temporelle des puretés des composants en fonction du Nombre de commutations. La courbe  $y_{Ex}$  représente l'évolution de pureté du composant **A** à l'extraction et la courbe  $y_{Raf}$  représente l'évolution de pureté du composant **B** au raffinage. Cette évolution est la réponse des débits calculés à partir du point  $\mathbf{X1}(m_2 = 8, m_3 = 8.4)$  appartenant à la zone de la séparation complète. Les deux composants sont complètement séparés ( $y_{Ex} = y_{Raf} = 100\%$ ). **b)** Zoom sur l'évolution pendant les premières périodes de commutations.

### (b) Test de la zone de séparation qui permet d'obtenir seulement le composant **A** pur:

En choisissant le point  $\mathbf{X2}(m_2 = 7.5, m_3 = 9)$  qui appartient à la zone destinée à extraire seulement le composant **A** pur à 100% et en utilisant  $m_1 = 1.5H_A = 15$  et  $m_4 = (m_{4,max}(m_2, m_3) + m_{4,min}(m_2, m_3))/2 = 3.4016$ , les débits correspondants sont calculés par l'équation (3.56). Les débits externes sont ainsi calculés par les équations (3.57, 3.58, 3.59, 3.60). Ceci donne les valeurs suivantes des débits externes : ( $Q_D = 227.7340$ ,  $Q_{Ex} = 147.2622$ ,  $Q_F = 29.4524$ ,  $Q_{IV} = 79.8803$ ). En utilisant ces débits dans le simulateur, seul le composant **A** est obtenu pur à l'extraction ( $y_{Ex} = 100\%$ ) alors que le composant **B** est contaminé dans le raffinage comme le montre la figure 3.8

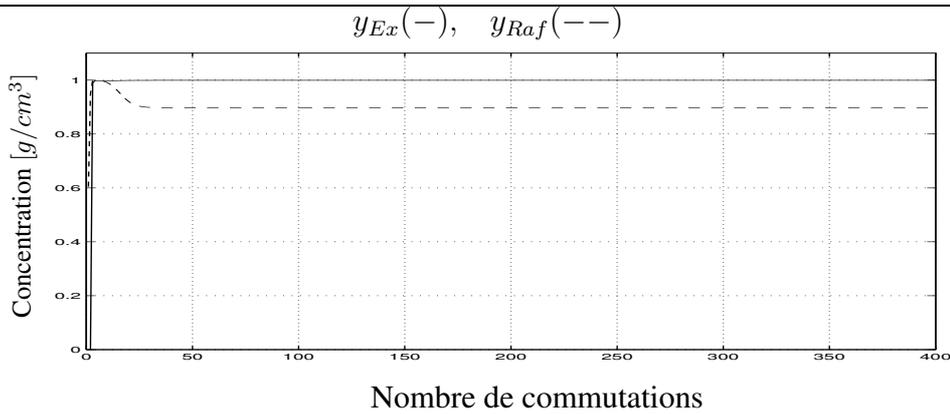


FIG. 3.8 – L'évolution temporelle des puretés des composants en fonction du Nombre de commutations. La courbe  $y_{Ex}$  représente l'évolution de pureté du composant **A** à l'extraction et la courbe  $y_{Raf}$  représente l'évolution de la pureté du composant **B** au raffinage. Cette évolution est la réponse des débits calculés à partir du point **X2** ( $m_2 = 7.5, m_3 = 9$ ) appartenant à la zone de la séparation qui permet d'obtenir seulement le composant **A** pur à 100%. Celui-ci est pur à 100% à l'extraction ( $y_{Ex} = 100\%$ ) alors que le composant **B** est contaminé dans le raffinage ( $y_{Raf} \neq 100\%$ )

**(c) Test de la zone de séparation qui permet d'obtenir seulement le composant B pur:**

En choisissant le point **X3** ( $m_2 = 6.7, m_3 = 6.85$ ) qui appartient à la zone destinée à extraire seulement le composant **B** à 100% pur et en utilisant  $m_1 = 1.5 * H_A = 15$  et  $m_4 = (m_{4,max}(m_2, m_3) + m_{4,min}(m_2, m_3))/2 = 3.3347$ , les débits correspondants sont calculés par l'équation (3.56). Les débits externes sont ainsi calculés par les équations (3.57, 3.58, 3.59, 3.60). Ceci donne les valeurs suivantes des débits externes : ( $Q_D = 229.0482, Q_{Ex} = 162.9701, Q_F = 2.9452, Q_{IV} = 78.5661$ ). En utilisant ces débits dans le simulateur, seul le composant **B** est obtenu pur au raffinage ( $y_{Raf} = 100\%$ ) alors que le composant **A** est contaminé dans l'extraction comme le montre la figure 3.9

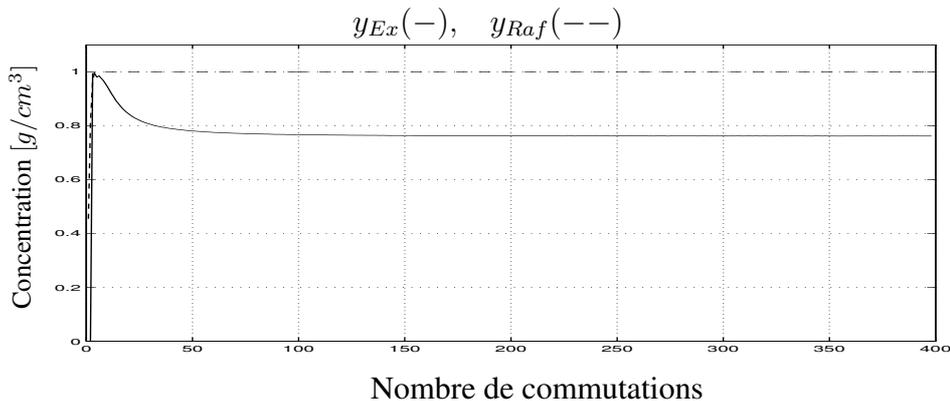


FIG. 3.9 – L'évolution temporelle des puretés des composants en fonction du Nombre de commutations. La courbe  $y_{Ex}$  représente l'évolution de pureté du composant **A** à l'extraction et la courbe  $y_{Raf}$  représente l'évolution de pureté du composant **B** au raffinage. Cette évolution est la réponse des débits calculés à partir du point **X3** ( $m_2 = 6.7, m_3 = 6.85$ ) appartenant à la zone de la séparation qui permet d'obtenir seulement le composant **B** pur. Celui-ci est pur à 100% au raffinage ( $y_{Raf} = 100\%$ ) alors que le composant **A** est contaminé dans l'extraction ( $y_{Ex} \neq 100\%$ )

### 3) Test de l'influence de l'augmentation des concentrations dans l'alimentation ( $C_i^F$ ) sur la région de la séparation complète :

La figure 3.10 montre l'évolution de la zone de la séparation complète en fonction des concentrations des composants dans l'alimentation ( $C_i^F$ ). Dans le cas où ces concentrations sont très faibles (les composants sont en état dilué), la zone de la séparation complète devient un triangle rectangle ce qui correspond alors à un cas linéaire. Avec l'augmentation successive de la concentration dans l'alimentation ( $C_i^F$ ), la zone de la séparation complète se rétrécit où la non-linéarité est plus forte.

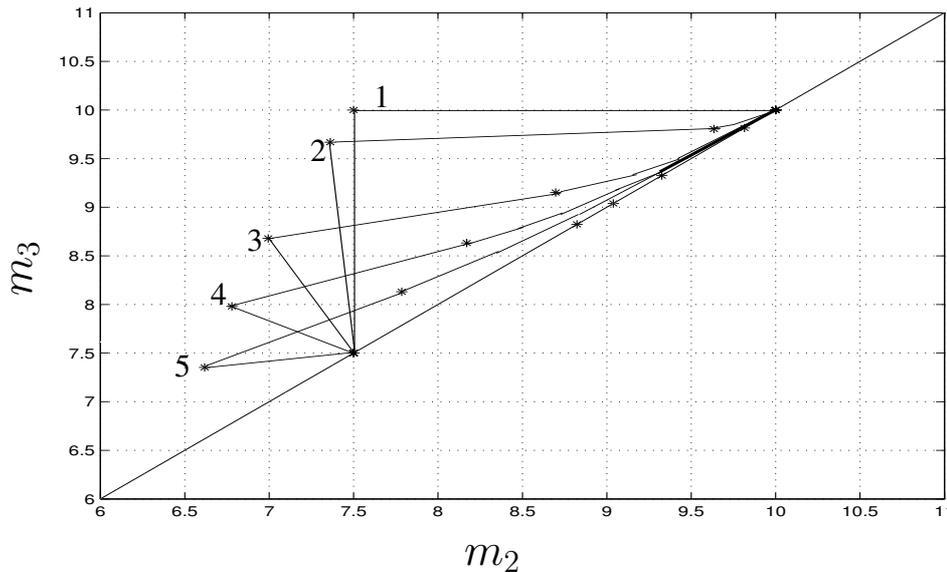


FIG. 3.10 – Effets des concentrations dans l'alimentation ( $C_i^F$ ) sur la zone de la séparation complète dans l'espace  $(m_2, m_3)$ . La zone de la séparation complète se déforme et se rétrécit avec l'augmentation successive de la concentration dans l'alimentation ( $C_i^F$ ) où la non linéarité est plus forte. Les zones de la séparation complète sont évaluées en fonction des valeurs de concentrations suivantes : **dans la zone 1** :  $C_A^F = C_B^F \rightarrow 0$ , **dans la zone 2** :  $C_A^F = C_B^F = 10^{-5}$ , **dans la zone 3** :  $C_A^F = C_B^F = 5.10^{-5}$ , **dans la zone 4** :  $C_A^F = C_B^F = 10.10^{-5}$ , **dans la zone 5** :  $C_A^F = C_B^F = 20.10^{-5} [g/cm^3]$

#### 3.3.4 La méthodologie du volume séparé "Separation volume methodology"

La théorie triangulaire et la théorie de la marge de sécurité sont des outils efficaces qui permettent la détermination des conditions de la séparation complète. Cependant, elles peuvent être critiquées sur deux aspects [19]. Le premier concerne les paramètres  $m_1$  et  $m_4$  où leurs influences sur les zones de la séparation complète ne sont pas prises en compte. Le deuxième aspect réside dans la modélisation de la théorie triangulaire ainsi que la théorie de la marge de sécurité car ces théories sont basées sur des considérations idéales (la résistance au transfert des matière et la dispersion axiale sont négligées). Cela ne permet pas de prédire réellement les conditions de séparation. Par exemple, en considérant les effets de transfert de masse dans la séparation de *p-Xylene*, il a été démontré que la région de la séparation complète est réduite [68][19][53] comme le montre la figure (3.11).

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

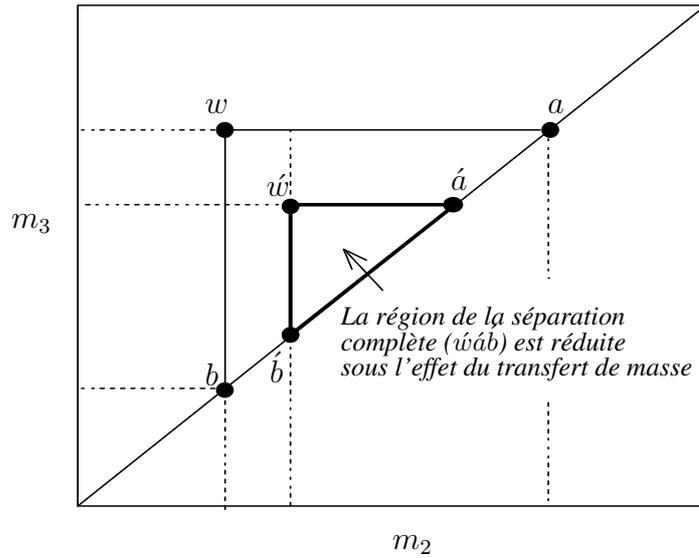


FIG. 3.11 – L'influence du transfert de matière sur la région de la séparation complète. En considérant les effets du transfert de masse dans la séparation de p-Xylene, la région de la séparation complète est réduite.

Dans la méthodologie dite du volume séparé [19] qui permet de contourner les défauts des autres approches, les paramètres  $m_{1,2,3,4}$ , sont calculés de façon similaire à celle de la théorie triangulaire, cependant les effets du transfert de matière et la dispersion axiale sont considérés dans le calcul de ces paramètres [19].

Dans le cadre de cette méthodologie, la zone de la séparation complète ( $m_2, m_3$ ) est tracée en fonction du paramètre  $m_1$  ou  $m_4$  [61] comme le montre la comparaison entre le diagramme basé sur la théorie triangulaire (figure 3.12(a)) et celui représentant la méthodologie de *separation volume* (figure 3.12(b)). Il apparaît clairement que la zone de la séparation complète varie en fonction de  $m_1$ .

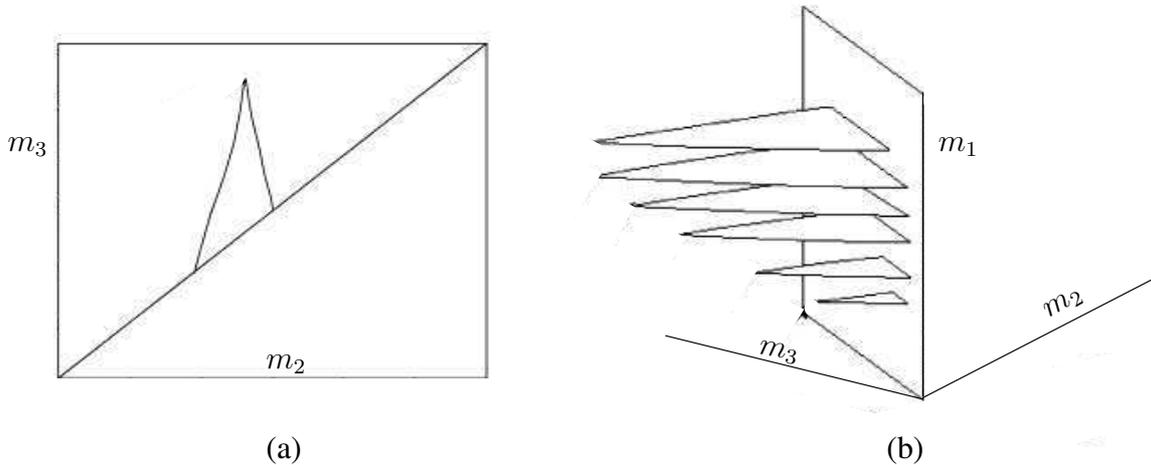


FIG. 3.12 – Comparaison entre la théorie triangulaire (a) et la théorie du volume séparé (b). La variation de la variable  $m_1$  est prise en compte dans la théorie du volume séparé.

### 3.3.5 Théorie de l'onde stationnaire (*Standing Wave Design*)

Cette théorie considère la dispersion axiale et la résistance au transfert de masse. Elle permet aussi de prendre en compte les dimensions des colonnes alors que les autres théories présentées précédemment -comme la théorie triangulaire- considèrent que les dimensions sont déjà fixées. Mais d'un autre côté, la théorie triangulaire permet d'évaluer le cas d'un isotherme non linéaire tandis que la théorie de l'onde stationnaire est limitée au cas d'un isotherme linéaire. [17], [84].

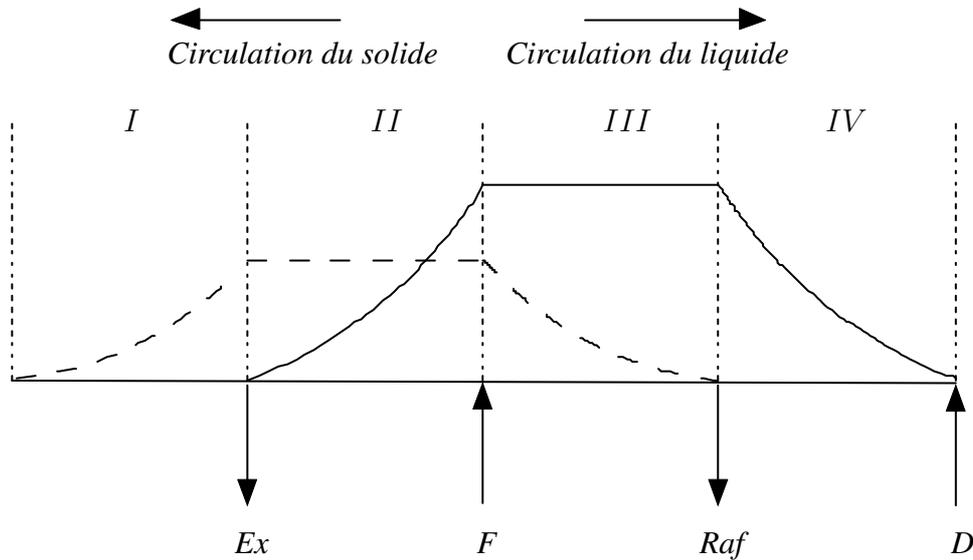


FIG. 3.13 – Les ondes stationnaires dans un procédé (LMV) linéaire. Pour réaliser une séparation complète, une seule onde doit se trouver dans chaque section.

#### – Les conditions de séparation dans le cadre de la théorie de l'onde stationnaire

Pour que les deux composants se séparent parfaitement, leurs ondes en régime stationnaire doivent être distribuées dans les sections de telle sorte qu'une seule onde se trouve dans chaque section (figure 3.13). Ainsi, l'onde de désorption du composant le plus fortement adsorbé, doit être localisée dans la section *I* et son onde d'adsorption doit être localisée dans la section *III*; alors que l'onde de désorption de l'autre composant doit être localisée dans la section *II* et son onde d'adsorption doit être localisée dans la section *IV*. Les positions souhaitées des ondes peuvent être déterminées en choisissant correctement les débits du liquide dans les quatre sections ainsi que celui du solide. Cette théorie permet d'établir des équations algébriques qui donnent les puretés des composants ainsi que leurs rendements en fonction des débits, des dimensions des sections, des coefficients d'isotherme et des paramètres liés au transfert de matière.

Pour localiser les quatre ondes stationnaires de telle sorte que les composants se séparent complètement, les quatre zones doivent satisfaire les équations suivantes [17]:

$$(1 + P\delta_A)u_s - u_{LMV}^{(I)} = -\beta_A^{(I)} \left( \frac{D_A^{(I)}}{L^{(I)}} + \frac{P u_s^2 \delta_A^2}{K_{fA}^{(I)} L^{(I)}} \right) \quad (3.61)$$

$$(1 + P\delta_{\mathbf{B}})u_s - u_{LMV}^{(II)} = -\beta_{\mathbf{B}}^{(II)} \left( \frac{D_{\mathbf{B}}^{(II)}}{L^{(II)}} + \frac{Pu_s^2\delta_{\mathbf{B}}^2}{K_{f\mathbf{B}}^{(II)}L^{(II)}} \right) \quad (3.62)$$

$$(1 + P\delta_{\mathbf{A}})u_s - u_{LMV}^{(III)} = -\beta_{\mathbf{A}}^{(III)} \left( \frac{D_{\mathbf{A}}^{(III)}}{L^{(III)}} + \frac{Pu_s^2\delta_{\mathbf{A}}^2}{K_{f\mathbf{A}}^{(III)}L^{(III)}} \right) \quad (3.63)$$

$$(1 + P\delta_{\mathbf{B}})u_s - u_{LMV}^{(IV)} = -\beta_{\mathbf{B}}^{(IV)} \left( \frac{D_{\mathbf{B}}^{(IV)}}{L^{(IV)}} + \frac{Pu_s^2\delta_{\mathbf{B}}^2}{K_{f\mathbf{B}}^{(IV)}L^{(IV)}} \right) \quad (3.64)$$

$$\frac{Q_F}{\varepsilon_b S} = u_{LMV}^{(III)} - u_{LMV}^{(II)} \quad (3.65)$$

$$\frac{Q_D}{\varepsilon_b S} = u_{LMV}^{(I)} - u_{LMV}^{(IV)} \quad (3.66)$$

Où :

- $L$  : la longueur d'une section.
- $\beta_i^{(j)}$  est liée au rapport entre la concentration maximale et la concentration minimale pour un composant  $i$  dans une section  $j$
- $P = \frac{1-\varepsilon_b}{\varepsilon_b}$ ,  $\varepsilon_b$  est la porosité externe.
- $\delta_i = (\varepsilon_p + (1 - \varepsilon_p)k_i)$ ,  $\varepsilon_p$  est la porosité interne.
- $D$  : la dispersion axiale.
- $K_f$  : le coefficient de transfert de matière.
- $S$  : la surface d'une section d'une colonne.

Plus de détails concernant ces équations sont présentés dans la littérature [84][17].

## 3.4 Optimisation du procédé

Le problème d'optimisation pour un lit mobile simulé est défini comme suit : *"Le coût de séparation doit être minimal tout en respectant les contraintes imposées sur les puretés des composants séparés. Des contraintes sur les débits sont également imposées par des considérations physiques et industrielles"*.

Les principaux critères économiques d'optimisation de ce procédé sont destinés à augmenter la productivité et à réduire la consommation du solvant. Ces critères sont définis par la suite [81][55] :

### 1. La productivité [ $g/s.cm^3$ ] :

L'objectif de ce critère est de minimiser la quantité de la phase solide (l'adsorbant) pour séparer une certaine quantité (ou bien une quantité maximale) de composants injectés. La productivité ( $\mathcal{P}$ ) est ainsi définie par la quantité du composant injectée par unité de volume de phase solide

par unité de temps. Le critère correspondant peut être exprimé mathématiquement par l'équation suivante [66], [24], [74]:

$$\mathcal{P} = \frac{Q_F C_F^T}{V_s} \quad (3.67)$$

où  $V_s$  est le volume de la phase adsorbante et  $C_F^T$  est la concentration totale des composants à séparer dans l'alimentation.

## 2. Réduire la consommation du désorbant :

la consommation du désorbant ( $\mathcal{D}$ ) est la quantité de désorbant utilisé pour récupérer une unité de quantité d'un composant pur [78], [61]:

$$\mathcal{D} = \frac{Q_D}{Q_F C_F^T} \quad (3.68)$$

Les procédures d'optimisation dans la littérature sont multiples. Généralement, elles sont divisées en deux catégories: méthodes graphiques et méthodes mathématiques.

### 3.4.1 Méthodes graphiques pour l'optimisation du procédé

**La théorie triangulaire** permet de déterminer graphiquement la zone de la séparation complète (figure 3.4). Dans cette zone, les variables  $m$  peuvent être choisies afin d'optimiser l'opération. D'une part, la maximisation de  $m_3$  conduit à l'augmentation de la productivité ( $\mathcal{P}$ ) pour les raisons suivantes : la maximisation de  $m_3$  augmente le débit dans la troisième section ( $Q^{(III)}$ ) [équation (3.56)] qui va à son tour augmenter le débit d'alimentation ( $Q_F$ ) selon l'équation ( $Q_F = Q^{(III)} - Q^{(II)}$ ) conduisant ainsi à l'augmentation de la productivité ( $\mathcal{P}$ ) [équation (3.67)]. Et d'autre part, la minimisation de  $m_2$  conduit à réduire le débit dans la deuxième section ( $Q^{(II)}$ ) [équation (3.34)] qui va à son tour réduire le débit de la désorption ( $Q_D$ ) selon l'équation ( $Q_D = Q^{(II)} - Q^{(IV)} + Q_{ex}$ ) conduisant ainsi à la réduction de la consommation du désorbant ( $\mathcal{D}$ ) [l'équation (3.68)].

Afin de réaliser les deux critères (augmentation de la productivité et la réduction de la consommation du désorbant) simultanément, l'écart ( $m_3 - m_2$ ) doit être maximal ce qui correspond au point  $\mathbf{w}$  de la zone de la séparation complète figure 3.4.

D'autres améliorations peuvent être réalisées en minimisant l'écart ( $m_1 - m_4$ ), ce qui conduit à minimiser le débit de la désorption selon l'équation ( $Q_D = Q^{(I)} - Q^{(IV)}$ ). [55].

**La méthodologie du volume séparé** est plus flexible que la théorie triangulaire dans le cadre de l'optimisation graphique du procédé, puisqu'elle permet de visualiser l'influence de  $m_1$  et de  $m_4$  sur les critères d'optimisation concernés (la productivité et la consommation du désorbant) [61].

La figure 3.14, (b) montre l'influence de  $m_1$  quand  $m_4$  est fixé. Dans ce cas, et pendant l'augmentation de  $m_1$ , la taille de la zone de la séparation complète augmente et le sommet du triangle se déplace en augmentant l'écart ( $m_3 - m_2$ ) maximisant ainsi le débit d'alimentation. Par conséquent, la productivité est augmentée. L'augmentation de  $m_1$  au-delà d'une certaine valeur ne modifie plus la zone de la séparation complète, ainsi la productivité atteint le maximum et ne change plus, par conséquent, d'une part il n'est plus utile donc d'augmenter  $m_1$  et d'autre part l'augmentation de  $m_1$  conduit à l'augmentation du débit dans la première section et ainsi à l'augmentation de la consommation du désorbant.

La figure 3.14 (a) montre cette fois l'influence de  $m_4$  quand  $m_1$  est fixé. L'augmentation de  $m_4$  n'a pas d'influence sur la zone de la séparation complète jusqu'à une certaine limite où la zone commence à se réduire sans que le sommet du triangle se déplace. Ceci signifie que l'augmentation de  $m_4$  (ce qui est équivalent à l'augmentation du débit dans la quatrième section) ne modifie pas le débit d'alimentation et la productivité ainsi reste constante. Toutefois, cette augmentation de  $m_4$  réduit le débit du solvant puisque  $Q_D = Q^{(I)} - Q^{(IV)}$ . Par conséquent, et pour une valeur fixe de  $m_1$ , il est intéressant de garder une valeur maximale de  $m_4$  mais dans les limites opérationnelles afin de ne pas violer les conditions de séparation.

Par exemple, les triangles gris dans les figures 3.14 (b) et (a) correspondent respectivement à une valeur donnée de débit dans la section I et la section IV. Ainsi, la productivité peut être augmentée en choisissant une valeur supérieure de  $m_1$  (le triangle gris dans la figure 3.14 (b)), pour cette valeur de  $m_1$ , une valeur maximale de  $m_4$  (le triangle gris dans la figure 3.14 (a)) est choisie afin de réduire la consommation du désorbant.

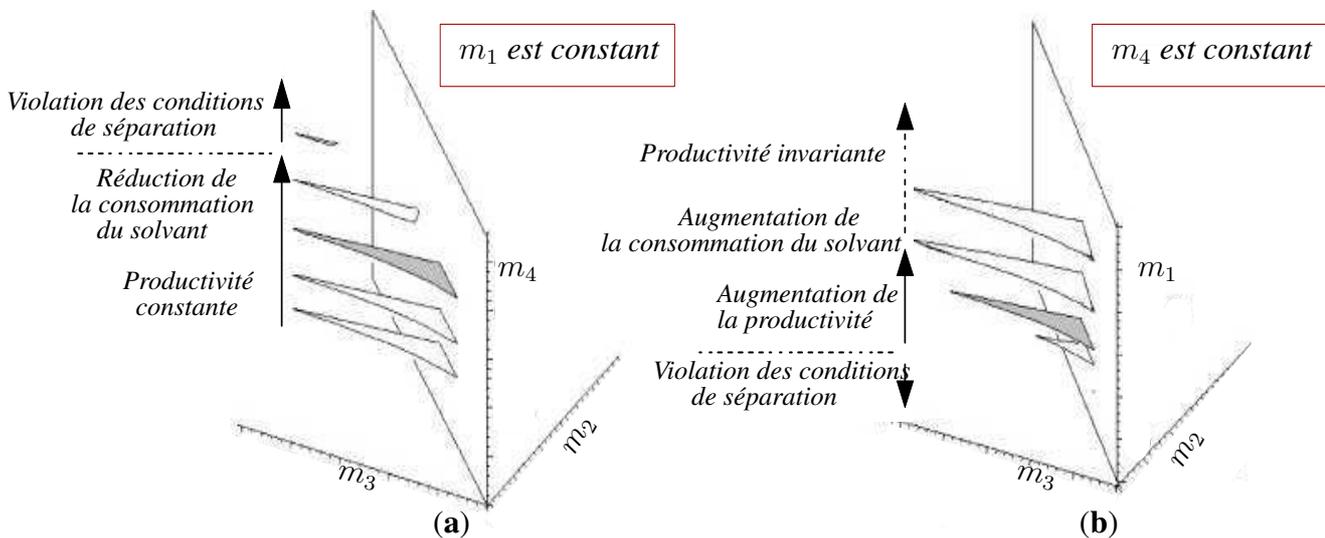


FIG. 3.14 – La sous-figure (a) représente l'influence de  $m_4$  sur l'espace  $(m_4, m_2, m_3)$  quand  $m_1$  est fixé. L'augmentation de  $m_4$  conduit à réduire la consommation du désorbant ( $\min(m_1 - m_4) = \min(Q_D) = \min(\mathcal{D})$ ). La sous-figure (b) représente l'influence de  $m_1$  sur l'espace  $(m_1, m_2, m_3)$  quand  $m_4$  est fixé. L'augmentation de  $m_1$  conduit à maximiser l'écart  $(m_3 - m_2)$  et ainsi à augmenter la productivité ( $\max(m_3 - m_2) = \max(Q_F) = \max(\mathcal{P})$ )

### 3.4.2 Méthodes mathématiques pour l'optimisation du procédé

Ces méthodes consistent à optimiser le procédé par des algorithmes basés sur une modélisation mathématique rigoureuse du lit mobile simulé. Les paramètres optimaux obtenus par les méthodes graphiques (comme la théorie triangulaire et la méthodologie du volume séparé) peuvent être utilisés

comme point de départ. Ces méthodes peuvent être classifiées en plusieurs catégories, à savoir :

- Selon le nombre de critères utilisés, un ou plusieurs critères. Le premier cas (où il n’y a qu’un seul critère) peut impliquer soit un critère avec un seul objectif (celui de la productivité [30]), soit un critère avec plusieurs objectifs pondérés par différents facteurs [9]. Le deuxième cas consiste à utiliser plusieurs critères [85].
- Selon le type des critères adoptés, soit des critères concernant l’optimisation du procédé (comme la productivité et la consommation du solvant) soit des critères concernant l’implémentation du procédé, tel que le coût des matériaux, la maintenance, etc. [8].
- Selon la considération d’une optimisation pour un procédé existant où les paramètres dimensionnels (comme le nombre de colonnes et leurs dimensions ainsi que leur distribution dans les sections) sont à priori fixés ; ou bien selon l’optimisation pour un procédé à construire où les paramètres dimensionnels (ou certains d’entre eux) doivent être optimisés. La section suivante aborde l’optimisation de quelques paramètres dimensionnels.

### 3.4.3 Optimisation dimensionnelle

Généralement pour la conception et l’optimisation du procédé, les dimensions des colonnes et leur distribution dans les sections sont supposées fixées à priori. Ainsi, les travaux qui les prennent en compte ne sont pas nombreux.

Dans le cadre de l’optimisation dimensionnelle, trois exemples sont présentés ici. Dans les deux premiers, la longueur de la colonne et la vitesse moyenne de la phase liquide sont optimisées pour que la perte de charge à travers le lit et le nombre minimal des plateaux théoriques soient dans les limites souhaitées. Dans le troisième exemple, le nombre de colonnes par section est optimisé pour améliorer certaines performances. Ces objectifs sont gérés par les concepts suivants :

#### La perte de charge

Dans le lit mobile simulé, la pression la plus haute qui existe à la sortie de la pompe de recyclage doit être égale ou légèrement supérieure à la perte de charge à travers les colonnes. La perte de charge peut être estimée par plusieurs corrélations empiriques parmi lesquelles l’équation de *Kozeny-Karman* considérant un écoulement laminaire, à savoir :

$$\frac{\Delta P}{L} = \Phi u_m \quad (3.69)$$

- $\Delta P$  : la perte de charge à travers le lit.
- $L$  : la longueur du lit (la somme des longueurs des colonnes dans le lit  $L = N_c L_c$  où  $N_c$  est le nombre de colonnes et  $L_c$  est la longueur d’une colonne)
- $u_m$  : la vitesse moyenne dans le lit.
- $\Phi$  : est une constante qui dépend des propriétés physiques du lit (des informations concernant cette constante sont détaillées dans [66])

La perte de charge ( $\Delta P$ ) ne doit pas dépasser la limite ( $\Delta p_{max}$ ), à savoir :

$$\Delta P = \Phi u_m L \leq \Delta p_{max} \quad (3.70)$$

*Commande prédictive non linéaire d’un lit mobile simulé*

Cette équation (3.70) permet d'estimer la longueur de colonne qui respecte la contrainte sur la pression.

### Le nombre des plateaux théoriques

Le nombre minimal des plateaux théoriques  $N_m$  est déterminé par l'équation suivante :

$$\frac{L_c}{h} \geq N_m \quad (3.71)$$

où  $L_c$  est la longueur de la colonne et  $h$  est la hauteur d'un plateau théorique qui est déterminée par l'équation de van Deemter [39] :

$$HEPT = h = A + \frac{B}{u_m} + Cu_m \quad (3.72)$$

Dans laquelle :

- $A$  : la diffusion turbulente.
- $C$  : la diffusion axiale moléculaire.
- $B$  : la résistance de matière au transfert.
- $u_m$  : la vitesse de la phase liquide.

Une méthodologie a été proposée par [24] dans laquelle le rapport ( $\frac{L_c}{u_m}$ ) a été ajusté par les équations (3.70), (3.71) et (3.72) afin de respecter les contraintes sur la pression et le nombre minimal des plateaux théoriques tout en réalisant une productivité maximale. La combinaison de ces équations (en négligeant la résistance de matière au transfert ( $B = 0$ )) aboutit à l'inégalité suivante :

$$\frac{N_m}{4N_c} \left( \frac{A}{u_m} + C \right) \leq \frac{L_c}{u_m} \leq \frac{\Delta P_{max}}{4N_c} \frac{1}{\Phi u_m^2} \quad (3.73)$$

D'autres approches basées aussi sur les équations (3.71), (3.70) et (3.72) sont proposées par [30] et [66].

### Optimisation du nombre de colonnes dans les sections (Procédés "Varicol")

Traditionnellement dans le lit mobile simulé, le déplacement des robinets est synchronisé afin de simuler le mouvement de la phase solide du lit mobile vrai. La phase solide a la même vitesse dans les quatre sections. Mais le changement de cette vitesse du solide dans les sections ajoute un degré de liberté. C'est le déplacement asynchronisé des robinets fait que ce changement de vitesse a lieu. Cela permet aussi de faire varier le nombre de colonnes distribuées dans les sections (ce nombre est toujours constant dans le lit mobile simulé) : c'est le principe des procédés dits *Varicol*. Cette méthodologie a été brevetée pour la première fois par [62]. Ces études montrent la supériorité des procédés *varicol* par rapport à un lit mobile simulé [52][4][86][67][65].

### 3.4.4 Autres idées d'optimisation d'un lit mobile simulé

D'autres modifications sur des modes de fonctionnement d'un lit mobile simulé ajoutent des degrés de liberté et conduisent à des améliorations remarquables, parmi lesquelles :

#### Procédés "*PowerFeed*"

Dans ce type de procédé, les débits peuvent être réglés pendant la période de commutation, alors qu'ils sont principalement constants dans le lit mobile simulé qui est une implémentation pratique d'un lit mobile vrai. Ceci veut dire qu'un procédé *PowerFeed* n'est pas équivalent au lit mobile vrai. La période de commutation est divisée en plusieurs (sous-périodes) pendant lesquelles les débits peuvent être variés. Cette méthodologie a fait l'objet de plusieurs études ([87] [80] [2]). Dans ces études, les deux cas (linéaire et non linéaire) sont considérés. Les comparaisons par rapport au lit mobile simulé montrent la supériorité des procédés *PowerFeed*, spécialement pour les séparations les plus difficiles.

#### Procédé de gradient de la température "*Temperature gradient SMB*"

Dans le cas des séparations de certains produits comme l'énantiomère, l'adsorption pour ces systèmes est particulièrement sensible aux changements de température. Ce comportement peut être exploité pour améliorer la séparation en changeant correctement la température dans les différentes sections d'une unité d'un lit mobile simulé. L'augmentation de la température dans les sections centrales (II, et III) conduit à réduire les valeurs des coefficients de l'isotherme. Cela conduit à descendre la région de la séparation complète le long de la diagonale et à rétrécir sa base alors que sa forme reste inchangée. La variation des coefficients de l'isotherme suit la loi exponentielle suivante [14]:

$$k_i = k_i^0 e^{-\alpha/T} \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (3.74)$$

où :  $\alpha$  est une constante physique et  $T$  la température.

En général, l'augmentation de la température conduit à favoriser la désorption et à défavoriser l'adsorption. Par exemple, l'augmentation de la température dans la deuxième section qui est destinée à désorber le composant  $\mathbf{B}$ , favorise cette désorption. La réduction de la température dans la troisième section qui est destinée à adsorber le composant  $\mathbf{A}$ , conduit à favoriser son adsorption. Une étude théorique réalisée dans [14] consiste à faire fonctionner les sections I et II à une température plus élevée que celle des sections III et IV. Les avantages et les limitations de cette approche ont été montrés par [14].

## 3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, plusieurs méthodes et théories concernant la conception et l'optimisation du lit mobile simulé sont présentées.

Généralement ces méthodes sont basées sur le concept du lit mobile vrai équivalent au lit mobile simulé. Ce chapitre commence en clarifiant le concept d'équivalence entre un lit mobile vrai et un lit mobile simulé.

Puis, les conditions de séparation sont développées. Ces conditions permettent de trouver les débits

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

---

aboutissant à la séparation complète par le procédé. Les différentes approches qui sont basées sur les conditions de séparation sont présentées, citons la théorie triangulaire par exemple.

L'optimisation des conditions opérationnelles (les débits) pour rendre les opérations moins coûteuse est ainsi présentée par des méthodes graphiques (la théorie triangulaire et la méthodologie du volume séparé). Enfin, l'optimisation de quelques paramètres dimensionnels est brièvement abordée.

# Chapitre 4

## La Commande du lit mobile simulé

### 4.1 Introduction

Ce chapitre constitue la contribution principale de cette thèse, dans laquelle une nouvelle stratégie de commande prédictive non linéaire a été développée pour la commande d'un lit mobile simulé fortement non linéaire.

Cette stratégie permet de réaliser les puretés désirées des composants à séparer tout en gérant des considérations d'ordre économique. Ces dernières sont représentées par des critères dits auxiliaires incluant les aspects économiques les plus importants dans le cadre de la séparation chromatographique par un lit mobile simulé comme l'augmentation du taux de production, la réduction de la consommation du solvant et le respect de la date limite de livraison des produits.

Le schéma de commande proposé permet aussi de changer -de façon tout à fait flexible- le critère auxiliaire actif dans un plan de production qui peut être modifié d'une façon imprévue. Le schéma de commande proposé permet d'ailleurs d'introduire une certaine robustesse vis-à-vis des incertitudes paramétriques.

Le chapitre commence par la présentation de la problématique de la commande d'un lit mobile simulé dévoilant ainsi les difficultés principales à affronter en vue de la commande d'un tel procédé. Les différentes stratégies de commande existantes dans la littérature sont ensuite présentées. Puis, le principe de la commande prédictive est expliqué.

Le principe de la commande prédictive non linéaire implique la résolution en-ligne d'un problème d'optimisation en général non convexe, ceci présente un véritable défi sur le plan conceptuel puisque généralement le temps réel n'est pas suffisant pour résoudre un problème d'optimisation non convexe. Pour surmonter ce problème, une nouvelle idée consistant à distribuer l'optimisation dans le temps est adoptée.

Les résultats de simulation qui permettent de démontrer l'efficacité du schéma proposé sont enfin exposés.

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

### 4.1.1 Problématique de la commande d'un lit mobile simulé

Les phénomènes physiques liés à la séparation chromatographique et le mode de fonctionnement cyclique d'un lit mobile simulé font que la commande de ce procédé présente un défi important pour l'automatique. Les difficultés associées à la synthèse d'une loi de commande sont présentées par les points suivants :

- **Le procédé est modélisé par des équations différentielles aux dérivées partielles (EDP) :**  
La dynamique d'une colonne du procédé est décrite par des équations différentielles aux dérivées partielles dans lesquelles les variables d'état (les concentrations) sont fonction de deux grandeurs (le temps et l'espace). Ceci conduit à un modèle du procédé de dimension infinie. En prenant en compte l'absence d'un régime stationnaire et la nature cyclique du système, le temps de simulation d'un tel modèle est élevé.
- **Le lit mobile simulé est un système hybride :**  
Le lit mobile vrai est un procédé continu dans lequel la phase liquide et la phase solide bougent en sens inverse d'une façon continue. Le principe du lit mobile vrai est réalisé par le lit mobile simulé en déplaçant les robinets d'injection et de soutirage périodiquement dans le sens d'écoulement du liquide afin de simuler le mouvement de la phase solide. Ces commutations introduisent une dynamique discrète sur l'évolution des variables d'état (les concentrations). Par conséquent, le lit mobile simulé montre une dynamique continue issue de l'écoulement continu du liquide et une dynamique discrète issue des commutations des robinets, alors le lit mobile simulé est un système hybride.
- **La discontinuité issue des commutations :**  
Les commutations des robinets dans le lit mobile simulé font que les sections dites fonctionnelles- voir section 1.5.1 chapitre 1 - bougent avec les commutations successives des robinets. Ceci introduit une discontinuité sur les variables d'état appartenant à une section fonctionnelle au début de chaque commutation (figure 2.7).  
D'autre part, en adoptant le concept géométrique d'une section où les sections sont fixes et ne bougent pas avec les commutations (figure 1.20), les variables d'état appartenant à une section géométrique ne subissent pas de discontinuités (figure 2.11). Mais c'est la dynamique qui devient discontinue puisque les effets des commutations sont introduits en changeant les conditions aux limites des équations qui représentent les sections géométriques.
- **Le procédé peut être non linéaire :**  
Dans certaines séparations, comme celle du sucre (glucose/fructose), l'équilibre entre les deux phases peut être décrit par un isotherme linéaire non compétitif. Mais pour d'autres séparations comme celles appliquées dans le domaine de la pharmacie où une pureté très élevée est demandée, la non linéarité doit être prise en compte en considérant un isotherme non linéaire compétitif de type Langmuir par exemple (équation 1.2). Ceci introduit un fort couplage entre les variables d'état aboutissant à une complexité structurelle du modèle mathématique utilisé.
- **Problème de commande sous contraintes :**  
Pour des considérations physiques et industrielles, des contraintes sur les variables de commandes doivent être imposées. Les variables de commande sont généralement les débits du

fluide qui circule dans les sections et la période de commutation.

– **Le procédé manifeste une sensibilité paramétrique :**

Le procédé montre une grande sensibilité vis-à-vis des incertitudes paramétriques spécialement au voisinage de l'optimum et lorsqu'une séparation de hautes puretés est envisagée.

Outre les défis académiques cités ci-dessus, la commande d'un procédé de chromatographie, y compris le lit mobile simulé, est un enjeu économique de taille dans la mesure où elle devrait déterminer la qualité obtenue des produits (les puretés) tout en respectant certains aspects économiques comme par exemple : le respect des dates de livraison des produits et la réduction du coût des opérations.

Face à ces difficultés (les défis académiques et économiques), la stratégie de la commande prédictive non linéaire est adoptée dans cette thèse. En général, la commande prédictive (linéaire et non linéaire) connaît un grand succès dans le monde de la commande des procédés chimiques pour les raisons suivantes :

- les procédés chimiques sont en général fortement non linéaires, si bien que les méthodes de linéarisation ne permettent pas de prendre en compte l'essence des dynamiques mises en jeu;
- ces procédés sont souvent utilisés dans un cadre très contraint (contraintes sur les actionneurs, contraintes de sécurité sur certaines paramètres comme la pression et la température);
- Généralement, la complexité des modèles mathématiques représentant des procédés chimiques ne permet pas d'utiliser aisément des méthodes classiques de l'automatique comme les méthodes structurelles (géométrie différentielle, algèbre différentielle), alors que la commande prédictive permet de dépasser cette difficulté. En effet, un schéma de commande prédictive ne dépend pas de la structure mathématique du modèle d'un procédé, mais plutôt de l'évolution future des variables d'état prédite par un modèle du procédé.
- les procédés chimiques sont généralement lents, ceci permet d'appliquer des méthodes qui font appel à l'optimisation en-ligne comme celle de la commande prédictive.

Dans le contexte de la commande du lit mobile simulé, la commande prédictive a été appliquée dans certains travaux existants, mais elle a été limitée au cas linéaire [75], [76], [37], [38]. Un autre travail [5] adopte la stratégie de la commande prédictive non linéaire mais seulement pour séparer des composants à puretés faibles (55%).

Le schéma de commande prédictive non linéaire proposé dans cette thèse est bien situé dans cette dernière catégorie (la commande prédictive non linéaire) toutefois, ce schéma peut être utilisé pour séparer des composants à puretés très élevées (99%-97%) tout en respectant des aspects économiques. Les travaux mentionnés ci-dessus impliquent le principe de l'optimisation en-ligne qui est issue du principe de la commande prédictive, cependant le reste des travaux existants présente des approches basées sur optimisation hors-ligne comme les approches géométriques [22], [59] l'approche de commande par des contrôleurs de type proportionnel intégral (PI) [34] et l'approche proposée par [45] dans laquelle le contrôleur est basé sur un modèle simplifié linéaire identifié autour d'une trajectoire optimale calculée a priori. Les détails des approches existantes sont présentés par la suite.

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

## 4.2 État de l'art sur la commande du lit mobile simulé

Le contrôle d'un lit mobile simulé consiste à trouver les lois de commande qui permettent au procédé de séparer des composants à certaines puretés désirées. Généralement, les puretés sont plutôt considérées comme des contraintes à respecter qu'une trajectoire à poursuivre, ce qui montre l'importance primordiale de la qualité des composants à séparer.

Le premier travail concernant la commande d'un lit mobile simulé a été publié en 1997 [59]. La linéarisation exacte entrée/sortie a été utilisée comme une stratégie de commande. Celle-ci est également utilisée par [22] dont l'objectif est d'extraire le *paraxylene* d'un mélange de *C8 aromatique* par un lit mobile simulé virtuel de 24 colonnes.

Les variables de commande choisies dans ce travail sont le débit de l'extraction et celui du raffinage et les variables contrôlées sont la pureté de l'extrait (*paraxylene*) et son rendement. Le schéma de la commande ainsi qu'un observateur de type Kalman sont basés sur un modèle non linéaire de lit mobile vrai. Les effets des perturbations sur les concentrations dans l'alimentation ont été étudiés où le rendement est plus influencé que la pureté. Cette stratégie peut être critiquée parce qu'elle est basée sur un modèle de lit mobile vrai, ce qui est une simplification considérable.

Une stratégie de commande en deux étapes a été proposée par [45]. Son but est la séparation du *Fructose* et du *Glucose* par un procédé de 8-colonnes.

Premièrement, la trajectoire optimale du procédé est calculée hors-ligne par une optimisation dynamique basée sur un modèle linéaire dispersif (équation 2.12). La deuxième étape consiste à garder le procédé à l'optimum déjà calculé hors-ligne en utilisant un contrôleur local. Ce contrôleur est basé sur un modèle simplifié linéaire invariant dans le temps de type *MIMO ARX* identifié autour de la trajectoire optimale. Les variables de commande choisies ici sont le débit de la désorption, de l'extraction, du recyclage et la période de commutation. Cependant, la trajectoire optimale calculée hors-ligne est susceptible d'être disqualifiée dans le cas où des perturbations peuvent se produire.

Dans [34], deux approches de commande ont été proposées pour la séparation de *Cyclopentanone* et *Cyclohexanone* par un lit mobile simulé de 8-colonnes. Dans la première approche, 4 contrôleurs (PI) font la régulation autour d'une référence désirée déjà calculée par des méthodes de conception opérationnelle, comme la théorie triangulaire (section 3.3 chapitre 3). Cette méthode est appelée commande par inférence (inferential control) puisque les contrôleurs PI génèrent les signaux de commande en comparant la référence avec des mesures indirectes (par l'intermédiaire des capteurs UV). Cette approche est avantageuse en l'absence de modèle du procédé puisqu'aucun modèle n'est nécessaire pour calculer la commande. Cependant, cette approche ne permet de compenser que les perturbations sur les débits du fluide. C'est la raison pour laquelle une deuxième approche a été développée dans laquelle, deux contrôleurs PI sont construits afin d'ajuster le positionnement de l'onde dans la deuxième et la troisième section. Ceci permet de réaliser des puretés désirées. À la différence de la première approche, celle-ci a besoin d'un modèle afin de construire un observateur qui fournit les variables d'état pour les deux contrôleurs PI.

Plusieurs approches de commande prédictive linéaire sont proposées pour la commande d'un lit mobile simulé. La première a été publiée en 2000 [75] dans laquelle, la commande prédictive linéaire couplée avec le principe de la commande répétitive (**RMPC**) [64] a été appliquée pour commander

un lit mobile simulé de 4 colonnes. Cette approche (la **RMPC**) est basée sur l'idée que les erreurs de modèle et l'effet des perturbations peuvent être compensés, période après période, en utilisant les mesures de concentrations aux sorties du procédé. L'objectif de la commande est de maximiser les rendements des composants à séparer (*Phenylalanine* et *Tryptophan*) en assurant une certaine pureté désirée. Le contrôleur est basé sur un modèle de lit mobile simulé réduit et linéarisé autour du régime stationnaire. Les variables de commande utilisées sont les débits entrants (le débit de l'alimentation et celui du désorbant) alors que la période de commutation est considérée constante. Cette stratégie ([75]) vise l'objectif principal qui consiste à commander le procédé autour de l'optimum, mais l'influence de la non linéarité n'est pas considérée.

Le principe, de la **RMPC** a été adopté aussi par [76] pour commander un lit mobile simulé linéaire de 8 colonnes. Les variables de commande sont le débit dans la première section et les débits externes (ceux de l'extraction, de l'alimentation et du raffinage) alors que la période de commutation est gardée constante. La stratégie s'opère en deux étapes, la première consiste à amener les puretés aux valeurs désirées et la deuxième s'intéresse à améliorer des critères économiques (minimiser la consommation du solvant et maximiser le taux de production). Un modèle linéaire simplifié est utilisé pour la commande et pour l'optimisation en ligne. Un observateur linéaire optimal de type Kalman a été utilisé pour l'estimation des variables d'état. Le schéma de contrôle présenté ici ([76]) a été appliqué expérimentalement pour la séparation de nucléosides (*Uridine*, *Guanosine*) [77]. Notre approche proposée dans la présente thèse peut être considérée comme une généralisation de celle-ci ([76]) pour un modèle non linéaire du procédé.

Une méthodologie de commande prédictive linéaire a été également adoptée par [37], dans laquelle un modèle de prédiction linéaire invariant est obtenu par identification dite *sous-espace* [23]. Cette stratégie a été testée par un modèle non linéaire du lit mobile simulé. Les variables de commande choisies sont le débit dans la deuxième section et celui dans la troisième section, et les variables de sortie sont les deux puretés des composants à séparer (*enantiomers of 1-1'-bi-naphthol*).

La même méthodologie proposée par [37] a été étendue par [38] afin d'introduire des aspects économiques (l'augmentation de la productivité et la réduction de la consommation du solvant). Pour cela, le débit dans la première section et celui dans la quatrième section sont ajoutés au vecteur de commande, et la productivité et la consommation du solvant sont ajoutées au vecteur de sortie.

Le seul schéma de commande prédictive non linéaire existant dans la littérature est celui proposé par [5]. Cependant ce schéma permet une séparation partielle des composants ayant une pureté de 55% dans l'extrait (*le fructose*), ce qui est accepté pour certain cas. Ainsi, la commande prédictive non linéaire a été utilisée pour commander en ligne un lit mobile simulé de 3-sections.

Les variables de commande choisies sont le débit de désorbant, le débit d'alimentation, le débit de recyclage et la période de commutation. Le problème de la non convexité associé à l'optimisation non linéaire a été résolu en proposant une solution sous-optimale par un algorithme SQP [42].

Dans les simulations, la période d'échantillonnage est égale à un cycle (soit le nombre total de colonnes multiplié par la période de commutation) alors qu'elle est réduite à une période de commutation pour l'expérimentation afin que le contrôleur puisse réagir plus vite. Ce travail est comparable à la stratégie proposée dans la présente thèse dans le sens où le problème d'optimisation non convexe associé à la commande prédictive non linéaire est résolu graduellement et la période de commutation est considérée comme période d'échantillonnage. Toutefois, notre stratégie permet gérer d'une façon

plus simple le changement de critères auxiliaires.

Après avoir exploré les travaux existants dans la littérature, les particularités de l'approche proposée dans cette thèse sont présentées ci-après.

### 4.3 Les particularités de l'approche de commande proposée

L'approche présentée dans cette thèse est caractérisée par les points suivants :

- ✓ Il n'est pas nécessaire d'initialiser l'algorithme par des configurations optimales, ceci peut être crucial quand des changements imprévus peuvent se produire (changements de la composition d'alimentation et/ou de la pureté désirée ou du critère économique). Cependant, l'algorithme peut être facilement initialisé si des configurations optimales sont a priori disponibles .
- ✓ Le schéma de commande prédictive non linéaire proposé dans cette thèse peut être appliqué en temps réel. Cette possibilité vient du fait que l'optimisation des critères non convexes associée au principe de la commande prédictive non linéaire est distribuée dans le temps. Autrement dit, le problème d'optimisation concerné est résolu graduellement pas après pas, dans le sens où les itérations menant à sa résolution sont distribuées dans le temps.
- ✓ Le schéma de commande proposé est assez flexible. Il peut facilement s'adapter aux changements soudains dans la planification de la production en changeant des critères d'optimisation d'ordre économique. La minimisation de ces critères permet de réduire le coût d'opérations. Ce changement est basé sur un bilan de coût qui doit être établi afin de déterminer le critère à déclencher. Ceci est présenté en détail dans la section concernant la commande en boucle fermée.
- ✓ Les travaux qui considèrent le rendement (les débits massiques de production) dans le critère d'optimisation sont peu nombreux. Dans notre travail, les rendements sont explicitement considérés en ajoutant un terme de pondération dans le critère d'optimisation.
- ✓ Le schéma de commande présenté permet d'introduire un terme intégral afin de renforcer la robustesse vis-à-vis des incertitudes paramétriques.
- ✓ La période de commutation est fréquemment considérée comme constante dans beaucoup de travaux existants. Dans le schéma de commande proposé, la période de commutation est une variable de commande ajoutant ainsi un degré de liberté. Cela permet de garder les puretés aux valeurs désirées quand d'autres critères auxiliaires sont utilisés pour améliorer le coût de production (plus de détails sont présentés dans la section de simulation).

Avant de présenter l'approche de commande prédictive non linéaire proposée dans cette thèse, le principe de base de la commande prédictive est abordé dans la section suivante.

## 4.4 La commande prédictive

La commande prédictive, parfois appelée : commande prédictive à base de modèle "*Model-based Predictive Control (MPC)*" ou bien : commande à horizon glissant "*Receding Horizon Control (RHC)*", est une technique de commande avancée très utilisée dans l'industrie et en particulier dans l'industrie pétrochimique.

Cette stratégie de commande est dite commande *prédictive*, puisqu'un modèle est utilisé pour *prédire* le comportement dynamique du système à commander. Dans le cas où le modèle utilisé pour la prédiction est linéaire, cette stratégie de commande est dite *commande prédictive linéaire (CPL)* même si la dynamique en boucle fermée est non linéaire (à cause des contraintes). La CPL est appliquée dans l'industrie avec un grand succès où de vastes applications dans les industries chimiques et aérospatiales sont présentées par [70] et [71].

Cependant, lorsque le système commandé est non linéaire et dans le cas où des contraintes économiques, écologiques et celles de sécurité doivent être respectées tout en assurant une qualité/quantité importante, la commande prédictive linéaire est inadéquate. Dans ce cas, un modèle non linéaire doit être utilisé pour la prédiction dans la stratégie de commande prédictive, on parle alors de la *commande prédictive non linéaire (CPNL)*. Notons que la stratégie de commande adoptée dans cette thèse est celle de la commande prédictive non linéaire.

Avant de présenter l'histoire de cette stratégie de commande, définissons tout d'abord son principe.

### 4.4.1 Le principe de la commande prédictive

La commande prédictive est une stratégie de commande qui consiste à résoudre en-ligne, à chaque pas d'échantillonnage  $k$  un problème de commande optimale en boucle ouverte à horizon fini. Dans cette optimisation, un critère formulé à partir d'un comportement idéal souhaité est minimisé afin d'aboutir à une séquence de commandes optimales dont seulement la première partie -qui représente un **retour d'état**- est appliquée au système durant la période d'échantillonnage  $[k, k + 1[$  et le processus est répété.

Afin de définir formellement la commande prédictive, un certain nombre de définitions est nécessaires, c'est l'objet de la section suivante.

#### Définitions et notations

La commande prédictive est présentée dans la littérature par différentes notations et formulations. Celles utilisées par [18] sont utilisées dans cette section pour définir formellement la commande prédictive. Ceci inclut la définition du système dynamique, la définition du critère d'optimisation et la définition de la commande prédictive elle-même. Ces définitions sont présentées ci-après.

##### 1) Définition du système dynamique

Soit un système échantillonné décrit par l'équation aux différences suivante :

$$x(k + 1) = f(x(k), u(k)) \quad (4.1)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

où :

- $u \in \mathbb{R}^m$  est le vecteur des entrées de commande. Afin qu'un profil de commande soit admissible, la condition suivante est nécessaire :

$$\forall k \geq 0 \quad u(k) \in \mathbb{U} \subset \mathbb{R}^m \quad (4.2)$$

où  $\mathbb{U}$  représente l'ensemble des valeurs admissibles, cet ensemble est généralement supposé compact et convexe;

- $x \in \mathbb{R}^n$  est le vecteur d'état du système. L'objectif de la loi de commande est de stabiliser le système à l'état désiré tout en garantissant que les trajectoires de l'état du système restent dans un ensemble convexe et fermé  $\mathbb{X}$ , à savoir :

$$\forall k \geq 0 \quad x(k) \in \mathbb{X} \quad (4.3)$$

- $f$  : est une application continue de  $\mathbb{R}^n \times \mathbb{R}^m$  dans  $\mathbb{R}^n$ .

Notons qu'il n'est pas nécessaire de disposer d'une expression analytique de la fonction  $f$  dans l'équation (4.1) puisqu'aucune manipulation analytique de cette fonction n'est effectuée dans la suite. Néanmoins, l'écriture de (4.1) suppose que les trajectoires du système existent en appliquant la commande  $u(k)$  durant la période d'échantillonnage  $[k, k+1[$  partant de l'état initial  $x(k)$  (voir figure 4.1).

En notant un profil de commande par  $u(\cdot)$  ou  $\mathbf{u}$ , la solution de l'équation (4.1) partant de l'état initial  $x$  à l'instant  $i$  et sous la séquence de commande  $\mathbf{u}$  est notée comme suit :

$$x^{\mathbf{u}}(\cdot ; x(i))$$

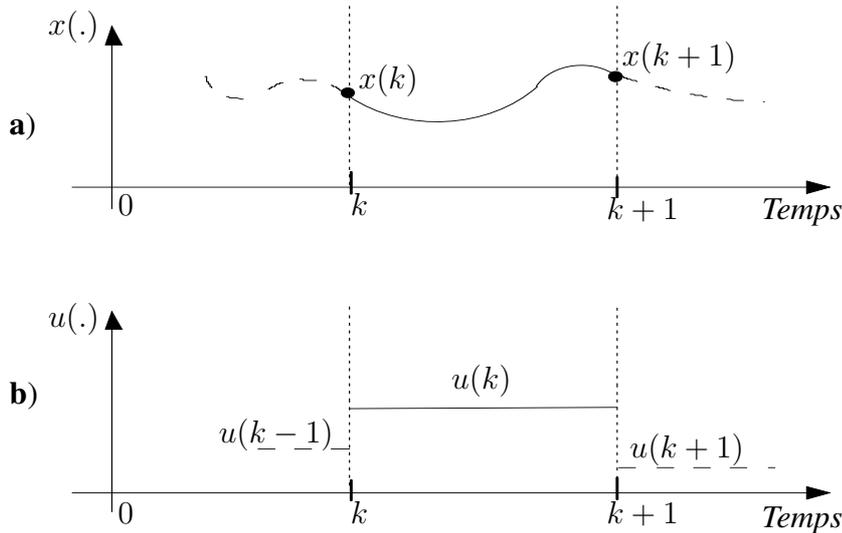


FIG. 4.1 – L'évolution d'un système dynamique décrit par l'équation aux différences (4.1). **a)** L'évolution de l'état du système durant une période d'échantillonnage  $[k, k+1[$  partant de l'état initial  $x(k)$  sous la commande  $u(k)$ . **b)** L'évolution du profil de commande est constante par morceaux.

### Définition de la fonction coût

Lorsque le système se trouve à l'état  $x$  à l'instant d'échantillonnage  $k$ , une fonction coût est associée à chaque profil de commande  $\mathbf{u}$  de la façon suivante :

$$V_N(x(k), \mathbf{u}) = F(x(k+N)) + \sum_{i=k}^{k+N-1} L(x(i), u(i)) \quad (4.4)$$

où :

- $N$  est l'horizon de prédiction. Dans le principe de la commande prédictive, cet horizon est glissé d'un pas d'échantillonnage après chaque pas d'échantillonnage.
- $\mathbf{u}$  est le profil de commande donné par :

$$\mathbf{u} := (u(k) \quad u(k+1) \quad \dots \quad u(k+N-1)) \in \mathbb{U}$$

traditionnellement, dans la littérature de la commande prédictive, le profil de commande est calculé sur un horizon dit "horizon de commande" qui est inférieur de l'horizon de prédiction. Par simplicité, les deux horizons sont considérés égaux dans cette présentation.

- $x(i)$  : représente l'état du système à l'instant  $i$  lorsque le profil de commande  $\mathbf{u}$  est appliqué, à savoir;

$$x(i) = x^{\mathbf{u}}(i, x(k)) \quad ; \quad i \in \{k, \dots, k+N\}$$

- $F(x(k+N))$  : représente une pénalisation sur l'état final  $x(k+N)$ . En plus de cette pondération, une contrainte finale explicite sur l'état peut aussi être utilisée, cette contrainte est généralement écrite comme suit :

$$x(k+N) \in \mathcal{X}_f \subset \mathbb{X} \quad (4.5)$$

où  $\mathcal{X}_f$  est un sous-ensemble fermé de  $\mathbb{X}$ .

- $\sum_{i=k}^{k+N-1} L(x(i), u(i))$  : un terme intégral portant sur la trajectoire.

### Définition de la commande prédictive

Prenons le système à l'état  $x$  à l'instant  $k$ . L'ensemble des profils de commande admissibles est donné par :

$$\mathcal{U}_N(x(k)) := \left\{ \mathbf{u} \in \mathbb{U}^N \quad \left| \quad \begin{array}{l} x^{\mathbf{u}}(k+N; x(k)) \in \mathcal{X}_f \quad \text{et} \\ \forall i \in \{k, \dots, k+N\} \quad x^{\mathbf{u}}(i; x(k)) \in \mathbb{X} \end{array} \right. \right\} \quad (4.6)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

Autrement dit, le profil de commande est admissible si les trajectoires qui en résultent satisfont les contraintes (4.2), (4.3) et (4.5).

Le problème de commande optimale peut être défini pour un système à l'état  $x$  à l'instant  $k$  comme suit :

$$\mathcal{P}_N(x(k)) = \min_{\mathbf{u}} \left\{ V_N(x(k), \mathbf{u}) \mid \mathbf{u} \in \mathcal{U}_N(x(k)) \right\} \quad (4.7)$$

La solution de ce problème ( $\mathcal{P}_N(x(k))$ ) est une séquence de commande optimale notée  $\mathbf{u}_N^0(x(k))$  où :

$$\mathbf{u}_N^0(x(k)) = \left( u^0(k, x(k)) \quad u^0(k+1, x(k)) \quad \dots \quad u^0(k+N-1, x(k)) \right) \quad (4.8)$$

Ainsi, le problème de la commande prédictive consiste à appliquer pendant la période d'échantillonnage  $[k, k+1]$  la première commande de la séquence optimale, à savoir  $u^0(k, x(k))$ , ce qui définit clairement un retour d'état :

$$\mathcal{K}(x(k)) : = u^0(k, (x(k))) \quad (4.9)$$

et la procédure est répétée.

Le critère utilisé dans l'optimisation, représente l'erreur entre le comportement idéal souhaité et le comportement prédit par le modèle (figure 4.2). À chaque pas d'échantillonnage  $k$  la prédiction est initialisée par l'état actuel  $\hat{x}(k)$ , Cet état est mesuré ou bien -le plus souvent- est estimé par un observateur d'état. Par conséquent, l'intégration d'un observateur dans un schéma de commande prédictive s'avère indispensable.

Dans le contexte de l'optimisation associée à la commande prédictive, la différence entre la commande prédictive linéaire et la commande prédictive non linéaire apparaît. Dans la première, où un modèle linéaire est utilisé pour la prédiction, le critère d'optimisation en fonction de la variable de commande est convexe. Cette convexité permet de facilement résoudre en-ligne le problème d'optimisation envisagé. Mais, lorsque le modèle de prédiction est non linéaire, le critère d'optimisation en fonction de la variable de commande est alors non convexe et le problème d'optimisation est beaucoup plus difficile à résoudre particulièrement pour des applications en-ligne. Cette difficulté est représentée principalement par la présence des minimums locaux et par un temps de calcul relativement élevé.

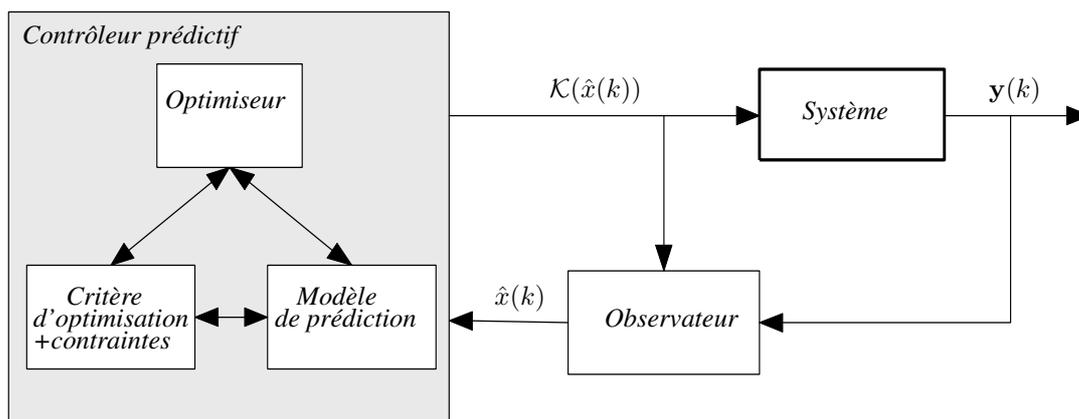


FIG. 4.2 – Schéma de principe de la commande prédictive. À chaque pas d'échantillonnage  $k$ , un retour d'état  $\mathcal{K}(\hat{x}(k))$  est appliqué au système. Ce retour d'état ( $\mathcal{K}(\hat{x}(k))$ ) est la première commande dans une séquence de commandes calculées par la résolution d'un problème de commande optimale en boucle ouverte à horizon fini. Le critère d'optimisation représente l'erreur entre un comportement désiré et un comportement prédit par un modèle de prédiction. L'état actuel  $\hat{x}(k)$  du système (mesuré ou estimé) est utilisé comme valeur initiale pour la prédiction, pour cette raison un observateur est indispensable.

Pour conclure, la commande prédictive implique les trois aspects suivants :

1. l'utilisation explicite d'un modèle du système pour prédire l'évolution future des états.
2. le calcul d'une séquence de commandes (sur un horizon dit de commande) en minimisant un certain critère d'optimisation.
3. l'adoption de la principe de l'horizon glissant qui consiste à déplacer l'horizon à chaque période d'échantillonnage après l'application de la première commande de la séquence optimale ainsi obtenue.

Généralement, une des raisons principales du succès de la commande prédictive dans le domaine des procédés chimiques est que ces procédés sont relativement lents. Ceci permet d'avoir un temps suffisamment long pour pouvoir résoudre le problème d'optimisation associé avant la fin de la période d'échantillonnage  $[k, k + 1]$  (le temps réel).

Dans le cas où le système à commander est relativement rapide ou dans le cas où le critère associé au problème d'optimisation  $\mathcal{P}_N(x(k))$  est non convexe, la période d'échantillonnage est trop courte pour permettre le calcul de la séquence de commandes recherchée. Pour résoudre ce problème, une nouvelle idée consiste à distribuer l'optimisation dans le temps réel du système. Cette idée est présentée dans la section suivante puisqu'elle est adoptée dans l'approche de commande prédictive non linéaire proposée dans le présent travail.

## 4.5 L'optimisation distribuée dans le temps

Dans le cas où le temps disponible n'est pas suffisant pour résoudre complètement l'optimisation d'un critère non convexe, une solution sous-optimale peut être adoptée sans attendre la solution opti-

male. Cette solution sous-optimale converge graduellement vers la solution optimale pas après pas (si la consigne ne change pas de manière importante). Par conséquent, la solution optimale est distribuée dans le temps réel du système. Il s'agit en effet, d'une idée récente appelée "optimisation distribuée dans le temps" dans notre approche et appelée "optimisation en temps réel" dans [63]. Cette idée est présentée mathématiquement par la suite.

Soit un système dynamique représenté par le modèle suivant :

$$x(k+1) = f(x(k), u(k)) \quad (4.10)$$

qui se trouve à l'instant  $k$  à l'état  $x(k)$ .

Soit  $\mathcal{P}(x(k))$  le problème de commande optimale (4.7) défini à cet instant ( $k$ ) afin de calculer la commande prédictive associée .

Rappelons que la commande prédictive est définie comme étant la première commande  $u^0(k, x(k))$  de la séquence optimale  $\mathbf{u}_N^0(x(k))$  (4.8) solution du problème d'optimisation  $\mathcal{P}(x(k))$ .

Cette commande  $u^0(k, x(k))$  est à appliquer durant l'intervalle  $[k, k+1]$ .

Le calcul de la séquence optimale ( $\mathbf{u}^0(x(k))$ ) se fait à travers un processus itératif présenté brièvement de la façon suivante :

$$\mathbf{u}^i = \mathcal{S}(\mathbf{u}^{i-1}, x(k)) \quad (4.11)$$

lorsque  $i = 1$ ,  $\mathbf{u}^0$  est une séquence initiale de cette procédure ( $\mathcal{S}(\cdot)$ ) dans laquelle, à chaque itération  $i$ , une séquence de commande ( $\mathbf{u}^i$ ) est obtenue. Théoriquement, la solution optimale - qui est la séquence optimale  $\mathbf{u}^0(x(k))$ - du problème  $\mathcal{P}(x(k))$  est donnée par :

$$\mathbf{u}^0(x(k)) = \lim_{i \rightarrow \infty} \mathbf{u}^i ; \quad \{\mathbf{u}^i\}_{i \geq 1} \text{ résultant de } (4.11)$$

Lorsqu'une précision finie  $\epsilon$  considérée suffisante est atteinte, la procédure d'optimisation s'arrête après avoir effectué un nombre fini  $i(\epsilon)$  d'itérations, à savoir :

$$\mathbf{u}^0(x(k)) = \mathbf{u}^{i(\epsilon)} ; \quad \{\mathbf{u}^i\}_{i \geq 1} \text{ résultant de } (4.11)$$

Bien évidemment, le nombre d'itérations  $i(\epsilon)$  ne peut être connu à l'avance puisqu'il dépend de la valeur de la séquence initiale  $\mathbf{u}^0$  ainsi que de la difficulté du problème d'optimisation  $\mathcal{P}(x(k))$ , elle même fonction de l'état considéré  $x(k)$ . Par conséquent, si le nombre d'itérations est élevé, la commande prédictive ne peut pas être appliquée sur des systèmes rapides puisque la longueur de la période d'échantillonnage  $[k, k+1]$  est très courte pour permettre le calcul. Ainsi, pour contourner ce problème, l'optimisation est distribuée dans le temps comme suit :

- effectuer seulement une seule itération durant la période d'échantillonnage  $[k, k+1]$  aboutissant à la séquence de commandes suivante :

$$\mathbf{u}^k = \mathcal{S}(\mathbf{u}^{k-1}, x(k-1)) =: (\mathbf{u}^k(k), \mathbf{u}^k(k+1), \dots, \mathbf{u}^k(k+N-1)) \quad (4.12)$$

remarquons que l'indice  $i$  dans l'équation (4.11) est remplacé par l'indice du temps réel  $k$  dans cette dernière équation (4.12).

D'après le principe de la commande prédictive, la première commande  $\mathbf{u}^k(k)$  de la séquence (4.12) est appliquée au système réel durant la période d'échantillonnage  $[k, k + 1]$ .

- la commande ainsi obtenue  $\mathbf{u}^k(k)$  et l'état estimé  $x(k + 1)$  sont ensuite utilisés dans le modèle de prédiction et dans le processus d'optimisation distribuée  $\mathcal{S}(\cdot)$  afin de calculer la commande à appliquer durant la période d'échantillonnage suivante ( $[k + 1, k + 2]$ ) :

$$x(k + 1) = f(x(k), \mathbf{u}^k(k)) \quad (4.13)$$

$$\mathbf{u}^{k+1} = \mathcal{S}(\mathbf{u}^k, x(k)) =: (\mathbf{u}^{k+1}(k + 1), \mathbf{u}^{k+1}(k + 2), \dots, \mathbf{u}^{k+1}(k + N)) \quad (4.14)$$

Dans le processus d'optimisation distribué (4.14), une seule itération est effectuée durant la période  $[k + 1, k + 2]$  et le processus est répété.

Il est important de noter que le principe d'optimisation distribuée permet d'effectuer plusieurs itérations si le temps disponible ( $[k, k + 1]$ ) le permet. Le choix de n'effectuer qu'une seule itération n'est pas obligatoire, toutefois ce choix permet d'explorer au maximum les limites de la méthode de l'optimisation en question, celle de l'optimisation distribuée.

Dans le présent travail, le processus d'optimisation  $\mathcal{S}(\cdot)$  est effectué par une méthode d'optimisation dite méthode de la région de confiance. Cette méthode est présentée dans la section suivante.

## 4.6 La méthode de la région de confiance

Les méthodes de confiance constituent une catégorie importante des algorithmes pour l'optimisation non linéaire avec ou sans contraintes. Ces méthodes, étudiées dans plusieurs travaux [10], [79], sont considérées comme robustes et fortement convergentes.

Le principe général d'optimisation par les méthodes de confiance est le suivant : *À un instant donné  $k$ , le minimum d'une fonction  $f(x)$  est approché par le minimum d'une approximation quadratique  $m^k(x)$  de la fonction  $f(x)$ .*

Le minimum de l'approximation quadratique  $m^k(x)$  se situe à l'intérieur d'un intervalle ( $\delta^k$ ) appelé "rayon de région de confiance". Cet intervalle est augmenté ou diminué pendant les itérations successives.

Ainsi, pour résoudre un problème d'optimisation présentée sous la forme :

$$\text{Trouver } x^{opt} = \text{Argmin } f(x) \quad (4.15)$$

les étapes générales basées sur une méthode de confiance sont les suivantes :

- définir la région de confiance à un instant  $k$  à l'intérieur d'un intervalle ( $\delta^k$ ) :

$$\mathfrak{R}^k = \{x \mid \|x - x^k\| \leq \delta^k\} \quad (4.16)$$

- choisir un point initial  $x^0$ , un rayon initial  $\delta^0$  et mettre l'itération initiale à  $k = 0$ .
- définir un modèle quadratique  $m^k(x)$  (une approximation quadratique de la fonction  $f(x)$ ) à l'intérieur de la région de confiance  $\mathfrak{R}^k$ .
- trouver la solution ( $\hat{x}^k$ ) qui minimise l'approximation quadratique  $m^k(x)$ .
- tester la solution candidate ( $\hat{x}^k$ ) par la fonction de coût originale  $f(x)$  comme suit :
  - si  $f(\hat{x}^k)$  est acceptable, la solution  $\hat{x}^k$  est adoptée pour être appliquée au pas suivant ( $x^{k+1} = \hat{x}^k$ ) et le rayon de la région de confiance est élargi ( $\delta^{k+1} = \beta\delta^k$ ) où  $\beta > 1$
  - si  $f(\hat{x}^k)$  n'est pas acceptable, la solution  $\hat{x}^k$  est rejetée et la solution actuelle  $x^k$  est adoptée ( $x^{k+1} = x^k$ ) mais le rayon de la région de confiance est diminué ( $\delta^{k+1} = \beta\delta^k$ ) où  $\beta < 1$
  - répéter la procédure et incrémenter  $k$  par 1.

Notons que les étapes précédentes sont décrites d'une façon très générale. La manière d'appliquer ces étapes peut varier selon le problème envisagé.

## 4.7 Principe de l'approche proposée

Le principe de la commande prédictive non linéaire proposée dans le présent travail est développé dans cette section par les points suivants :

1. Le choix des variables de commande et les contraintes à imposer.
2. La formulation du modèle de prédiction.
3. La formulation du problème de commande.
4. La définition du problème d'optimisation en boucle ouverte.
5. Le schéma de commande proposé en boucle fermée.

### 4.7.1 Le choix des variables de commande et les contraintes à imposer

Dans un lit mobile simulé de quatre sections, il y a huit débits. Ces débits sont divisés en deux groupes (figure 4.3), à savoir :

1. les débits internes (les débits du fluide dans les quatre sections  $Q^{(I)}$ ,  $Q^{(II)}$ ,  $Q^{(III)}$ ,  $Q^{(IV)}$ ).
2. les débits externes (les débits entrants et sortants du lit mobile simulé) :
  - $Q_D$  : le débit du désorbant.
  - $Q_{Ext}$  : le débit de l'extrait.
  - $Q_F$  : le débit de l'alimentation.
  - $Q_{RAF}$  : le débit du raffinat.

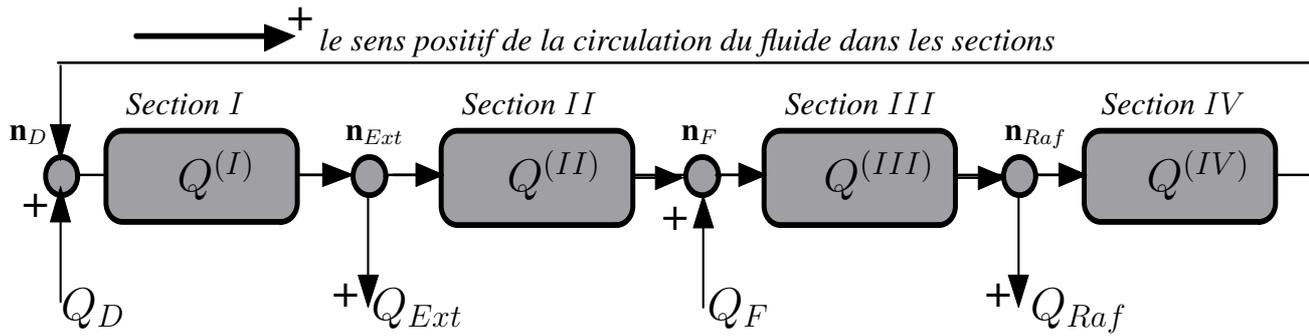


FIG. 4.3 – Les débits dans un lit mobile simulé.

Les variables de commande choisies dans le schéma proposé sont les débits ( $Q_D, Q_{Ext}, Q_F, Q^{(IV)}$ ) et la période de commutation ( $\mathcal{T}_{sw} > 0$ ).

En effet, ce choix n'est pas obligatoire, le débit du recyclage ( $Q^{(IV)}$ ) peut être remplacé par le débit du raffinat ( $Q_{Raf}$ ) et dans certains cas lorsque la charge liquide vient de l'extérieur, le débit d'alimentation ( $Q_F$ ) ne peut pas être facilement manipulé. Dans tous les cas, l'algorithme de commande proposé dans cette thèse peut être facilement adapté en fonction des possibilités présentes.

Par la suite,  $U$  dénote le vecteur des variables de commande:

$$U := (U_1 \ U_2 \ U_3 \ U_4 \ U_5) = (Q_D \ Q_{Ext} \ Q_F \ Q^{(IV)} \ \mathcal{T}_{sw})^T \in \mathbb{U} \quad (4.17)$$

où :  $\mathbb{U}$  est un ensemble compact de valeurs possibles qui représente les contraintes sur la commande. Les variables qui appartiennent à cet ensemble ( $\mathbb{U}$ ) doivent satisfaire les deux conditions nécessaires suivantes :

1. Les valeurs des variables de commande ( $Q_D, Q_{Ext}, Q_F, Q^{(IV)}$  et  $\mathcal{T}_{sw}$ ) doivent être dans les limites autorisées. La condition suivante doit alors être imposée :

$$U_i^{min} < U_i \leq U_i^{max} \quad ; \quad \forall i \in \{1, \dots, 5\} \quad (4.18)$$

où  $U_i^{min}$  et  $U_i^{max}$  représentent respectivement les limites inférieure et supérieure que les variables de commande doivent respecter et  $i$  est l'indice de commande via l'ordre présenté dans le vecteur (4.17).

2. Les débits internes dans le lit mobile simulé doivent circuler dans le sens positif (voir figure 4.3). Pour garantir cette condition, la contrainte suivante, démontrée dans la section suivante, doit être imposée :

$$U_2 < U_1 + \min\{U_3, U_4\} \quad (4.19)$$

En regroupant les contraintes (4.18) et (4.19), l'ensemble admissible  $\mathbb{U}$  est défini par :

$$\mathbb{U}_i(U) := \begin{cases} i \neq 2 & [U_i^{min} \ U_i^{max}] \\ i = 2 & [U_2^{min} \ \min(U_2^{max}, U_1 + \min\{U_3, U_4\})] \end{cases} \quad (4.20)$$

### Démonstration de la contrainte (4.19)

Selon le mécanisme de séparation dans le lit mobile simulé, les débits doivent circuler dans le bon sens de circulation (le sens positif sur la figure 4.3). Normalement les débits ( $Q_D, Q_{Ext}, Q_F, Q^{(IV)}$ ) peuvent être directement orientés dans le sens positif propre à chacun puisqu'ils sont des variables de commande (accessibles à la manipulation). Cependant, les débits restants ( $Q^{(I)}, Q^{(II)}, Q^{(III)}, Q_{Raf}$ ) sont susceptibles d'être négatifs s'il n'y a pas d'autres contraintes sur les variables de commande.

Pour déduire les contraintes à imposer sur les variables de commande ( $Q_D, Q_{Ext}, Q_F, Q^{(IV)}$ ) afin de s'assurer que les débits ( $Q^{(I)}, Q^{(II)}, Q^{(III)}, Q_{Raf}$ ) circulent dans le bon sens (le sens positif), les équations de bilan dans le lit mobile simulé sont utilisées comme suit :

– **Le bilan au nœud de désorption ( $n_D$ ) :**

$$Q^{(I)} = Q_D + Q^{(IV)} \quad (4.21)$$

ainsi pour que le débit dans la première section soit positif ( $Q^{(I)} > 0$ ) la condition suivante est suffisante :

$$Q_D > 0 \quad \text{et} \quad Q^{(IV)} > 0 \quad (4.22)$$

cette condition est naturellement satisfaite puisque  $Q_D$  et  $Q^{(IV)}$  sont des variables de commande et peuvent être orientés dans le bon sens.

– **Le bilan au nœud d'extraction ( $n_{Ext}$ ) :**

$$Q^{(II)} = Q^{(I)} - Q_{ex} = Q_D + Q^{(IV)} - Q_{ex} \quad (4.23)$$

ainsi pour que le débit dans la deuxième section soit positif ( $Q^{(II)} > 0$ ) la condition suivante est nécessaire :

$$Q_{ex} < Q_D + Q^{(IV)} \quad (4.24)$$

– **Le bilan au nœud d'alimentation ( $n_F$ ) :**

$$Q^{(III)} = Q^{(II)} + Q_F = Q_D + Q^{(IV)} - Q_{ex} + Q_F \quad (4.25)$$

ainsi pour que le débit dans la troisième section soit positif ( $Q^{(III)} > 0$ ) la condition suivante est nécessaire :

$$Q_{ex} < Q_D + Q^{(IV)} + Q_F \quad (4.26)$$

– **Le bilan au nœud de raffinage ( $n_{Raf}$ ) :**

$$Q_R = Q^{(III)} - Q^{(IV)} \quad (4.27)$$

ainsi pour que le débit du raffinat soit positif ( $Q_R > 0$ ) la condition suivante est nécessaire :

$$Q^{(III)} > Q^{(IV)} \quad (4.28)$$

réécrivant l'équation (4.25) comme suit :

$$Q^{(III)} = Q^{(IV)} + (Q_D + Q_F - Q_{ex}) \quad (4.29)$$

la condition pour laquelle 4.28 est vérifiée, devient :

$$Q_{ex} < Q_D + Q_F \quad (4.30)$$

Par conséquent, pour que les débits  $(Q^{(I)}, Q^{(II)}, Q^{(III)}, Q_R)$  soient positifs, les inégalités (4.24), (4.26) et (4.30) doivent être satisfaites, à savoir :

$$\begin{aligned} Q_{ex} &< Q_D + Q^{(IV)} \\ Q_{ex} &< Q_D + Q^{(IV)} + Q_F \\ Q_{ex} &< Q_D + Q_F \end{aligned}$$

Cela est réduit à la condition suivante :

$$Q_{ex} < Q_D + \min(Q_F, Q^{(IV)}) \quad (4.31)$$

qui est la contrainte (4.19) elle-même compte tenu de la notation (4.17).

## 4.7.2 La formulation du modèle de prédiction

Le modèle choisi pour la prédiction de l'évolution des variables d'état est un modèle de mélangeurs en cascade parfaitement agités. Considérant un lit mobile simulé binaire (permettant de séparer deux composants) de  $n_c$  colonnes, chaque colonne est modélisée par  $n_x$  mélangeurs.

Les variables d'état sont les concentrations des composants à séparer, ainsi le vecteur d'état  $C \in \mathbb{R}_+^{2n_c n_x}$  est obtenu en regroupant le vecteur d'état pour le composant **A** ( $C_A \in \mathbb{R}_+^{n_c n_x}$ ) et pour le composant **B** ( $C_B \in \mathbb{R}_+^{n_c n_x}$ ).

La période de commutation  $\mathcal{T}_{sw}$  est considérée comme une variable de décision dans le schéma de commande prédictive proposé. Ainsi, la période de commutation appliquée durant la période d'échantillonnage  $[t_k, t_{k+1} := t_k + \mathcal{T}_{sw}^k[$  est notée par  $\mathcal{T}_{sw}^k$ . Les effets des commutations sont pris en compte dans les équations du système en introduisant un indice de configuration  $\sigma \in \{1, \dots, n_c\}$ . L'évolution de  $\sigma$  est constante par morceaux avec un saut à l'instant de commutation  $t_k$  :

$$\begin{aligned} \sigma(t_k + \mathcal{T}_{sw}^k) &= \sigma(t_k) \bmod (n_c) + 1 \\ t_{k+1} &= t_k + \mathcal{T}_{sw}^k = t_k + U_5^k \end{aligned} \quad (4.32)$$

où  $U_5^k$  est la variable de décision qui représente la période de commutation dans le vecteur de commande (4.17).

L'évolution des variables de commande  $U(\cdot)$  est constante par morceaux puisqu'elles sont constantes

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

entre deux commutations successives, ainsi les équations représentant la dynamique du système durant la période d'échantillonnage  $[t_k, t_{k+1}]$ , peuvent être écrites comme suit :

$$\dot{C}(t) = F_{\sigma(k)}\left(C(t), U^k, C_F(t)\right) \quad t \in [t_k, t_{k+1}[ \quad (4.33)$$

$$\sigma(t_k + U_5^k) = \sigma(t_k) \bmod (n_c) + 1 \quad (4.34)$$

où  $F_{\sigma}(\cdot)$  représente un modèle du procédé. Ce modèle tient compte des effets de commutations par l'intermédiaire de l'indice  $\sigma$ .

Il est important de signaler que le schéma de commande peut être basé sur n'importe quel modèle pouvant être utilisé pour prédire l'évolution des variables d'état du procédé.

Notons que, la stratégie de contrôle proposée suppose que les variables d'état sont complètement mesurées. Il est important alors de construire un observateur d'état [54, 6].

### 4.7.3 Formulation du problème de commande

Le lit mobile simulé est un procédé de séparation des composants se trouvant initialement mélangés dans un liquide. Les puretés des composants séparés par ce procédé ont une importance capitale, les quantités totales produites ainsi que la date limite de livraison sont importantes. Par conséquent, une stratégie de commande d'un lit mobile simulé doit nécessairement garantir que ces objectifs soient atteints tout en considérant des aspects économiques.

Ainsi dans cette section, les objectifs d'une loi de commande sont abordés en premier, ensuite les aspects économiques formulés par des critères d'optimisation sont présentés.

#### Les objectifs de la commande

En supposant qu'un lit mobile simulé fonctionne pendant une période de production  $[t_0, t_0 + T]$ , les exigences d'un client sont les suivantes :

##### 1. Les puretés des produits :

Dans une séparation binaire par le lit mobile simulé, les deux composants séparés **A** et **B** sont récupérés respectivement à l'extraction et au raffinage. Ainsi, les puretés réalisées sont :

- la pureté ( $y_{Ext}$ ) du composant (**A**) qui est le plus fortement adsorbé par la phase solide. Ce composant est récupéré à l'extraction.
- la pureté ( $y_{RAF}$ ) du composant (**B**) qui est le moins fortement adsorbé par la phase solide. Ce composant est récupéré au raffinage.

La pureté d'un composant existant dans un mélange est définie comme "le rapport entre la quantité de ce composant et la quantité totale des constituants de ce mélange". Pour définir formellement les puretés, définissons tout d'abord les quantités des composants obtenues :

$$m_i^{Ext} = \int_{t_0}^{t_0+T} Q_{Ext}(t) \cdot C_i^{Ext}(t) dt \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (4.35)$$

$$m_i^{RAF} = \int_{t_0}^{t_0+T} Q_{RAF}(t) \cdot C_i^{RAF}(t) dt \quad ; \quad i \in \{\mathbf{A}, \mathbf{B}\} \quad (4.36)$$

où :

- $m_i^{Ext}$  : la quantité totale du composant  $i$  produite à l'extraction pendant une période de production  $[t_0, t_0 + T]$ .
- $m_i^{Raf}$  : la quantité totale du composant  $i$  produite au raffinage pendant une période de production  $[t_0, t_0 + T]$ .
- $C_i^{Ext}, C_i^{Raf}$  : les concentrations du composant  $i$  se trouvant respectivement dans l'extraction et dans le raffinage.
- $Q_{Ext}, Q_{Raf}$  : les débits de l'extraction et du raffinage.

Ainsi, les puretés sont calculées par les équations suivantes :

- la pureté du composant **A** à l'extraction :

$$y_{Ext} = \frac{m_{\mathbf{A}}^{Ext}}{m_{\mathbf{A}}^{Ext} + m_{\mathbf{B}}^{Ext}} \quad (4.37)$$

- la pureté du composant **B** au raffinage :

$$y_{Raf} = \frac{m_{\mathbf{B}}^{Raf}}{m_{\mathbf{A}}^{Raf} + m_{\mathbf{B}}^{Raf}} \quad (4.38)$$

Les puretés des composants ( $y_{Ext}$  et  $y_{Raf}$ ) doivent atteindre les valeurs désirées ( $y_{Ext}^d$  et  $y_{Raf}^d$ ). Ceci est exprimé par l'inégalité suivante :

$$\min \left\{ y_{Ext}^d - y_{Ext}, y_{Raf}^d - y_{Raf} \right\} \leq 0 \quad (4.39)$$

## 2. La quantité totale produite:

Les quantités totales des composants ( $m_{\mathbf{A}}^{Ext}$  et  $m_{\mathbf{B}}^{Raf}$ ) doivent atteindre les quantités désirées ( $m_{Ext}^d$  et  $m_{Raf}^d$ ), à savoir :

$$m_{\mathbf{A}}^{Ext} \geq m_{Ext}^d \quad ; \quad m_{\mathbf{B}}^{Raf} \geq m_{Raf}^d \quad (4.40)$$

## 3. La date limite de livraison:

En supposant que dans le plan de production, il y a une date limite  $t^d$  pour livrer les produits, la période de production  $[t_0, t_0 + T]$  ne doit pas la dépasser d'où :

$$t_0 + T \leq t^d \quad (4.41)$$

Cette contrainte est respectée en accélérant le taux de production par le critère (4.45) présenté dans la section suivante.

Une stratégie optimale doit réaliser les objectifs précédents et réduire les coûts des opérations qui sont déterminés par des critères d'optimisation économique présentés dans la section suivante. (Ces critères sont appelés "auxiliaires" dans le contexte de la commande en boucle fermée, voir section 4.7.5).

## Les critères économiques d'optimisation

Une stratégie optimale admissible consiste donc à réaliser les contraintes précédentes (4.39), (4.40) et (4.41) tout en minimisant certains critères économiques, à savoir :

### 1. La quantité du désorbant utilisé :

La séparation dans le lit mobile simulé nécessite l'injection d'un solvant (désorbant) à l'entrée de la première section pour désorber les composants accumulés dans la phase solide et pour régénérer (*nettoyer*) ainsi la phase solide elle-même. Mais le prix de ce solvant est assez élevé, c'est la raison pour laquelle une grande partie des travaux qui concernent l'optimisation du lit mobile simulé s'intéressent à la réduction de la quantité du solvant, citons par exemple [78], [61], [81], [76].

Pour réduire la quantité du solvant, le débit du solvant ( $Q_D$ ) est minimisé par la minimisation du critère suivant :

$$J_D := \int_{t_0}^{t_0+T} Q_D(t) dt \quad (4.42)$$

### 2. L'efficacité :

L'efficacité est améliorée en augmentant le débit d'alimentation ( $Q_F$ ) et en réduisant le débit du solvant ( $Q_D$ ). Ceci est pris en compte par la minimisation du critère d'efficacité suivant :

$$J_E := \int_{t_0}^{t_0+T} \frac{Q_D(t)}{Q_F(t)} dt \quad (4.43)$$

ou bien, lorsque l'efficacité vis-à-vis d'un des deux composants est favorisée, le critère suivant est utilisé :

$$J_E := \int_{t_0}^{t_0+T} \frac{Q_D(t)}{Q_i(t)} dt \quad ; \quad i \in \{Ext, Raf\} \quad (4.44)$$

### 3. L'accélération de taux de production :

Ce critère exprime le besoin d'accélérer le taux de production, ceci est réalisé en augmentant la somme des débits d'alimentation et celui du désorbant, pour cela le critère suivant doit être minimisé :

$$J_P := - \int_{t_0}^{t_0+T} [Q_D + Q_F] d\tau \quad (4.45)$$

L'accélération du taux de production peut être utilisée également pour respecter la date limite de livraison ( $t^d$ ).

### 4. Le rendement :

Le rendement d'une unité de séparation vis-à-vis d'un composant est défini comme le rapport entre la quantité produite et la quantité alimentée de ce composant. L'augmentation du rendement est réalisé en minimisant le débit d'alimentation et en augmentant le débit du soutirage ( $Q_{Ext}$  ou  $Q_{Raf}$ ). Cet objectif est effectué en minimisant le critère suivant :

$$J_R := \int_{t_0}^{t_0+T} \frac{Q_F(t)}{Q_i(t)} dt \quad ; \quad i \in \{Ext, Raf\} \quad (4.46)$$

Pour résumer, dans le présent travail les éléments principaux du problème de commande d'un lit mobile simulé sont les suivants :

- les variables de commande :

$$U := (Q_D \quad Q_{Ext} \quad Q_F \quad Q^{(IV)} \quad \mathcal{T}_{sw})^T$$

- les variables réglées :

$y_{Ext}, y_{Raf}$  (les puretés des composants à séparer calculées par les équations (4.37) et (4.38))

- les critères économiques :

$J_D, J_E, J_P$  et  $J_R$  formulés par les équations (4.42), (4.43), (4.44), (4.45) et (4.46). Un de ces critères économiques est activé selon le contexte.

#### 4.7.4 Définition du problème d'optimisation en boucle ouverte

Comme il a été mentionné précédemment, la commande prédictive implique un problème de commande optimale en boucle ouverte à évaluer à chaque pas d'échantillonnage. Durant chaque période d'échantillonnage (période de commutation), un profil de commande constant est appliqué.

Dans cette section, la stratégie d'optimisation en boucle ouverte est présentée formellement à travers des définitions et des notations présentées dans la suite. Notons tout d'abord que le système est stable en boucle ouverte.

##### Définition 1 [Les solutions moyennes stationnaires]

En appliquant un profil constant de commande  $U(\cdot) \equiv U^0$ , une solution moyenne stationnaire notée par  $\bar{C}(U^0)$  est obtenue, à savoir :

$$\bar{C}(U^0) := \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{U_5^0} \int_t^{t+U_5^0} C(\tau)|_{U(\cdot)=U^0} d\tau \quad (4.47)$$

Rappelons que  $U_5^0$  est la cinquième variable dans le vecteur de commande (4.17) correspondant à la période de commutation.

Une solution moyenne stationnaire existe grâce à la stabilité des cycles limites en boucle ouverte. La figure 4.4 montre le comportement discontinu ainsi que la solution moyenne au cours des 63 premières commutations sous l'effet d'un profil de commande constant.

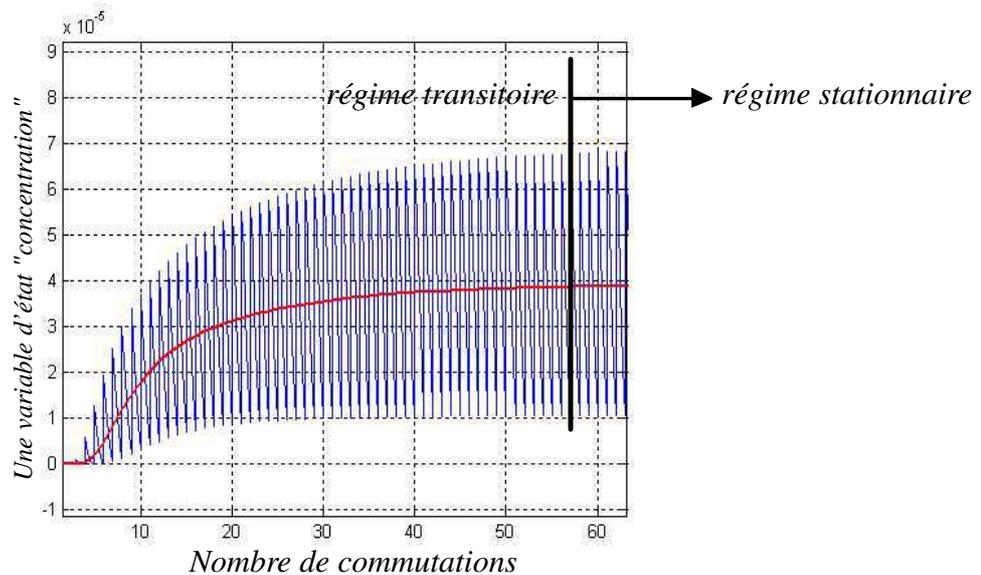


FIG. 4.4 – L'évolution d'une variable d'état (concentration) et celle de sa moyenne. Cette évolution subit des discontinuités issues des commutations des robinets.

Cette solution moyenne stationnaire (4.47) permet de calculer les puretés en régime stationnaire comme suit.

Les puretés peuvent être calculées en terme des concentrations en remplaçant les expressions des quantités des composants (4.35) et (4.36) dans les équations (4.37) et (4.38), à savoir :

$$\mathbf{y}_{Ext}(t) = \frac{\int_t^{t+\mathcal{T}_{sw}} Q_{Ext}(\tau) C_{\mathbf{A}}^{Ext}(\tau) d\tau}{\int_t^{t+\mathcal{T}_{sw}} \left[ Q_{Ext}(\tau) C_{\mathbf{A}}^{Ext}(\tau) + Q_{Ext}(\tau) C_{\mathbf{B}}^{Ext}(\tau) \right] d\tau} \quad (4.48)$$

$$\mathbf{y}_{Raf}(t) = \frac{\int_t^{t+\mathcal{T}_{sw}} Q_{Raf}(\tau) C_{\mathbf{B}}^{Raf}(\tau) d\tau}{\int_t^{t+\mathcal{T}_{sw}} \left[ Q_{Raf}(\tau) C_{\mathbf{A}}^{Raf}(\tau) + Q_{Raf}(\tau) C_{\mathbf{B}}^{Raf}(\tau) \right] d\tau} \quad (4.49)$$

Dans ces équations,  $\mathbf{y}_{Ext}(t)$  et  $\mathbf{y}_{Raf}(t)$  représentent l'évolution des puretés durant une période de commutation  $[t, t + \mathcal{T}_{sw}]$ . Utilisant la solution moyenne stationnaire (4.47) dans les équations (4.48) et (4.49) sous un profil de commande constant (y compris  $Q_{Ext}$  et  $Q_{Raf}$ ), les puretés en régime stationnaire sont données comme suit :

$$\bar{\mathbf{y}}_{Ext}(U^0) = \frac{\bar{C}_{\mathbf{A}}^{Ext}(U^0)}{\bar{C}_{\mathbf{A}}^{Ext}(U^0) + \bar{C}_{\mathbf{B}}^{Ext}(U^0)} \quad (4.50)$$

$$\bar{\mathbf{y}}_{Raf}(U^0) = \frac{\bar{C}_{\mathbf{B}}^{Raf}(U^0)}{\bar{C}_{\mathbf{A}}^{Raf}(U^0) + \bar{C}_{\mathbf{B}}^{Raf}(U^0)} \quad (4.51)$$

où,  $\bar{\mathbf{y}}_{Ext}(U^0)$ ,  $\bar{\mathbf{y}}_{Raf}(U^0)$  sont les puretés en régime stationnaire obtenues en appliquant un profil constant  $U^0$ .

Le profil de commande  $U^0$  est appelé "*profil  $\eta$ -admissible*" si les puretés obtenues en régime stationnaire ( $\bar{\mathbf{y}}_{Ext}(U^0)$ ,  $\bar{\mathbf{y}}_{Raf}(U^0)$ ) sont supérieures aux puretés désirées avec une "*petite*" marge  $\eta > 0$ . Ce dernier concept est formulé par la définition suivante.

### Définition 2 [Les profils $\eta$ -admissibles constants]

Soit  $\eta > 0$ ,  $U^0 \in \mathbb{U}$  est dit  $\eta$ -admissible si :

$$\Psi_{Ext}(U^0) := \bar{\mathbf{y}}_{Ext}(U^0) - \mathbf{y}_{Ext}^d \geq \eta > 0 \quad (4.52)$$

$$\Psi_{Raf}(U^0) := \bar{\mathbf{y}}_{Raf}(U^0) - \mathbf{y}_{Raf}^d \geq \eta > 0 \quad (4.53)$$

dans lesquelles  $\mathbf{y}_{Ext}^d$  et  $\mathbf{y}_{Raf}^d$  sont les puretés désirées.

L'ensemble des profils admissibles défini ci-dessus est désormais noté  $\mathcal{U}_\eta \subset \mathbb{U}$ . Ainsi, l'importance de la définition précédente vient du fait qu'en appliquant un profil admissible ( $U^0 \in \mathcal{U}_\eta$ ) les exigences sur les puretés et sur les quantités produites (4.39) et (4.40) sont réalisées dans un temps fini.

La marge de pureté  $\eta > 0$  est utilisée pour compenser le "*manque*" de pureté qui peut survenir durant la phase transitoire.

Les contraintes (4.52) et (4.53) peuvent être réécrites en utilisant une fonction coût (critère asymptotique de pureté à minimiser) de la manière suivante :

$$J_{pur}(U^0, \eta) \leq 0 \quad (4.54)$$

ce critère est donné par l'équation suivante (voir (4.52) et (4.53)) :

$$J_{pur}(U, \eta) := \eta - \min \left\{ \Psi_{Ext}(U), \Psi_{Raf}(U) \right\} \quad (4.55)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

L'ensemble d'admissibilité dévient ainsi :

$$\mathcal{U}_\eta := \left\{ U \in \mathbb{U} \quad \text{tel que} \quad J_{pur}(U, \eta) \leq 0 \right\} \quad (4.56)$$

Autrement dit, en appliquant un profil de commande constant admissible  $U \in \mathcal{U}_\eta$  les contraintes sur les puretés (4.52) et (4.53) sont respectées après un certain temps fini et le critère  $J_{pur}(U, \eta)$  devient négatif.

La figure 4.5 a montre l'évolution prédite de la pureté  $y(., U)$  durant deux horizons de prédiction ( $[k, k+T[$ , et  $[k+1, k+1+T[$ ) sous deux profils de commande  $U^k$  et  $U^{k+1}$  (figure 4.5 b). Il est clair qu'en appliquant la commande  $U^k$ , la pureté  $y(., U^k)$  est asymptotiquement en-dessous de la valeur désirée (la ligne discontinue figure 4.5 a) et le critère asymptotique de pureté défini par (4.55) est positif ( $J_{pur}(U, \eta) > 0$ ). Mais en appliquant la commande  $U^{k+1}$ , la pureté  $y(., U^{k+1})$  atteint la valeur désirée après un certain temps (la ligne continue, figure 4.5 a) et le critère asymptotique de pureté défini par (4.55) devient négatif ( $J_{pur}(U, \eta) \leq 0$ ). Le profil  $U^{k+1}$  est alors dit  $\eta$ -admissible.

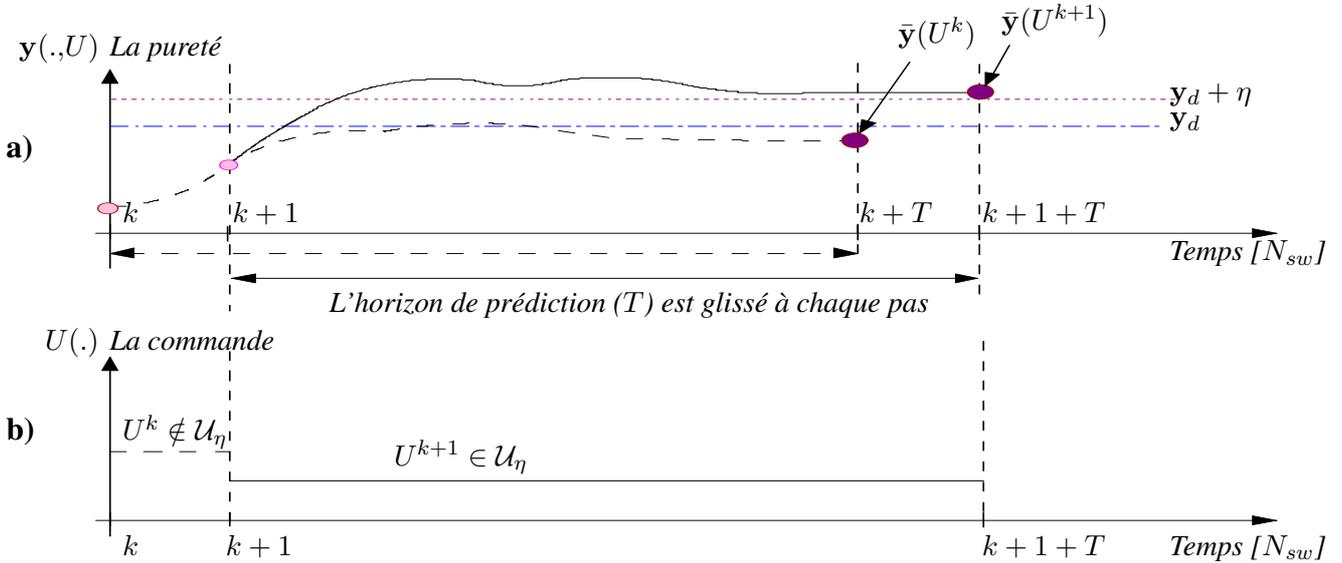


FIG. 4.5 – L'évolution de la pureté prédite sur deux horizons de prédiction successifs ( $[k, k+T[$ , et  $[k+1, k+1+T[$ ) sous deux profils de commande ( $U^k$  et  $U^{k+1}$ ). En appliquant le profil de commande  $U^k$  la pureté obtenue en régime stationnaire  $\bar{y}(U^k)$  est inférieure à la valeur désirée (sous-figure a), donc ce profil de commande n'est pas dans  $\mathcal{U}_\eta$ . Mais, en appliquant le profil de commande  $U^{k+1}$  la pureté en régime stationnaire  $\bar{y}(U^{k+1})$  est supérieure à la pureté désirée avec la marge  $\eta$ , alors le profil de commande est  $\eta$ -admissible ( $U^{k+1} \in \mathcal{U}_\eta$ ).

Dans la définition précédente, l'ensemble d'admissibilité (4.56) est défini en utilisant la solution moyenne stationnaire. Ainsi, les profils de commande appartenant à cet ensemble (4.56) permettent de réaliser des puretés supérieures aux valeurs désirées avec la marge  $\eta$  dans le régime stationnaire. La définition suivante (celle de la configuration admissible invariante  $(C, U)$ ) permet de définir l'ensemble des paires (état initial, profil de commande) qui correspondent à une situation où les puretés désirées sont déjà respectées et continueront à l'être si la commande constante est maintenue. Cette

définition (la configuration admissible invariante) est basée sur la solution moyenne transitoire où les puretés sont exprimées par les équations suivantes :

$$\mathbf{y}_{Ext}(t; C; U) = \frac{\int_t^{t+U_5} C_{\mathbf{A}}^{Ext}(\tau; C; U) d\tau}{\int_t^{t+U_5} [C_{\mathbf{A}}^{Ext}(\tau; C; U) + C_{\mathbf{B}}^{Ext}(\tau; C; U)] d\tau} \quad (4.57)$$

$$\mathbf{y}_{Raf}(t; C; U) = \frac{\int_t^{t+U_5} C_{\mathbf{B}}^{Raf}(\tau; C; U) d\tau}{\int_t^{t+U_5} [C_{\mathbf{A}}^{Raf}(\tau; C; U) + C_{\mathbf{B}}^{Raf}(\tau; C; U)] d\tau} \quad (4.58)$$

où,  $C(\tau; C; U)$  est la solution à l'instant  $\tau$  démarrée à l'instant  $t$  avec l'état initial  $C$  en appliquant un commande constant  $U$ .

### Définition 3 [La configuration admissible invariante]

L'ensemble des configurations admissibles invariantes  $\mathcal{A}_\eta^{ad}$  est l'ensemble des paires  $(C, U) \in \mathbb{R}^{2ncn_x} \times \mathcal{U}_\eta$  d'états initiaux  $C$  et de profils  $\eta$ -admissibles constants  $U$  tels que pour tout  $t \in [0, \infty]$  :

$$\Phi_{Ext}(t) := \mathbf{y}_{Ext}(t; C; U) - \mathbf{y}_{Ext}^d \geq \eta > 0 \quad (4.59)$$

$$\Phi_{Raf}(t) := \mathbf{y}_{Raf}(t; C; U) - \mathbf{y}_{Raf}^d \geq \eta > 0 \quad (4.60)$$

Autrement dit, dans le cas où  $(C, U) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}$  en appliquant le profil constant  $U$  à l'état  $C$ , les puretés désirées sont satisfaites dès l'instant actuel et pour tout le futur. Ainsi, le critère correspondant (à minimiser) est dit critère invariant de pureté et écrit comme suit :

$$J_{pur}^{inv}(C, U, \eta, T) := \max_{t \in [0, T]} [\eta - \min \{ \Phi_{Ext}(t), \Phi_{Raf}(t) \}] \quad (4.61)$$

L'ensemble de configurations admissibles invariantes ( $\mathcal{A}_\eta^{ad}$ ) peut alors être écrit comme suit :

$$\{(C, U) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}\} \Leftrightarrow \{J_{pur}^{inv}(C, U, \eta, T) \leq 0\} \quad (4.62)$$

Notons que pour que la condition (4.62) soit vrai, il faut que l'horizon de prédiction ( $T$ ) soit suffisamment supérieur au temps de réponse du système en boucle ouverte.

Par conséquent, quand le critère invariant de pureté  $J_{pur}^{inv}(C, U, \eta, T)$  devient négatif, le système rentre dans la configuration invariante où les puretés désirées sont respectées tant que la commande constante est maintenue.

Dans la figure 4.6, le système arrive à la configuration invariante au troisième pas ( $k + 2$ ) en appliquant le profil de commande  $U^{k+2}$  à l'état initial  $C^{k+2}$ . Dans cette phase, la pureté désirée est réalisée dès l'instant actuel  $k + 2$  et pour tout le futur (figure 4.6, **a**) et le critère invariant de pureté  $J_{pur}^{inv}(C^{k+2}, U^{k+2}, \eta, T)$  devient négatif selon (4.61). Le système arrive ainsi à la configuration admissible invariante  $(C^{k+2}, U^{k+2}) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}$ .

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

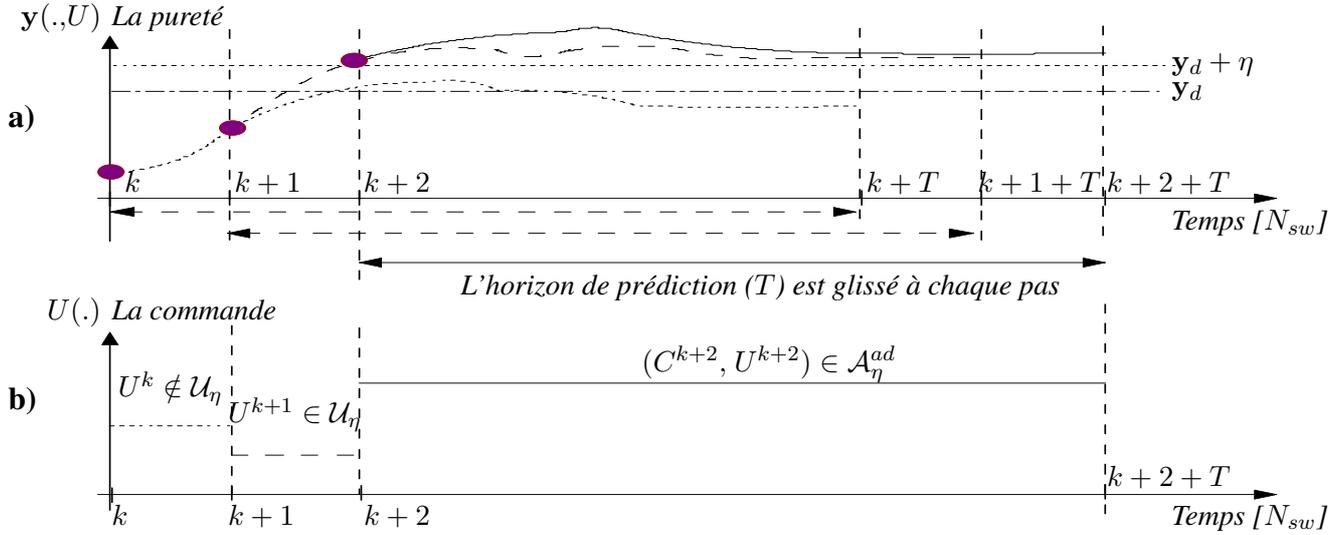


FIG. 4.6 – L'évolution de la pureté prédite sur trois horizons de prédiction successifs ( $[k, k + T[$ ,  $[k + 1, k + 1 + T[$  et  $[k + 2, k + 2 + T[$ ) sous les profils de commande ( $U^k$ ,  $U^{k+1}$  et  $U^{k+2}$ ). Cette figure est la continuation de la figure 4.5. En appliquant le profil de commande  $U^{k+2}$  à l'état initial  $C^{k+2}$  (sous figure 4.6 b), la pureté obtenue est supérieure à la valeur désirée avec la marge  $\eta$  dès l'instant actuel ( $k + 2$ ) et pour tout le futur (sous figure 4.6 a) et le critère invariant de pureté concerné  $J_{pur}^{inv}(C^{k+2}, U^{k+2}, \eta, T)$  est négatif selon (4.61). Le système arrive à la configuration invariante  $(C^{k+2}, U^{k+2}) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}$ .

L'importance de cette dernière définition réside dans le fait qu'une fois le système parvenu au stade de la configuration invariante où les contraintes sur les puretés peuvent être respectées sous une commande constante, le profil de commande peut alors être optimisé dans les pas suivants afin de minimiser d'autres critères économiques (auxiliaires) comme (4.42), (4.43), (4.44), (4.45) et (4.46) réduisant ainsi le coût des opérations. Ceci est expliqué plus tard dans la section décrivant le schéma de commande en boucle fermée (section 4.7.5)

Les définitions des critères de pureté, le critère asymptotique (4.55) et le critère invariant (4.61), permettent de prendre en compte les contraintes sur les puretés des composants à séparer. Toutefois, il est nécessaire également de prendre en compte les concentrations des composants récupérés afin d'éviter que ces composants soient en état dilué. C'est la raison pour laquelle les critères  $J_{pur}$  et  $J_{pur}^{inv}$  doivent être redéfinis comme suit :

$$J_{pur}(U, \eta) := \eta - \min \left\{ \Psi_{Ext}(U), \Psi_{Raf}(U) \right\} - \frac{\eta}{2C_F} \min \left\{ \bar{C}_A^{Ext}(U), \bar{C}_B^{Raf}(U) \right\} \quad (4.63)$$

$$J_{pur}^{inv}(C, U, \eta, T) := \max_{t \in [0, T]} \left[ \eta - \min \left\{ \Phi_{Ext}(t), \Phi_{Raf}(t) \right\} - \frac{\eta}{2C_F} \min \left\{ \bar{C}_A^{Ext}(U), \bar{C}_B^{Raf}(U) \right\} \right] \quad (4.64)$$

Lorsque le critère  $J_{pur}(U, \eta)$  défini par la nouvelle version (4.63) est négatif sous la commande  $U$ , les contraintes sur les puretés sont alors satisfaites asymptotiquement sous la commande  $U$  avec une marge au moins égale à  $\eta/2$  au lieu de  $\eta$ . Également, lorsque le critère  $J_{pur}^{inv}(C, U, \eta, T)$  défini par la nouvelle version (4.64) est négatif pour la paire  $(C, U)$ , les contraintes sur les puretés sont alors satisfaites d'une façon invariante sous la commande  $U$  avec une marge au moins égale à  $\eta/2$  au lieu de  $\eta$ .

Notons que la nécessité de l'augmentation des concentrations par les équations (4.63) et (4.64) apparaît aussi lorsqu'on s'intéresse à améliorer l'efficacité (4.44) ou bien la productivité (4.45) par exemple, puisque l'augmentation des débits volumiques  $Q_{Ext}$ ,  $Q_F$  ou  $Q_{raf}$  ne conduit pas forcément à améliorer l'efficacité ou à augmenter la productivité s'il n'y pas une augmentation des concentrations. Ce qui permet de conclure que ce sont les débits massiques qui sont pris en compte dans les nouvelles définitions des critères des puretés (4.63) et (4.64). Notons que  $C_F$  est constante, elle est utilisée uniquement comme facteur de normalisation.

Définissons maintenant l'ensemble des profils de commande qui permettent de respecter la date limite de livraison. Tout d'abord, notons par  $\Delta T_{ach}(C^0, U^0)$  le temps nécessaire pour achever les exigences sur les puretés et sur la quantité produite exprimées par les équations (4.39) et (4.40), où  $U^0$  est un profil  $\eta$ -admissible.

#### Définition 4 [Les profils compatibles avec une date limite]

Soit  $t^d$  une date limite, pour tout  $t \in [t_0, t_d]$  et  $\eta > 0$ , un profil compatible avec  $t^d$  est un profil admissible qui permet de respecter la date limite :

$$\mathcal{U}_d(t, \eta) := \left\{ U \in \mathcal{U}_\eta \mid t + \Delta T_{ach}(C(t), U) \leq t^d \right\} \quad (4.65)$$

Cette définition nous amène à la réflexion suivante : lorsqu'un retard est déclaré ou bien qu'une nouvelle demande vient d'être réclamée exigeant un délai relativement court, il pourrait devenir avantageux d'accélérer le taux de production pour finir plus tôt que prévu l'opération actuelle et passer à la nouvelle demande même si cela coûterait plus cher. Ainsi, un bilan du coût doit être établi afin de déterminer le critère à déclencher.

L'augmentation de la production est effectuée en déclenchant le critère correspondant (4.45). Ce critère permet d'accroître la vitesse de production en augmentant le débit du désorbant  $Q_D$  ainsi que celui de l'alimentation  $Q_F$ . Toutefois, les débits ( $Q_F, Q_D$ ) peuvent être augmentés plus vite aux maximums autorisés afin d'accélérer encore le taux de production, pour réaliser cette tâche, la définition suivante est nécessaire.

**Définition 5** Pour tout  $U \in \mathbb{U}$ , on définit la transformation de la commande suivante :

$$\tilde{U} = \Gamma_\rho(U) \Leftrightarrow \begin{cases} \tilde{U}_i = \rho U_i & i \in \{1, \dots, 4\} \\ \tilde{U}_5 = U_5 / \rho \end{cases} \quad (4.66)$$

Définir pour tout  $\rho > 1$  respectant les bornes suivantes :

$$\rho \in \left[ \frac{U_i^{min}}{\min_{1 \leq i \leq 4}(U_i)}, \frac{U_i^{max}}{\max_{1 \leq i \leq 4}(U_i)} \right] \quad (4.67)$$

*Commande prédictive non linéaire d'un lit mobile simulé*

ces bornes garantissent que les contraintes physiques sur les variables de commande exprimées par l'équation (4.18) ne sont pas violées par la transformation  $\Gamma_\rho$ . Cette transformation (4.66) est inspirée du fait qu'en l'absence de diffusion,  $U$  et  $\Gamma_\rho$  amène à une contraction du temps près .

En effet, en l'absence de diffusion, l'équation d'onde s'écrit :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -u \frac{\partial c}{\partial x} \quad (4.68)$$

En multipliant la vitesse par  $\rho > 1$ , l'équation d'onde devient :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\rho u \frac{\partial c}{\partial x} \quad (4.69)$$

La solution obtenue par cette dernière équation (4.69) peut être obtenue exactement en comprimant le temps par le même facteur  $\rho$ , à savoir :

$$\frac{\partial c}{\partial(t/\rho)} = -u \frac{\partial c}{\partial x} \quad (4.70)$$

Ainsi, la multiplication de la vitesse par  $\rho$  permet d'obtenir la même solution en comprimant le temps.

Une telle transformation est utilisée pour améliorer rapidement le  $J_P$  (4.45). Ce critère est amélioré en augmentant le débit d'alimentation et celui de la désorption.

#### 4.7.5 Le schéma de commande proposé en boucle fermée

Avant de décrire en détail le schéma de commande en boucle fermée, une présentation brève et générale de ce schéma est tout d'abord proposée.

Le schéma de commande proposé en boucle fermée tente dans un premier temps de réaliser les puretés désirées des composants et de minimiser ensuite des critères d'ordre économique tout en respectant les contraintes sur les puretés. Ces objectifs sont donc réalisés à travers deux phases principales, à savoir :

- Dans la première phase, toutes les variables de commande ( $U_1 = Q_D$ ,  $U_2 = Q_{Ext}$ ,  $U_3 = Q_F$ ,  $U_4 = Q^{(IV)}$  et  $U_5 = T_{sw}$ ) sont optimisées afin de minimiser le critère asymptotique de pureté  $J_{pur}$ . Cette minimisation conduit aux possibilités suivantes :

1. La procédure d'optimisation trouve une solution locale qui ne permet pas de réaliser asymptotiquement les puretés désirées et le critère asymptotique est positif ( $J_{pur} > 0$ ). Ou bien la solution trouvée est une solution globale mais elle ne permet pas également de respecter les contraintes sur les puretés (objectif irréalisable).

2. La procédure d'optimisation trouve une solution (locale ou globale) permettant de réaliser les puretés désirées (après un certain temps fini) car le critère asymptotique est négatif ( $J_{pur} \leq 0$ ). En poursuivant la minimisation de ( $J_{pur}$ ) période après période, ce critère finit par devenir constant puisqu'il ne peut pas continuer à s'améliorer infiniment. Pendant cette phase, lorsque le critère invariant de pureté devient négatif ( $J_{pur}^{inv} \leq 0$ ), les puretés désirées sont garanties d'une façon invariante et la deuxième phase est déclenchée.
- Dans la deuxième phase, les composantes de la commande ( $Q_D$   $Q_{Ext}$   $Q_F$   $Q^{(IV)}$   $T_{sw}$ ) sont divisées en deux groupes, un groupe est optimisé pour minimiser des critères économiques (auxiliaires), et le deuxième groupe est optimisé pour minimiser le critère invariant de pureté ( $J_{pur}^{inv}$ ). La répartition des variables de commande dans les deux groupes dépend du critère auxiliaire actif.  
La flexibilité du schéma proposé permet de passer d'un critère auxiliaire à un autre à tout moment selon le besoin actuel.

Une description plus détaillée du schéma de commande est présentée ci-après.

### Description du schéma de commande en boucle fermée

Le schéma de commande proposé dans cette thèse est décrit par les étapes suivantes:

#### 1. Les données initiales.

Les paramètres d'initialisation sont divisés en deux groupes, le premier inclut les exigences imposées par le client, à savoir :

- Les qualités des produits à séparer (les puretés désirées  $y_{Ext}^d$  et  $y_{Raf}^d$ )
- Les quantités totales à produire  $m_{Ext}^d$  et  $m_{Raf}^d$ .
- La date limite de livraison  $t^d$ .

le deuxième groupe inclut les paramètres qui permettent d'initialiser convenablement l'algorithme :

- L'instant  $k = 0$  est l'instant de démarrage d'une production qui correspond aux exigences du client.
- La marge initiale de pureté  $\eta_0 > 0$ .
- Un profil constant initial de commande  $U(\cdot) = U^0 \in \mathbb{U}$ .
- L'état initial  $C^k$ .
- L'indice  $i \in \{1, \dots, 5\}$  de composante de la commande sur laquelle portent les tentatives d'amélioration est initialisé à  $i = 1$ .

#### 2. Durant une période de commutation ( $[k, k + 1 := k + U_5^k[$ ).

En appliquant une commande constante  $U^k$  à l'état initial  $C^k$  durant la période d'échantillonnage ( $[k, k + 1 := k + U_5^k[$ ), une estimation/prédiction de l'état  $C^{k+1}$  est obtenue. En utilisant ces informations (la commande  $U^k$  et l'état estimé  $C^{k+1}$ ), la commande future  $U^{k+1}$  est calculée en minimisant un critère donné selon les deux phases principales suivantes :

a) le système n'est pas encore arrivé à la configuration invariante  $(C^k, U^k) \notin \mathcal{A}_\eta^{ad}$  :

Pendant cette phase, la commande  $U^k$  ne permettrait pas d'amener les puretés aux valeurs désirées (commande non admissible  $U^k \notin \mathcal{U}_\eta$ ) ou elle les amène aux valeurs désirées après un certain temps (commande admissible  $U^k \in \mathcal{U}_\eta$ ). Ainsi, la commande  $U^k$  est optimisée pour minimiser le critère asymptotique de pureté  $J_{pur}$  en faisant  $N$  itérations durant la période de commutation actuelle  $([k, k+1 := k + U_5^k])$ , selon l'algorithme suivant :

**Faire  $N$  itérations**

$$(\alpha_i^{k+1}, U^{k+1}) \leftarrow \text{améliorer}(J_{pur}, U^k, \alpha_i^k, i) \quad (4.71)$$

$$i \leftarrow (i \bmod 5) + 1$$

**fin**

où :  $\alpha_i$  est le paramètre de la région de confiance pour la composante de commande  $U_i^k$ . (voir section 4.8.1)

Dans cette procédure, une composante  $U_i^k$  est optimisée à chaque itération en minimisant le critère  $J_{pur}$  et la commande  $U^{k+1}$  est mise à jour. Rappelons que, selon le principe d'optimisation distribuée dans le temps, le choix de  $N$  doit être compatible avec le temps de calcul disponible durant une période de commutation.

Comme il a été mentionné au début de cette section, l'optimisation du critère asymptotique de pureté  $J_{pur}$  conduit à deux situations, soit la procédure d'optimisation ne trouve pas de solution admissible, les puretés désirées ne sont pas réalisables car le critère asymptotique de pureté est toujours positif ( $J_{pur} > 0$ ), soit la procédure d'optimisation trouve une solution qui permet d'amener les puretés aux valeurs désirées après un certain temps où le critère correspondant est négatif ( $J_{pur} \leq 0$ ). Dans cette phase, le critère  $J_{pur}$  continue d'être amélioré jusqu'au moment où il devient constant. Durant cette phase, lorsque le critère invariant de pureté devient négatif ( $J_{pur}^{inv} \leq 0$ ) la deuxième phase est déclenchée.

b) le système arrive à la configuration invariante  $(C^k, U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}$  :

Dans cette phase, en appliquant une commande constante  $U^k$  à l'état initial  $C^k$  les puretés sont supérieures aux valeurs désirées d'une façon invariante (dès l'instant actuel et pour tout le futur). Dans ce cas, la commande peut être améliorée afin de minimiser un autre critère auxiliaire indiqué par  $J_a$  comme (4.42), (4.43), (4.44), (4.45) ou (4.46). Dans cette phase, les composantes de la commande sont divisées en deux groupes en fonction du critère auxiliaire choisi, à savoir :

$$U := \bigotimes_{i \in I_p \cup I_a} U_i \quad ; \quad I_p, I_a \subset \{1, \dots, 5\} \quad (4.72)$$

Un groupe de composantes de la commande dont l'indice  $i$  appartient à l'ensemble  $I_p$  et un autre groupe dont l'indice  $i$  appartient à l'ensemble  $I_a$ . (La distribution des composantes de la

commande entre les deux groupes n'est pas fixe et dépend du critère auxiliaire choisi).  $I_p$  et  $I_a$  sont les partitions de  $\{1, \dots, 5\}$  dans lesquelles,  $I_p$  est l'ensemble des indices de composantes de la commande qui sont utilisées pour créer une marge sur la pureté en minimisant  $J_{pur}^{inv}$  et  $I_a$  est l'ensemble des indices de composantes de la commande qui sont utilisées pour minimiser un critère auxiliaire  $J_a$ . Le choix du critère auxiliaire à minimiser dépend du contexte, à savoir :

1. Soit  $U^k \in \mathcal{U}_d(t_k, \eta)$  (voir (4.65)), dans ce cas la date limite peut être respectée et par conséquent, l'optimisation auxiliaire est concentrée sur un des critères auxiliaires (à minimiser) suivants avec la partition correspondante :

✓ Le critère qui permet de réduire la consommation du solvant,

$$J_a = J_D := Q_D \quad ; \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = Q_D \quad ; \quad (I_a := \{1\}) \quad (4.73)$$

✓ Le critère qui permet d'augmenter l'efficacité,

$$J_a = J_E := \frac{Q_D}{Q_{Ext}} \quad ; \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = (Q_D \ Q_{Ext})^T \quad ; \quad (I_a := \{1,2\}) \quad (4.74)$$

✓ Le critère qui permet d'augmenter le rendement,

$$J_a = J_R := \frac{Q_F}{Q_{Ext}} \quad ; \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = (Q_F \ Q_{Ext})^T \quad ; \quad (I_a := \{3,2\}) \quad (4.75)$$

2. Soit  $U^k \notin \mathcal{U}_d(t_k, \eta)$ , dans ce cas la date limite ne peut pas être respectée et par conséquent, le critère qui permet d'accélérer le taux de production est déclenché permettant ainsi de respecter la date limite de livraison, ce critère est le suivant :

$$J_a = J_P := -(Q_D + Q_F) \quad ; \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = (Q_D \ Q_F)^T \quad ; \quad (I_a := \{1,3\}) \quad (4.76)$$

Remarque: l'augmentation seulement du débit  $Q_F$  par la minimisation du critère  $J_a = J_P := -(Q_F)$  ne garantit pas la maximisation des débits si le débit  $Q_D$  n'est pas au moins gardé constant (selon  $Q_D + Q_F = Q_{Ext} + Q_{RAF}$ ). C'est la raison pour laquelle le débit  $Q_D$  doit également être augmenté pour garantir la maximisation des débits.

Dans le cas où le système arrive à la configuration invariante  $(C^k, U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}$  la procédure d'optimisation effectuée durant une période de commutation  $[k, k+1[$  est décrite par la suite,

#### Faire $N$ itérations

$$(\alpha_i^{k+1}, U^{k+1}) \leftarrow \text{améliorer}(J^{(i)}, U^k, \alpha_i^k, i) \quad (4.77)$$

$$\text{sous la contrainte } (C^{k+1}, U^{k+1}) \in \mathcal{A}_\eta^{ad} \quad (4.78)$$

$$\text{et } U^{k+1} \in \mathcal{U}_d(t_{k+1}, \eta) \text{ si } U^k \in \mathcal{U}_d(t_k, \eta) \quad (4.79)$$

$$\text{tester } U^{k+1} \leftarrow \Gamma_\rho(U^{k+1}) \text{ avec } \rho > 1 \text{ sous (4.67)} \quad (4.80)$$

sous les contraintes (4.78) et (4.79)

$$i \leftarrow (i \bmod 5) + 1$$

**fin**

où :

$$J^{(i)} := \begin{cases} J_a & \text{si } i \in I_a \\ J_{pur}^{inv} & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.81)$$

où  $J_a$  est donné par une des équations (4.73), (4.74) (4.75) ou (4.76) selon le contexte. Remarquons que l'optimisation dans les étapes (4.77) et (4.80) est effectuée sous les contraintes (4.78) et (4.79). Autrement dit, l'optimisation d'un critère auxiliaire doit garantir ce qui est déjà réalisé (la qualité des produits et le respect de la date limite). Ceci est toujours réalisable puisque la valeur actuelle de commande ( $U^k$ ) est une solution admissible.

La figure 4.7 illustre la philosophie de la commande proposée en boucle fermée. Cette philosophie consiste en deux étapes principales. Dans la première, le système n'est pas encore arrivé à la configuration invariante ( $(C^k, U^k) \notin \mathcal{A}_\eta^{ad}$ ). Ceci est indiqué par le fait que le critère invariant de pureté est positif ( $J_{pur}^{inv} > 0$ ).

Dans cette phase, toutes les composantes de la commande (les débits et la période de commutation) sont utilisées pour minimiser  $J_{pur}$  [cas (a) décrit ci-dessus].

Une fois que  $J_{pur}^{inv}$  devient négatif le système arrive à la configuration invariante ( $(C^k, U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{ad}$ ) et la deuxième phase est déclenchée [cas (b) décrit ci-dessus].

Dans cette phase, les composantes de la commande dont l'indice appartient à l'ensemble  $I_p$  sont utilisées pour créer une marge de pureté en minimisant le critère de pureté invariant ( $J_{pur}^{inv}$ ) alors que le reste des composantes de la commande dont l'indice appartient à l'ensemble  $I_a$  sont utilisées pour minimiser le critère auxiliaire  $J_a$ .

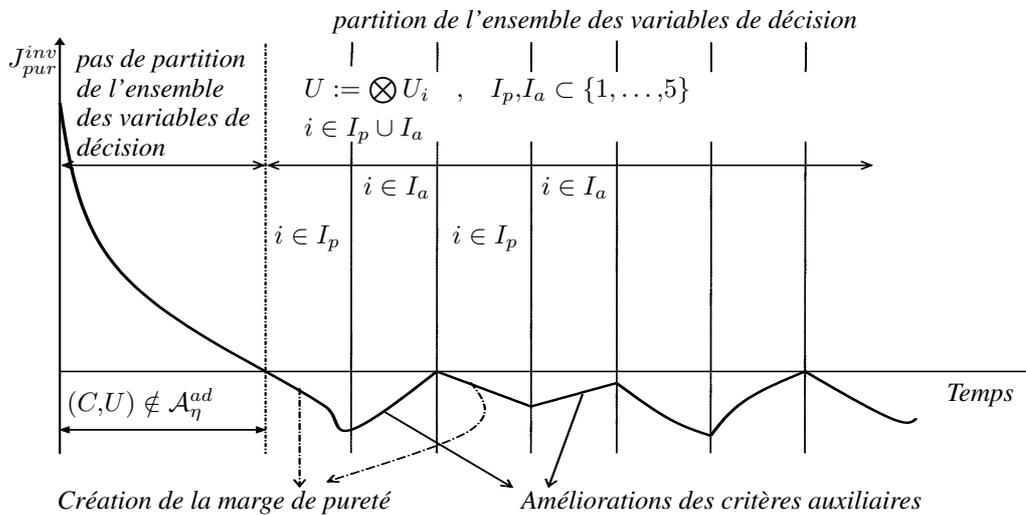


FIG. 4.7 – Vue schématique de l'algorithme de commande en boucle fermée. Les diminutions et les augmentations alternatives du critère correspondent à la nature de la composante de la commande utilisée, soit pour la création de la marge de pureté (composante de l'ensemble  $I_p$ ), soit pour l'amélioration d'un critère auxiliaire (composante de l'ensemble  $I_a$ ). Voir aussi la figure 4.11 dans la section 4.9.

Il est important de noter que pendant la phase de création de la marge de pureté, le critère auxiliaire  $J_a$  reste constant (ne se dégrade pas) puisque ce critère est optimisé uniquement par des composantes

de commande qui n'interviennent pas pendant la création de la marge sur la pureté. Ceci est exprimé par l'équation suivante :

$$\frac{\partial J_a}{\partial U_i^k} = 0 \quad \text{pour } i \notin I_a \quad (4.82)$$

Notons que la minimisation d'un critère auxiliaire conduit à baisser les puretés réalisées mais sans violer les contraintes imposées sur les puretés. La raison est qu'une composante candidate de commande qui améliore un critère auxiliaire à un instant donné est testée avant être appliquée. Si cette composante candidate conduit à violer les contraintes sur les puretés, elle est rejetée et la valeur actuelle de cette composante est adoptée (selon le principe de la région de confiance, voir la section 4.8.1).

## 4.8 Aspects techniques

Dans cette section, deux aspects techniques sont présentés. Le premier explique la méthode de la région de confiance sur laquelle dépend l'optimisation effectuée dans les procédures d'optimisation(4.71) et (4.77). Le deuxième aspect concerne l'introduction des effets intégraux afin de réaliser une certaine robustesse vis-à-vis des incertitudes paramétriques. Avant de présenter ces aspects, quelques définitions et notations sont présentées dans la suite.

Pour tout scalaire  $u$  et tout entier  $i \in \{1, \dots, 5\}$ , la fonction de mise à jour suivante est définie:

$$\begin{aligned} \pi^{(u,i)} : \quad \mathbb{R}^5 &\rightarrow \mathbb{R}^5 \\ U &\rightsquigarrow V = \pi^{(u,i)}(U) \quad \text{telle que} \quad V_j = \begin{cases} U_j & \text{si } j \neq i \\ u & \text{sinon} \end{cases} \end{aligned} \quad (4.83)$$

plus clairement  $\pi^{(u,i)}$  est le vecteur de  $\mathbb{R}^5$  qui s'obtient à partir de  $U$  en remplaçant la  $i$ -ième composante par  $u$  et en gardant toutes les autres inchangées.

Supposons qu'à la période de commutation  $k$ , une valeur courante de  $U^{k+1}$  est disponible [cette valeur est égale à  $U^k$  au début de cette période]. Soit  $J$  un critère d'optimisation défini sur l'ensemble des commandes admissibles. Ceci peut représenter  $J_{pur}$ ,  $J_{pur}^{inv}$  ou un critère auxiliaire  $J_a$  selon le contexte. Ayant  $U^{k+1}$  et  $J$ , il est possible d'associer à chaque indice  $i \in \{1, \dots, 5\}$ , une fonction scalaire  $J_i^{sc}$  définie par :

$$J_i^{sc}(u) = J(\pi^{(u,i)}(U^{k+1})) \quad (4.84)$$

plus clairement, il s'agit de la valeur du critère  $J$  évaluée à la commande modifiée  $\pi^{(u,i)}(U^{k+1})$ .

### 4.8.1 La région de confiance

Le principe de la région de confiance présenté dans la section 4.6 est utilisé dans notre stratégie en effectuant quelques adaptations.

Les procédures d'optimisation utilisées dans notre algorithme (4.71) ou (4.77) sont basées sur une approximation quadratique du critère d'optimisation actif  $J$  en fonction d'une composante de la commande  $U_i^k$ ,  $i \in \{1, \dots, 5\}$ .

Définissons tout d'abord la région de confiance  $\mathfrak{R}_i^k$  pour la composante  $i$  de la commande  $U_i^k$  utilisée durant la période de commutation  $[k, k + 1[$ :

$$\mathfrak{R}^k = [U_i^k - \alpha_i^k \delta_i, U_i^k + \alpha_i^k \delta_i] \cap \mathbb{U}_i(U^k) \quad (4.85)$$

où

- $\delta_i > 0$  est un intervalle fixe, et  $\mathbb{U}_i(U^k)$  est l'ensemble des valeurs admissibles de la composante  $i$  de la commande défini par (4.20) pour la période de commutation  $[k, k + 1[$ .
- $\alpha_i^k$  est le paramètre de la région de confiance.

L'approximation quadratique est définie à l'intérieur de la région de confiance en interpolant les trois points suivants  $(J_i^k, U_i^k - \alpha_i^k)$ ,  $(J_i^k, U_i^k)$ ,  $(J_i^k, U_i^k + \alpha_i^k)$ .

La commande  $U^k$  est appliquée durant la période de commutation pendant laquelle le calcul est effectué afin de trouver la commande  $U^{k+1}$  à appliquer durant la période de commutation suivante  $[k + 1, k + 2[$ .

Au début de la période  $[k, k + 1[$ , la commande  $U^{k+1}$  est initialisée à  $U^k$ .

En utilisant l'approximation quadratique du critère  $J$  en fonction de la composante  $U_i^{k+1}$ , une solution candidate  $\pi^{(\hat{U}_i^{k+1}, i)}(U^{k+1})$  est obtenue. Cette solution candidate est adoptée ou rejetée selon les deux cas suivants :

1. Si  $J_i^{sc}(\hat{U}_i^{k+1}) < J_i^{sc}(U_i^{k+1})$ , la solution candidate est adoptée et la région de confiance est élargie :

$$U^{k+1} \leftarrow \pi^{(\hat{U}_i^{k+1}, i)} \quad ; \quad \alpha_i^k \leftarrow \beta^+ \alpha_i^k \quad ; \quad \beta^+ > 1 \quad (4.86)$$

2. Sinon, la solution actuelle  $U^{k+1}$  est prise comme solution pour l'itération suivante et la région de confiance est réduite :

$$\alpha_i^k \leftarrow \max \left\{ \beta^- \alpha_i^k, \alpha_{min} \right\} \quad ; \quad \beta^- < 1 \quad (4.87)$$

où  $\alpha_{min} > 0$  est utilisé pour empêcher l'*affaïssement* de  $\alpha_i^k$  ( $\alpha \rightarrow 0$ ) lorsqu'une solution optimale est obtenue. En effet et selon (4.87), lorsqu'une solution optimale ( $U^k$  par exemple) est trouvée, la région  $\alpha$  est réduite successivement (pas après pas) en la multipliant par  $\beta^-$  puisque la solution actuelle ( $U^k$ ) est toujours adoptée ce qui amène  $\alpha$  à zéro. Ceci peut empêcher l'algorithme de mettre à jour la loi de commande pour répondre à une nouvelle situation (changement du critère auxiliaire, changement de consigne, etc). Ainsi, la marge  $\alpha_{min}$  garantit la réactivité de l'algorithme.

## 4.8.2 La robustesse vis-à-vis des incertitudes paramétriques

Il est souvent possible que les paramètres du modèle mathématique d'un procédé soient mal estimés. Il est également probable que les paramètres physiques du procédé (comme les coefficients de l'isotherme  $k$  et la porosité du lit  $\varepsilon$ ) varient pendant la production. Ces variations sont issues de l'usure de la phase solide (l'adsorbant).

Ces incertitudes contribuent à modifier les valeurs des puretés réalisées; rappelons que la qualité de la production (les puretés désirées) est un critère primordial. Par conséquent, il est indispensable qu'un schéma de commande soit robuste vis-à-vis des incertitudes paramétriques afin de garantir la qualité désirée. Une certaine robustesse est introduite dans notre algorithme en utilisant la marge de pureté ( $\eta$ ).

En effet, quand le système arrive à la configuration invariante, le critère de pureté correspondant ( $J_{pur}^{inv} \leq 0$ ) reste tout le temps négatif par la définition de la boucle fermée qui préserve cette contrainte en l'absence d'erreurs du modèle et de changement de paramètres durant la production. Lorsque ce critère devient positif ( $J_{pur}^{inv} > 0$ ), on peut en déduire qu'il y a une erreur sur l'estimation des paramètres utilisés dans le modèle de prédiction.

Ainsi, pour compenser l'effet de l'erreur d'estimation, la marge de pureté ( $\eta$ ) est augmentée par la procédure suivante :

$$\mathbf{si} \left( J_{pur}^{inv}(k) > 0 \mathbf{et} J_{pur}^{inv}(k-1) \leq 0 \right) \mathbf{alors}$$

$$\eta_k \leftarrow \min(\eta_k + \delta_\eta, 1 - \max(y_d)) \quad (4.88)$$

**sinon**

$$\eta_k \leftarrow \max\{\eta_{min}, \gamma\eta_{k-1}\} \quad ; \quad \gamma < 1 \quad (4.89)$$

**fin**

où  $\eta_{min}$  est la valeur minimale de la marge de pureté qui a été utilisée dans la configuration initiale. L'affectation (4.88) conduit à l'augmentation de la marge  $\eta$  sans que la pureté désirée (avec la marge) dépasse le pourcentage de 100%, alors que le terme (4.89) permet de restaurer la marge initiale  $\eta_{min}$  avec un facteur de restauration  $\gamma < 1$ .

## 4.9 Simulations

Rappelons tout d'abord que le schéma de commande proposé dans ce travail est indépendant du type de modèle utilisé. Le système peut être défini par un simulateur sous forme de boîte noire qui permet de prédire l'évolution des variables d'état.

### 4.9.1 Le modèle de simulation

Le modèle de prédiction utilisé dans les simulations suivantes est un modèle de mélangeurs parfaitement agités. Le nombre de mélangeurs est de 20 dans chaque colonne. Cela aboutit à un système de 320 variables d'état (160 états pour chaque composant (**A** et **B**)), puisque le nombre total de colonnes est  $n_c = 8$ .

L'équilibre entre les deux phases considéré est compétitif et non linéaire, il est représenté par la fonction de Langmuir (1.2). Les coefficients de l'isotherme sont *proches* ( $k_A = 2$ ,  $k_B = 1.5$ ) ce qui correspond à une séparation difficile -si  $k_A/k_B < 1.4$ , la séparation envisagée est considéré comme difficile [32]-. La capacité maximale d'adsorption est quantifiée par le paramètre  $q_{m_1} = q_{m_2} = 1$  et les paramètres géométriques du lit sont :  $L = 50 \text{ cm}$ ,  $D = 5 \text{ cm}$ ,  $\epsilon = 0.45$ . Les valeurs nominales des variables de commande sont les suivantes (ces valeurs sont prises de [59]) :

$$U^0 = (Q_D = 106.44 \quad Q_{Ext} = 75.14 \quad Q_F = 5.62 \quad Q^{(IV)} = 116.89 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} \quad \mathcal{T}_{sw} = 30 \text{ s})$$

### 4.9.2 Les paramètres du contrôleur

Les paramètres du contrôleur suivants sont adoptés :

- Le nombre d'itérations  $N$  utilisées durant une période de commutation est égal à une seule itération ( $N = 1$ ). Le choix de n'effectuer qu'une seule itération n'est pas obligatoire, toutefois ce choix permet d'explorer au maximum les limites de la méthode de l'optimisation en question, celle de l'optimisation distribuée.
- Les limites maximales et minimales des variables de commande sont considérées à (+10%, -10%) des valeurs nominales (ce choix est adopté pour effectuer les simulation), à savoir :

$$U_{max} = 1.1U^0 = (117 \quad 82 \quad 6 \quad 128.85 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} \quad 33 \text{ s})$$

$$U_{min} = 0.9U^0 = (95 \quad 68 \quad 5 \quad 105 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} \quad 27 \text{ s})$$

- Les valeurs des rayons initiaux de la région de confiance  $\delta_i$  sont égales à 1% des valeurs nominales pour chaque  $U_i$ . La horizon de prédiction est égale à 400 commutations.
- Les paramètres permettant l'élargissement et la réduction de la région de confiance sont  $\beta^+ = 1.8$ ,  $\beta^- = 0.7$ .
- La marge nominale de pureté utilisée est  $\eta_{min} = 0.001$  et le paramètre  $\gamma = 0.95$  est utilisé pour restaurer la marge de pureté nominale  $\eta_{min}$ .

### 4.9.3 Les résultats de simulation

Les résultats de simulation présentés dans cette section sont regroupés en quatre scénarios présentés dans la suite.

**Scénario 1 (Simulation de base)**

L'objectif de ce scénario est de réaliser une pureté constante et de montrer les variations des variables de commande ainsi que les critères utilisés. La figure 4.8 illustre l'évolution des puretés où les puretés désirées sont fixées à 99.2% pour l'extrait et à 99.65% pour le raffinat.

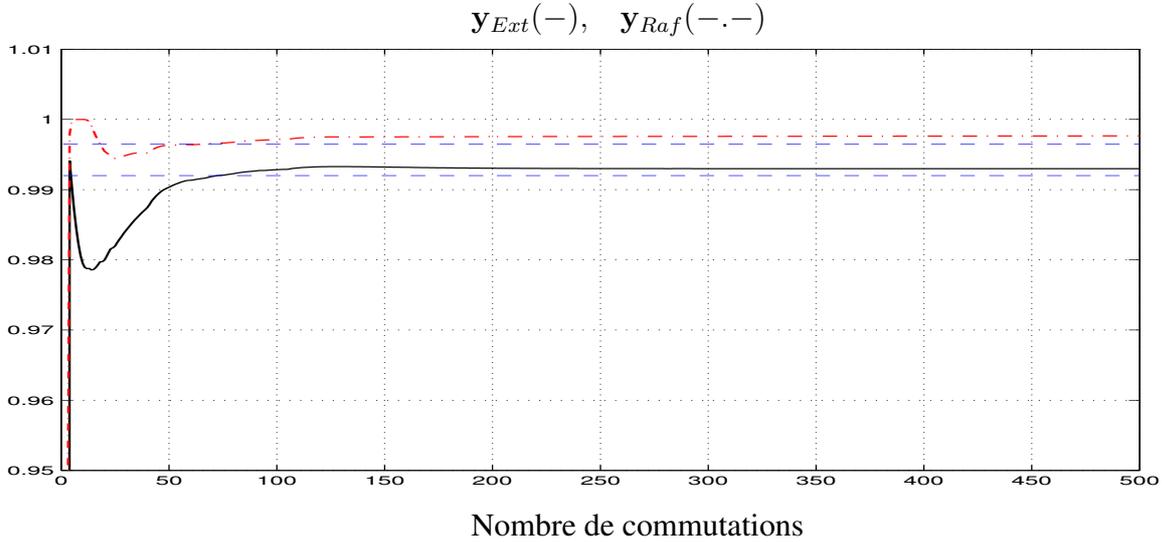


FIG. 4.8 – La réponse du système en boucle fermée pour des puretés désirées ( $y_{Ext}^d = 0.992$ ,  $y_{Raf}^d = 0.9965$ )

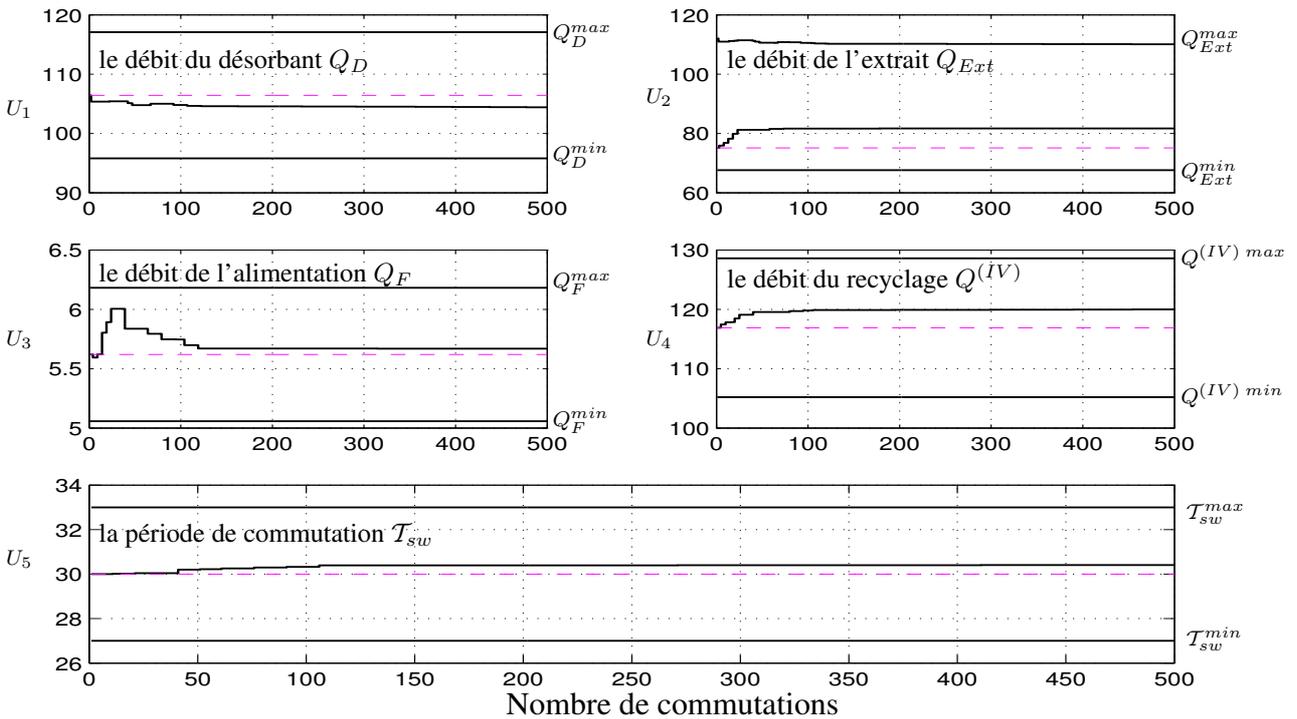


FIG. 4.9 – L'évolution des variables de commande (les débits et la période de commutation). Les lignes discontinues représentent les valeurs initiales.

La figure 4.9 montre l'évolution des variables de commande ainsi que les limites autorisées (les contraintes sur les commandes). Remarquons comment les variables de commande deviennent

constantes après environ 150 itérations où les puretés désirées sont atteintes. Ceci est également remarqué sur la figure 4.10 qui illustre l'évolution des paramètres de la région de confiance  $\alpha_i$ . L'augmentation successive d'un tel paramètre -ce qui est équivalent à l'augmentation de la région de recherche, équation (4.85)- signifie que le contrôleur trouve toujours une solution meilleure que la solution actuelle. À l'inverse, la descente successive de  $\alpha_i$  conduit à la diminution de la région de recherche indiquant ainsi que le contrôleur ne trouve pas une solution meilleure. C'est la raison pour laquelle les paramètres  $\alpha_i$  sont réduits à leur minimum  $\alpha_{min}$  après la 150<sup>ème</sup> itération où les puretés désirées sont atteintes et les variables de commande deviennent constantes (figure 4.9).

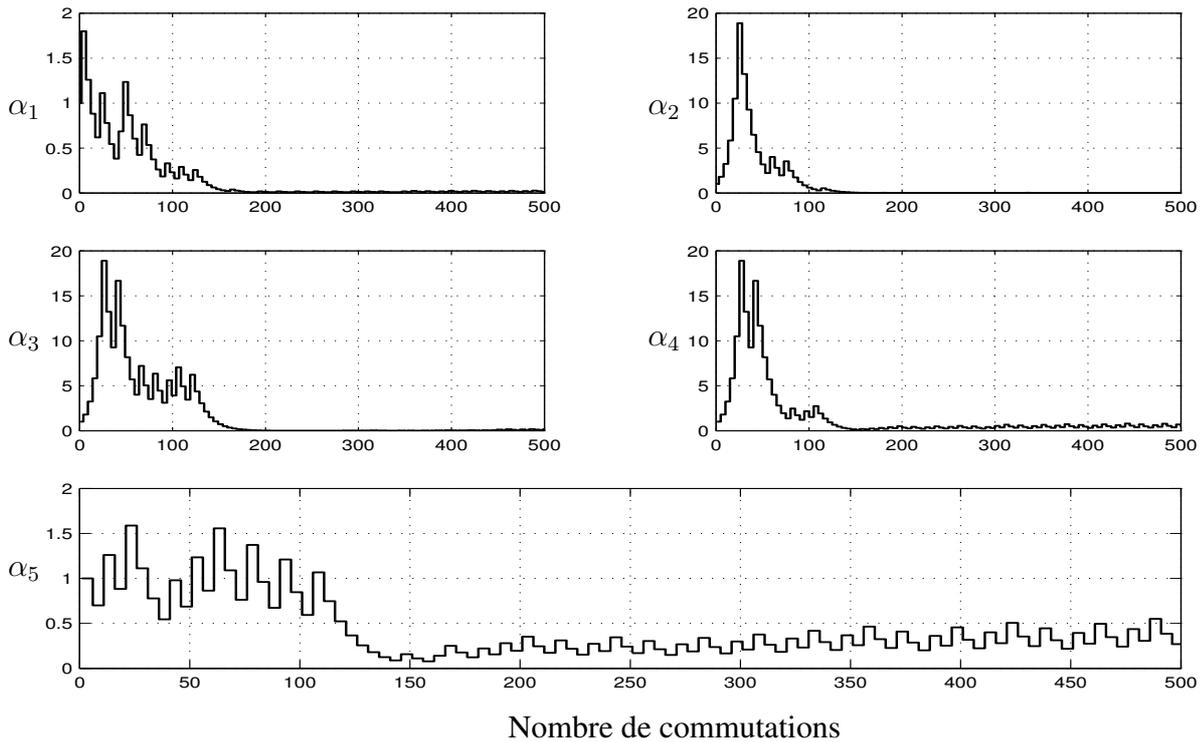


FIG. 4.10 – L'évolution des paramètres de la région de confiance  $\alpha_i$  qui correspondent au scénario 1. L'augmentation du paramètre  $\alpha_i$  indique que le contrôleur trouve une solution candidate meilleure que la solution actuelle, alors que la diminution du paramètre  $\alpha$  signifie que le contrôleur adopte la solution actuelle comme solution pour le pas suivant, puisque la solution candidate n'améliore pas le critère concerné.

La figure 4.11 montre l'évolution des critères de pureté  $J_{pur}$  et  $J_{pur}^{inv}$ . Remarquons tout d'abord que le critère  $J_{pur}$  devient négatif avant  $J_{pur}^{inv}$  (la figure 4.11 b) puisqu'il est basé sur la valeur finale de la solution stationnaire de pureté (voir figure 4.5), alors que le critère  $J_{pur}^{inv}$  concerne la valeur minimale de pureté. Les *oscillations* schématisées sur la figure 4.7 peuvent être clairement observées dans la figure 4.11 b), où les diminutions et les augmentations successives du critère correspondent à la nature de la variable de commande utilisée, soit pour la création de la marge de pureté, soit pour l'amélioration d'un critère auxiliaire (économique).

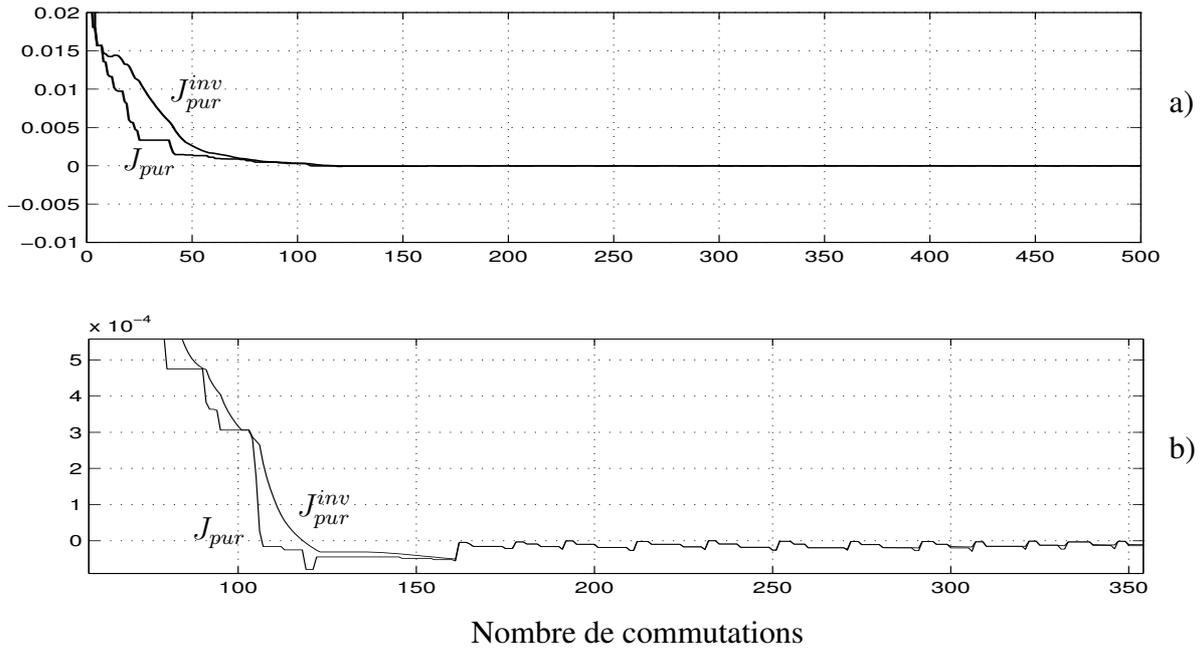


FIG. 4.11 – L'évolution des critères de pureté  $J_{pur}$  et  $J_{pur}^{inv}$ . La sous-figure b) montre que le critère  $J_{pur}$  devient négatif avant le critère  $J_{pur}^{inv}$ . Les diminutions et les augmentations successives du critère se produisent selon la nature de la variable de commande utilisée, soit pour la création de la marge de pureté, soit pour l'amélioration d'un critère auxiliaire (économique).

La figure 4.12 montre l'évolution du critère auxiliaire utilisé dans ce scénario. Le critère auxiliaire choisi est celui de l'efficacité (éq.4.74). Remarquons que ce critère continue d'augmenter après l'itération 150 où les puretés désirées sont atteintes (voir figure 4.8)

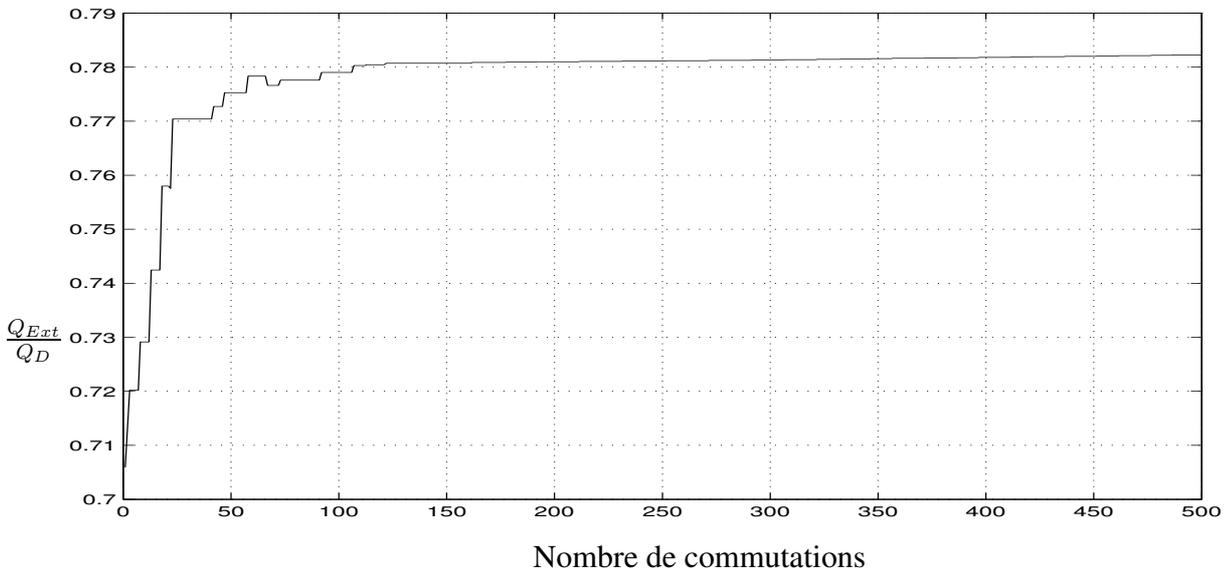


FIG. 4.12 – L'évolution du critère auxiliaire de l'efficacité  $Q_{Ext}/Q_D$ . Ce critère continue d'augmenter après l'itération 150 où les puretés désirées sont atteintes.

### Scénario 2 (Changement des critères auxiliaires (la flexibilité))

Le but de ce scénario est d'évaluer la flexibilité de l'algorithme proposé et sa réactivité aux changements soudains des critères auxiliaires. Les puretés désirées sont fixées à  $\mathbf{y}^d = (0.992, 0.9965)$ .

La figure 4.13 montre trois phases d'évolution, dans la première phase (qui correspond aux premières 500 commutations), l'objectif est d'augmenter l'efficacité. Le critère auxiliaire de l'efficacité ( $J_a = Q_D/Q_{Ext}$ ) est donc activé pendant cette période. La figure 4.13 b phase 1 montre que l'efficacité est augmentée pendant cette phase, alors que pendant les 500 commutations suivantes (la deuxième phase), le critère qui améliore les rendements ( $J_a = Q_F/Q_{Ext}$ ) est activé. Ainsi, cette figure (4.13 b phase 2) illustre clairement l'augmentation du rapport ( $Q_{Ext}/Q_F$ ) qui était stationnaire sur la deuxième partie de la première phase.

Finalement, le critère  $J_a = Q_D + Q_F$  qui maximise les débits entrants est déclenché après 1000 commutations afin de respecter la date limite de livraison comme le montre la figure 4.13 b phase 3. La transformation  $\Gamma_\rho(U)$  (4.66) est utilisée pour augmenter plus vite les débits entrants jusqu'aux limites autorisées. Notons que, pendant les changements des critères auxiliaires, les puretés désirées demeurent respectées.

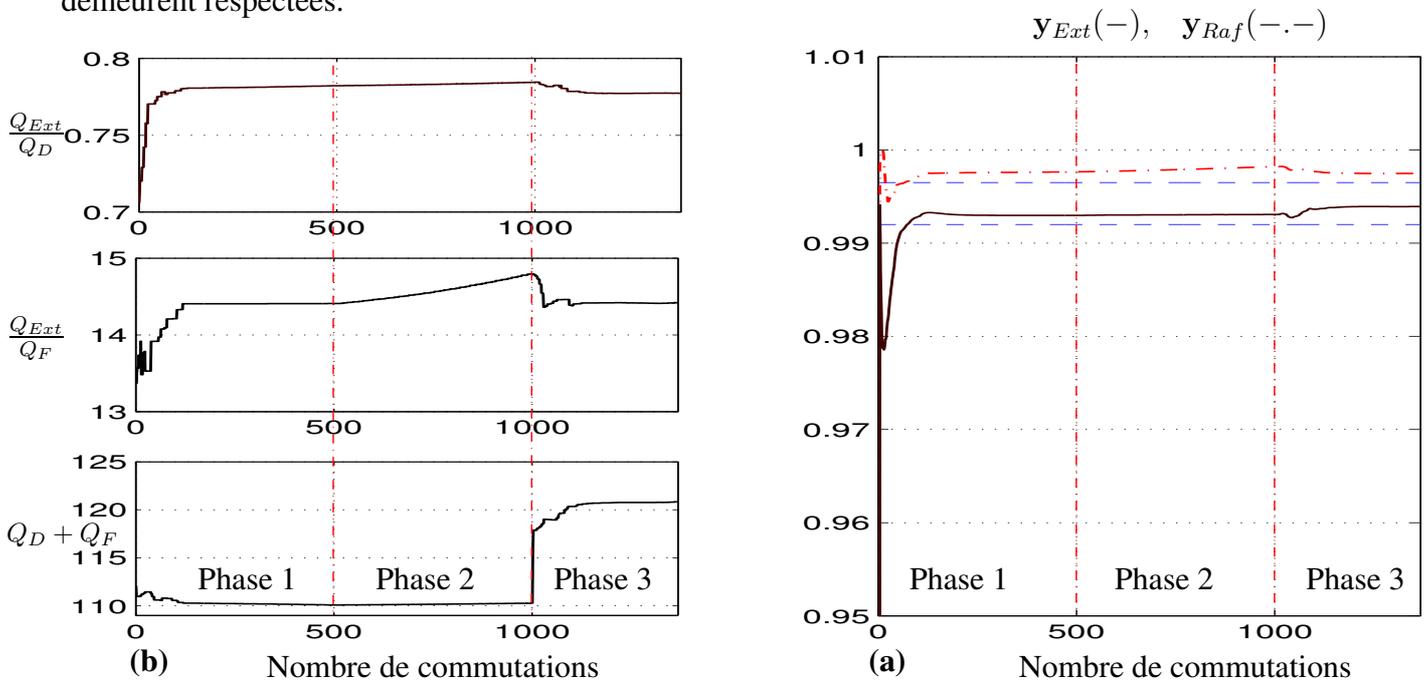


FIG. 4.13 – La flexibilité du schéma proposé. (a) Les puretés réalisées sont supérieures aux valeurs désirées malgré le changement des critères auxiliaires. (b) Les différents critères auxiliaires sont activés à des instants différents durant ce scénario. Remarquons comment le contrôleur prend en compte le changement soudain du critère activé en augmentant sa valeur et tout en respectant les contraintes sur les puretés

La figure 4.14 montre l'évolution des variables de commande correspondantes à ce scénario. L'augmentation soudaine des variables  $Q_D$  et  $Q_F$  à l'itération 1000 (selon la transformation de la commande définie dans la définition 5) conduit à l'augmentation du taux de production. Remarquons comment les autres variables de commande varient pour "absorber" ce changement soudain afin de respecter les contraintes sur les puretés. Remarquons que la limite supérieure de  $Q_{Ext}$  a varié selon l'équation (4.19). Les paramètres de la région de confiance associés à ce scénario sont illustrés dans

la figure 4.15.

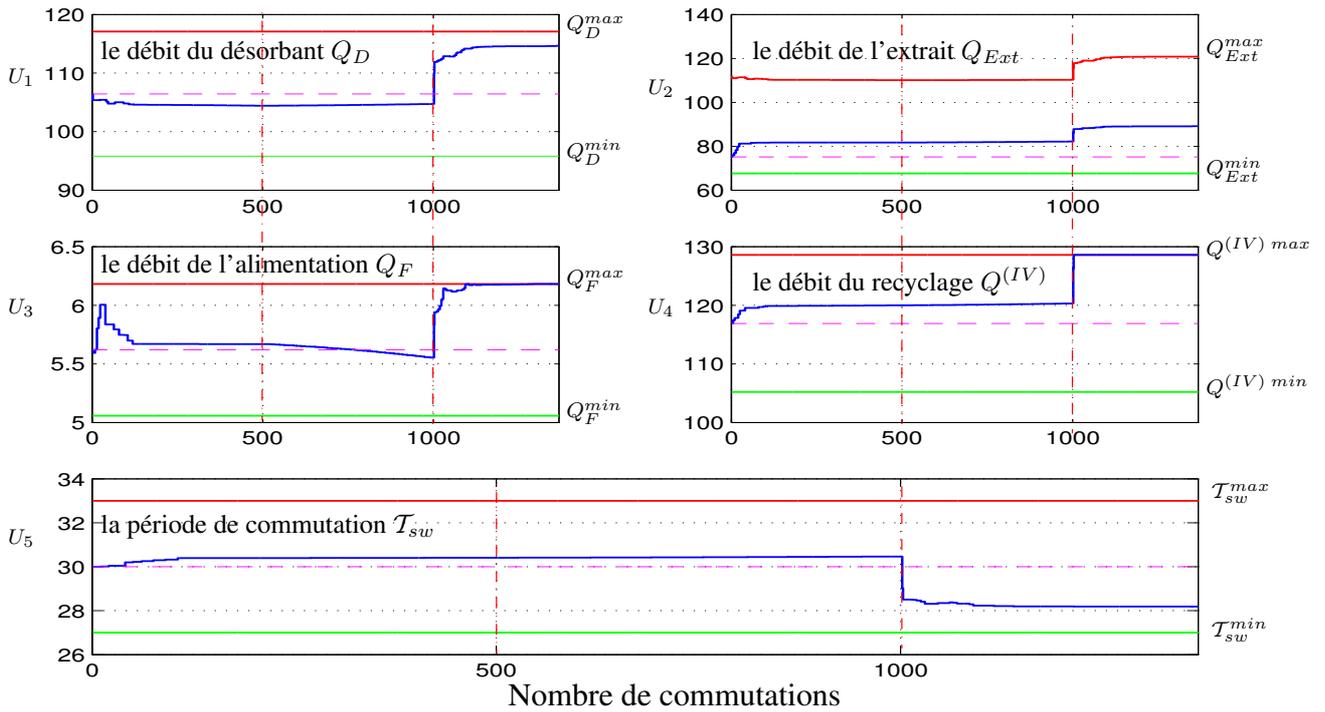


FIG. 4.14 – L'évolution des variables de commande (les débits et la période de commutation) correspondante au scénario 2

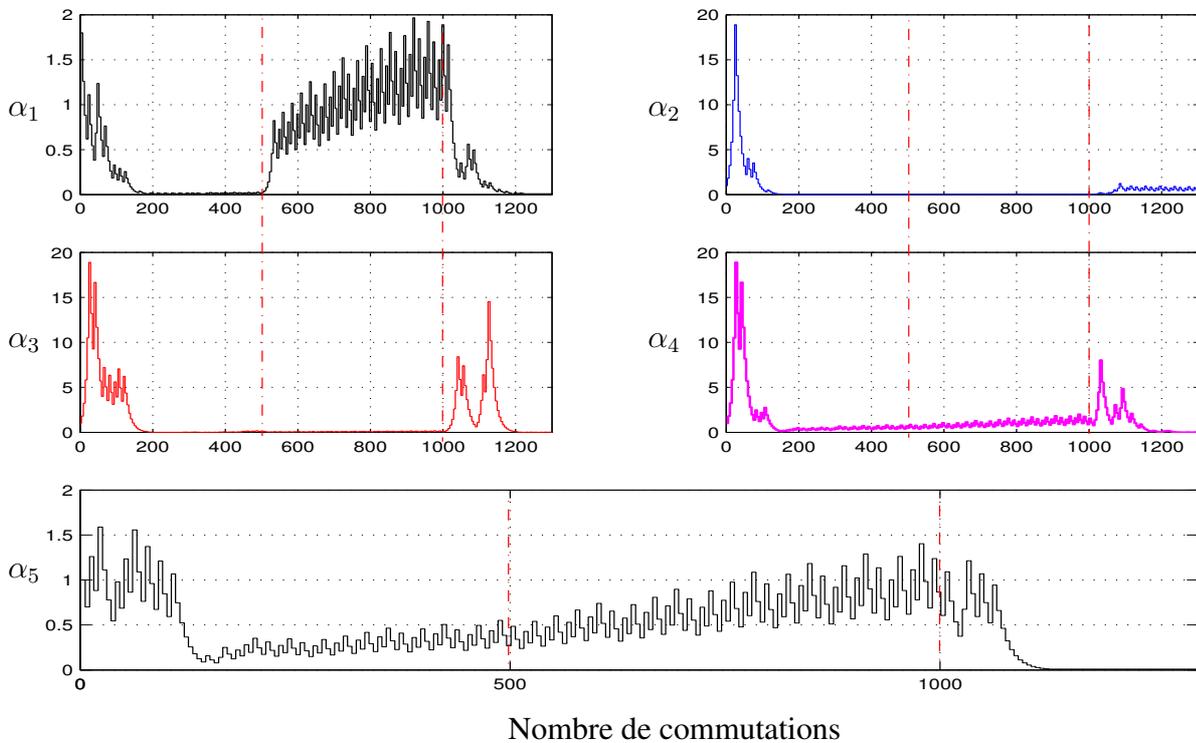


FIG. 4.15 – L'évolution des paramètres de la région de confiance  $\alpha_i$  qui correspondent au scénario 2

### Scénario 3) La réponse aux changements des consignes

La figure 4.16 **a** montre des changements successifs de la consigne de l'extraction alors que celle du raffinage reste constante. La figure 4.16 **b** montre comment le contrôleur profite de l'adoucissement des contraintes sur une des deux puretés pour augmenter l'efficacité. La raison est qu'une baisse de pureté nécessite moins de solvant.

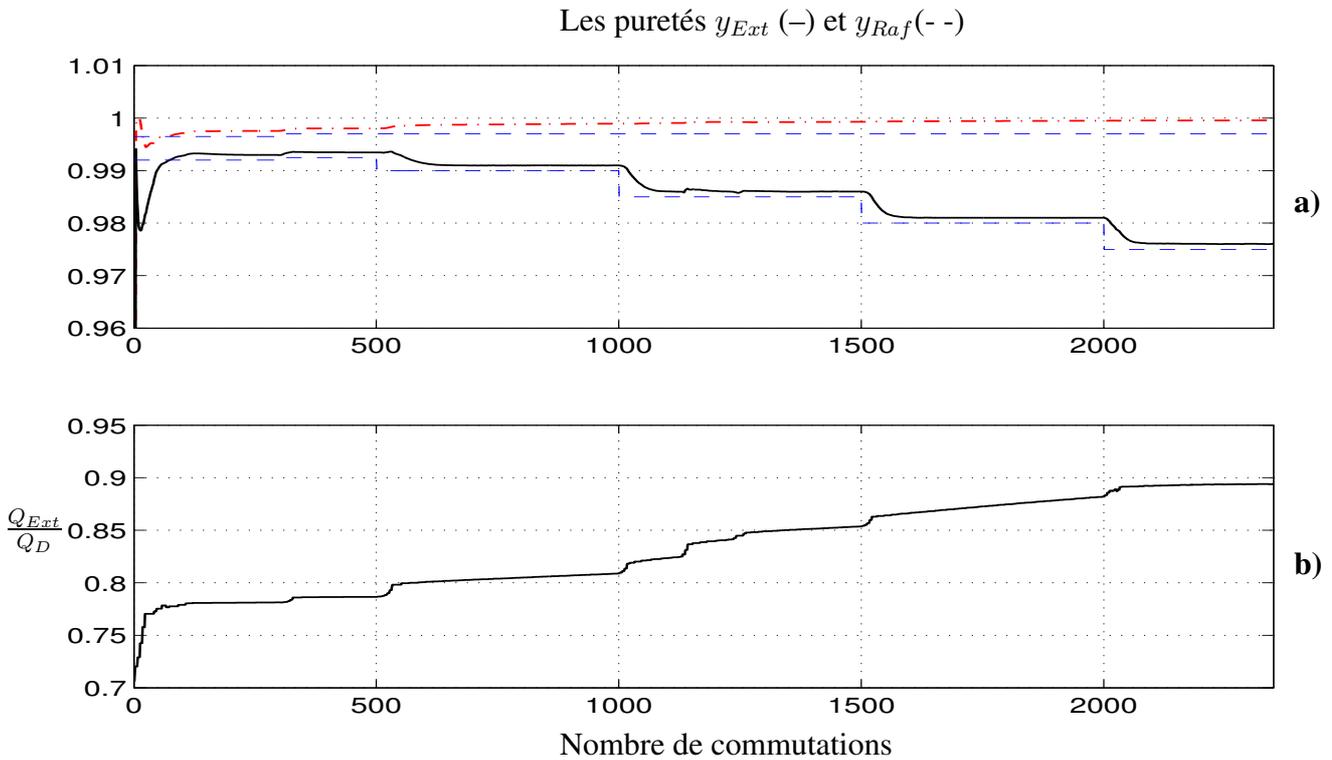


FIG. 4.16 – La réponse du système aux différentes consignes. La pureté désirée à l'extraction est réduite plusieurs fois (sous-figure **a**), le contrôleur profite de cet adoucissement pour augmenter l'efficacité (sous-figure **b**)

### Scénario 4) (La robustesse)

Dans ce scénario, la robustesse du système vis-à-vis d'une petite erreur (+1.8 %) sur les coefficients de Langmuir  $k_A$  et  $k_B$  est testée. Cette erreur est introduite à l'itération 150. La figure 4.17 montre comment le contrôleur réagit pour compenser la variation des paramètres  $k_A$  et  $k_B$  en augmentant la marge de pureté  $\eta$ . Cette augmentation de la marge est faite par l'équation (4.88). Une fois que la pureté est réalisée, cette marge est diminuée jusqu'à sa valeur minimale. La figure 4.18 montre l'évolution des variables de commande correspondant à ce scénario et la figure 4.19 montre comment les paramètres de la région de confiance *se réveillent* après l'instant 150 pour mettre à jour les variables de commande afin d'amener les puretés aux valeurs désirées

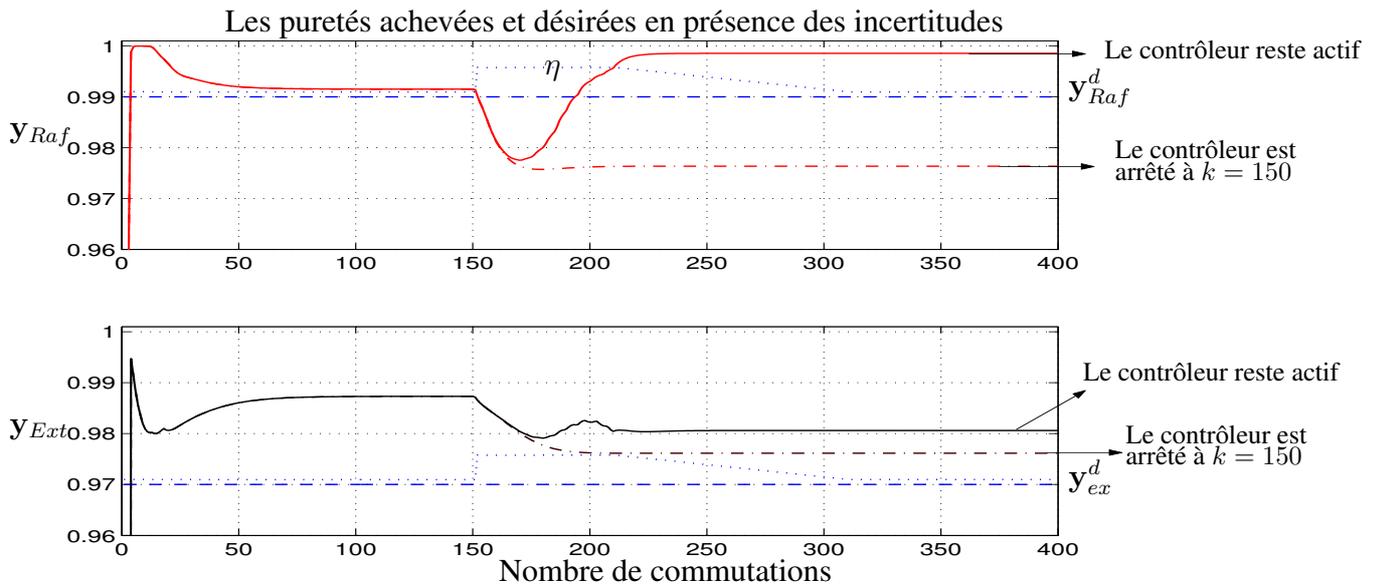


FIG. 4.17 – Le comportement du système en boucle fermée (ligne continue) et celui du système en boucle ouverte (ligne discontinue). Une erreur de +1.8 sur les coefficients de Langmuir  $k_A$  et  $k_B$  % est introduite à l'itération  $k = 150$ . Le contrôleur réagit pour compenser la variation des paramètres  $k_A$  et  $k_B$  en augmentant la marge de pureté  $\eta$ . Lorsque l'erreur est compensée, la marge  $\eta$  est diminuée à sa valeur minimale.

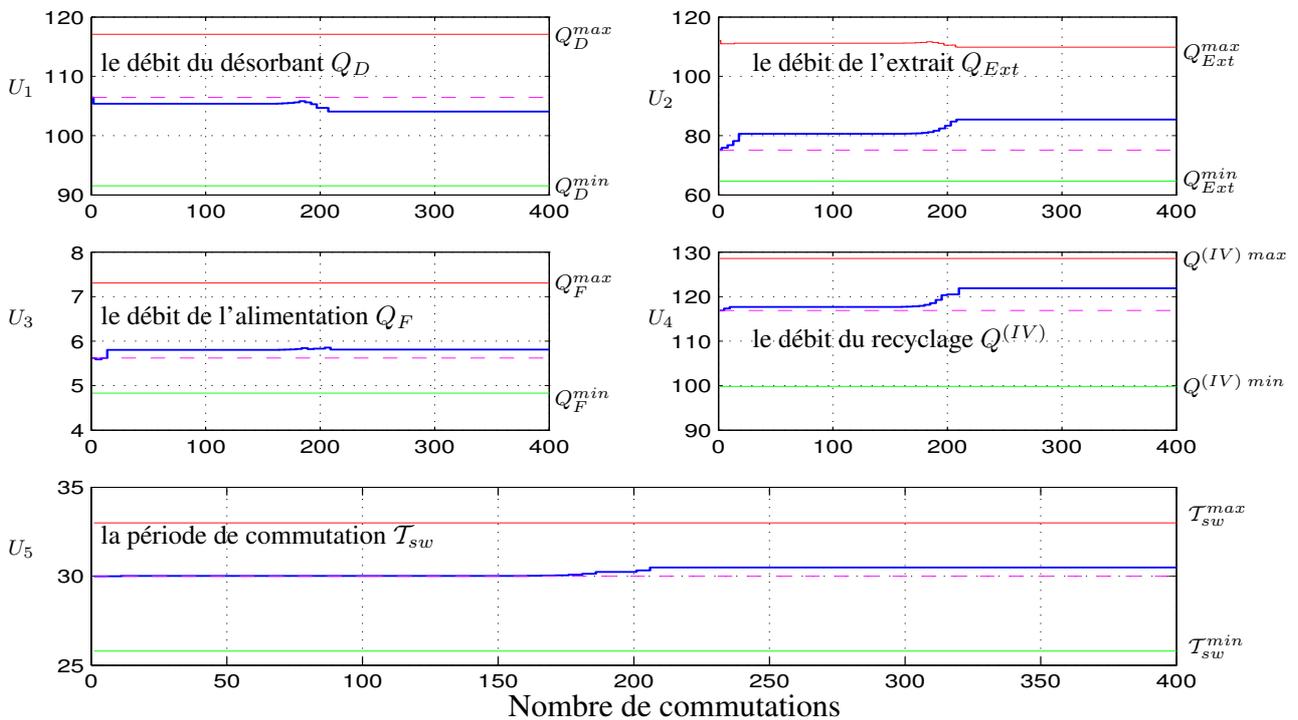


FIG. 4.18 – L'évolution des variables de commande (les débits et la période de commutation) en présence d'une incertitude sur les coefficients de Langmuir à l'instant 150. Les variables de commande réagissent à l'itération 150 pour compenser l'erreur sur les paramètres  $k_A$  et  $k_B$ .

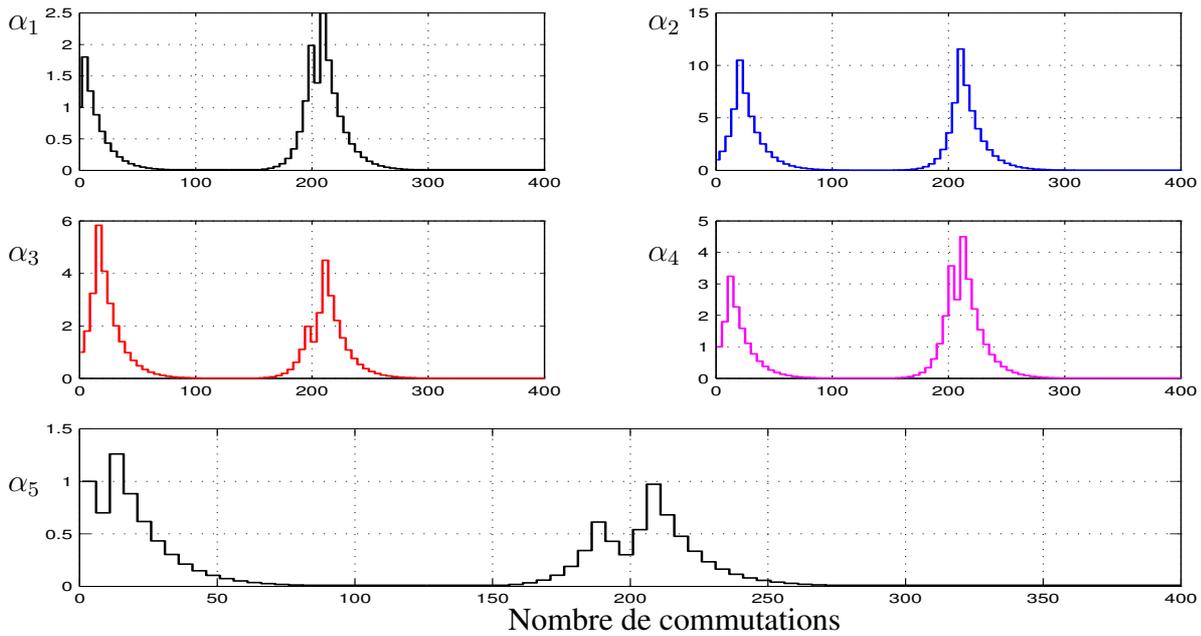


FIG. 4.19 – L'évolution des paramètres de la région de confiance  $\alpha_i$  en présence d'une incertitude sur les coefficients de Langmuir à l'instant 150. Les paramètres de la région de confiance se réveillent après l'instant 150 pour mettre à jour les variables de commande afin d'amener les puretés aux valeurs désirées.

## 4.10 Conclusion

Ce chapitre a fait l'objet d'une présentation de l'approche de commande développée dans le cadre de cette thèse. Il s'agit d'une commande prédictive non linéaire appliquée à un lit mobile simulé fortement non linéaire. La non linéarité aboutit à une optimisation non convexe, par conséquent le défi majeur est d'appliquer le schéma de commande proposé en temps réel. Ceci est fait en distribuant l'optimisation dans le temps.

Le schéma de commande proposé permet de produire des composants ayant les qualités désirées (les puretés) tout en respectant des aspects économiques importants (la quantité de désorbant, l'efficacité et le taux de production).

Le choix d'un critère économique est lié au besoin actuel, dans tous les cas, le schéma de commande est flexible dans le sens où l'on peut passer d'un critère à un autre à n'importe quel moment.

Les résultats de simulation montrent la robustesse du système vis-à-vis d'une petite erreur (+1.8 %) sur les coefficients de l'isotherme.

Il n'est pas nécessaire d'initialiser l'algorithme par des variables déjà optimisées, puisque le schéma présenté n'est pas basé sur une trajectoire pré-calculée; mais toute information optimale disponible peut être introduite facilement par initialisation.

## 4.11 Estimation Paramétrique

La précision du modèle mathématique décrivant le comportement dynamique d'un procédé, est souvent affectée par des erreurs. Ces erreurs résultent d'une part, de la détermination des paramètres du procédé, et d'autre part, du changement de ces paramètres issu de la détérioration physique des équipements (comme la dégradation de la phase solide d'une colonne chromatographique). Les paramètres d'une colonne chromatographique sont divisés en deux groupes, paramètres opérationnels (les débits, les concentrations dans l'alimentation, la température) et paramètres physico-chimiques (le coefficient de la dispersion, la porosité du lit, les coefficients de transfert et les coefficients de l'isotherme). L'étude de l'estimation paramétrique présentée dans le présent travail concerne les coefficients de l'isotherme  $k_A$  et  $k_B$ . La méthode d'estimation utilisée est celle des moindres carrés qui est abordée dans la section suivante.

### 4.11.1 Estimation paramétrique par la méthode des moindres carrés

Dans cette méthode, les concentrations mesurées aux robinets d'un lit mobile simulé sont comparées aux concentrations calculées par un modèle de simulation comme le montre la figure 4.20. Ainsi, les paramètres représentés par le vecteur  $\hat{\mathbf{p}}$  sont estimés en minimisant le critère suivant :

$$J(\hat{\mathbf{p}}) = \int_{t_1}^{t_2} (C_m(t, C^0, \mathbf{p}^r) - C(t, C^0, \hat{\mathbf{p}}))^2 dt \quad (4.90)$$

dans lequel :

- $C^0$  : l'état initial.
- $\hat{\mathbf{p}}$  : le vecteur des paramètres estimés.
- $\mathbf{p}^r$  : le vecteur des paramètres réels.
- $C_m(t, C^0, \mathbf{p}^r) \in \mathbb{R}^{8 \times 1}$  : le vecteur des concentrations mesurées aux robinets, à savoir :  
 $C_m(t, C^0, \mathbf{p}^r) = (C_{m\mathbf{A}}(t, D) \ C_{m\mathbf{B}}(t, D) \ C_{m\mathbf{A}}(t, Ext) \ C_{m\mathbf{B}}(t, Ext) \ C_{m\mathbf{A}}(t, F) \ C_{m\mathbf{B}}(t, F) \ C_{m\mathbf{A}}(t, Raf) \ C_{m\mathbf{B}}(t, Raf))$   
 dans lequel (par exemple)  $C_{m\mathbf{A}}(t, D)$  est la concentration mesurée au robinet de désorption pour le composant  $\mathbf{A}$ .
- $C(t, C^0, \hat{\mathbf{p}}) \in \mathbb{R}^{8 \times 1}$  : le vecteur des concentrations calculées par un simulateur du modèle dans lequel le vecteur des paramètres estimés ( $\hat{\mathbf{p}}$ ) est utilisé.

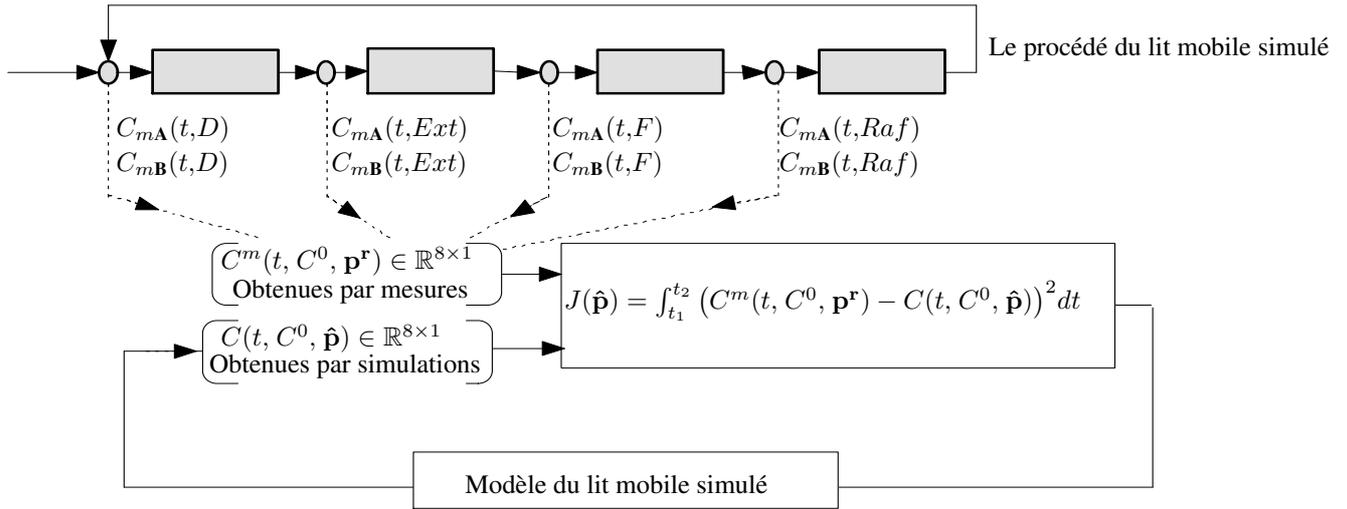


FIG. 4.20 – Représentation schématique du principe d’estimation paramétrique par la méthode des moindres carrés. Les paramètres estimés représentés par le vecteur  $\hat{\mathbf{p}}$  sont les variables qui minimisent le critère  $J(\hat{\mathbf{p}})$ . Ce critère compare les concentrations mesurées aux sorties des sections ( $C^m(t, C^0, \mathbf{p}^r) \in \mathbb{R}^{8 \times 1}$ ) aux concentrations calculées par un modèle de simulation ( $C(t, C^0, \hat{\mathbf{p}}) \in \mathbb{R}^{8 \times 1}$ ).

Cette approche a été également utilisée par [29] pour l’estimation des paramètres physiques du procédé. Ces paramètres ( $\gamma_i, D_{ap}$ ) sont définis dans le modèle dit dispersif d’équilibre [équation 2.12].

### 4.11.2 l’estimation des coefficients de l’isotherme

Les coefficients de l’isotherme  $k_A$  et  $k_B$  sont estimés en minimisant le critère suivant :

$$J(\hat{k}_A, \hat{k}_B) = \int_{t_1}^{t_2} (C_i^m(t, C^0, \mathbf{p}^r) - C_i(t, C^0, \hat{k}_A, \hat{k}_B))^2 dt \tag{4.91}$$

Le tableau suivant montre les résultats obtenus ainsi que le temps d’exécution de l’algorithme d’optimisation qui est réalisé en utilisant le "Toolbox optimisation" de Matlab. L’horizon d’optimisation est égal aux sept dernières commutations. Ce tableau montre que les paramètres réels ( $k_A, k_B$ ) sont bien estimés avec une erreur de 0.3 % environ. Les valeurs nominales utilisées sont ( $k_A^{nom} = 1.5, k_B^{nom} = 2$ ).

valeurs initiales		valeurs réelles		valeurs estimées		erreurs d’estimation		Le nombre d’itérations
$0.95k_A^{nom}$	$0.8k_B^{nom}$	$k_A$	$k_B$	$\hat{k}_A$	$\hat{k}_B$	$E_{k_A} \%$	$E_{k_B} \%$	i
1.425	1.6	1.8	2.3	1.81	2.31	0.3	0.269	22

TAB. 4.1 – Les paramètres réels ( $k_A, k_B$ ) sont bien estimés avec une erreur de 0.3 % environ.

La figure 4.21 montre l’évolution de l’estimation en fonction des itérations. Dans cet exemple, le processus d’optimisation s’arrête après 21 itérations.

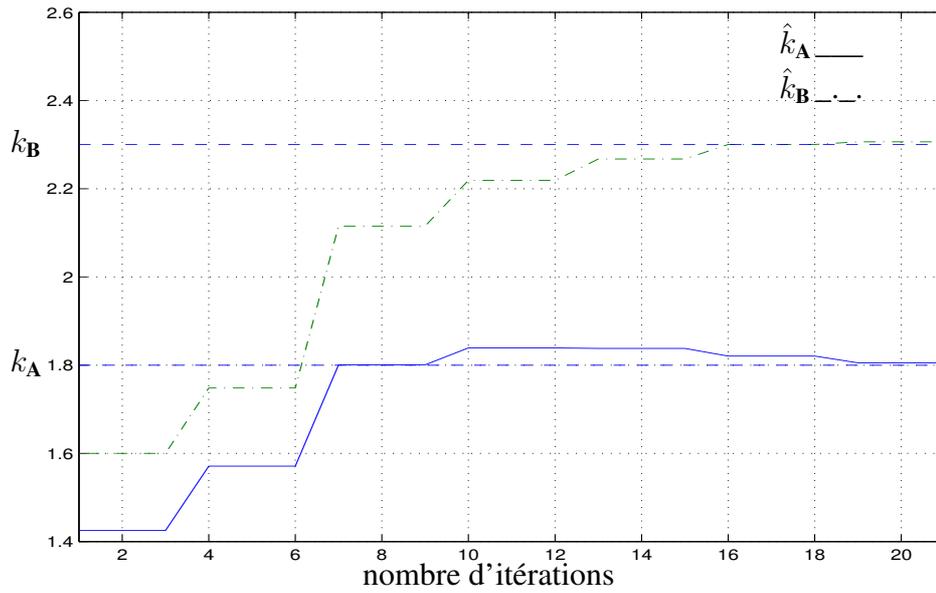


FIG. 4.21 – L'évolution de l'estimation des paramètres de Langmuir  $k_A$  et  $k_B$  durant l'optimisation.

Le lit mobile simulé montre une grande sensibilité vis-à-vis l'incertitude sur les coefficients de l'isotherme. Toutefois, l'évolution du critère en fonction de ces paramètres (figure 4.22) montre que le problème d'optimisation est bien conditionné en l'absence de perturbations sur les débits et sur les concentrations de l'alimentation.

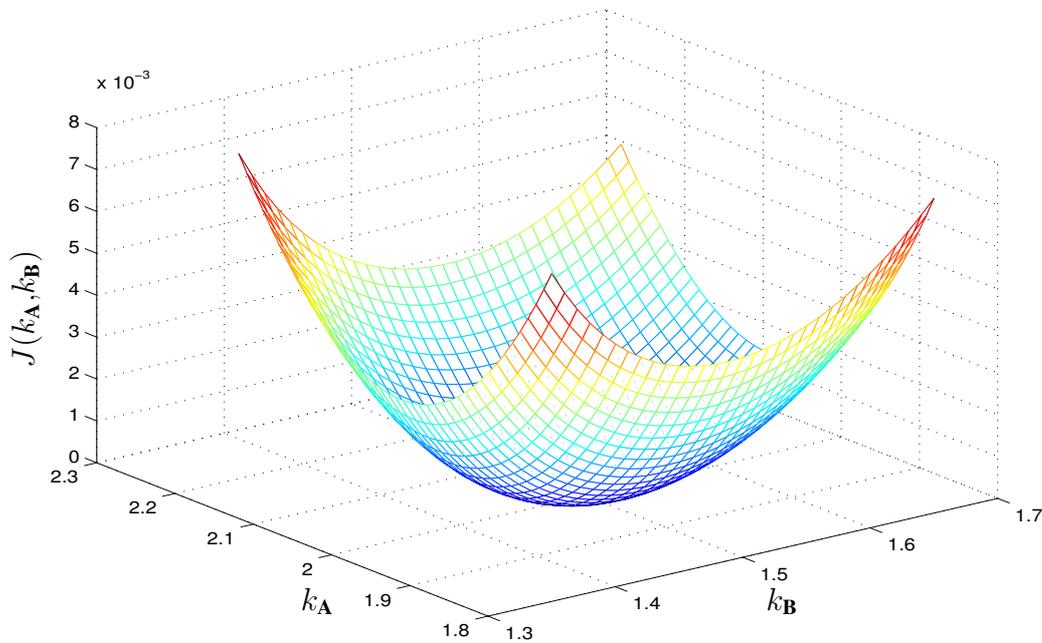


FIG. 4.22 – L'évolution des paramètres de Langmuir  $k_A$  et  $k_B$  en fonction du critère d'optimisation.

### 4.11.3 L'estimation des coefficients de l'isotherme, le débit de l'extraction et le débit d'alimentation

Dans cette simulation, l'estimation de quatre paramètres à la fois est effectuée par la méthode des moindres carrés. Ces paramètres sont les coefficients de l'isotherme, le débit de l'extraction et celui de l'alimentation. Les simulations sont réalisées pour cinq conditions initiales différentes à partir des valeurs nominales incluses dans le vecteur  $p^{nom} = [k_A^{nom} \ k_B^{nom} \ Q_{Ext}^{nom} \ Q_F^{nom}] = [1.5 \ 2 \ 7.51 \cdot 10^{-5} \ 0.56 \cdot 10^{-5}]$ . Les valeurs réelles des paramètres sont incluses dans le vecteur  $p^r = [k^A \ k^B \ Q_{Ext} \ Q_F] = [1.8 \ 2.3 \ 8.46 \cdot 10^{-5} \ 0.67 \cdot 10^{-5}]$ .

Les résultats sont présentés dans le tableau 4.2 et montrent une bonne estimation des paramètres en question.

valeurs initiales	$E_{k_A} \%$	$E_{k_B} \%$	$E_{Q_{Ext}} \%$	$E_{Q_F} \%$	nombre d'itérations
$[1 \ 1 \ 1 \ 1]p^{nom}$	1.79	1.31	2.96	0.67	68
$[1.1 \ 1.1 \ 1.1 \ 1.1]p^{nom}$	1.5833	1	3.3349	0.29	14
$[1.15 \ 1.2 \ 1.1 \ 1]p^{nom}$	1.93	0.7824	4.1499	0	52
$[1.2 \ 1.05 \ 1.14 \ 1.2]p^{nom}$	2.06	0.4508	3.14	0	43
$[1.2 \ 1.15 \ 1.15 \ 1.2]p^{nom}$	0.01	0.01	0.81	1.0417	76

TAB. 4.2 – Les quatre paramètres (les coefficients de l'isotherme, le débit de l'extraction et celui de l'alimentation.) sont bien estimés pour cinq conditions initiales différentes.

### 4.11.4 Comparaison avec un nouvel outil graphique pour le diagnostic et l'estimation paramétrique

L'approche d'optimisation au sens des moindres carrés qui est utilisée pour l'estimation présentée dans cette section, a été comparée avec un nouvel outil d'estimation développé dans le cadre de la thèse de doctorat de M.Bilal Youssef [82].

Il s'agit d'un outil graphique pour la diagnostic et l'estimation paramétrique des systèmes non linéaires. Cet outil est basé sur la définition d'une signature graphique générée à partir des mesures passées du système. Si l'allure de la signature se déforme d'une façon détectable lorsqu'un paramètre du système varie et indépendamment des valeurs des autres paramètres; la signature devient un outil intéressant de diagnostic. Si en plus la déformation de la signature est corrélée à la variation du paramètre en question, la valeur de ce dernier peut alors être estimée.

La figure 4.23 montre un exemple pour la détection des variations du coefficient  $k_B$ . La signature de  $k_B$  notée par  $\mathcal{S}_1$  est générée à partir des mesures. L'allure de cette signature est tracée dans la figure 4.23 **a** pour des variations de  $k_B$ . Il est clair que lorsque  $k_B$  diminue, l'allure de la signature  $\mathcal{S}_1$  s'allonge. La question qui se pose maintenant c'est comment cette propriété change lorsque les autres paramètres varient?

Les figures 4.23 **b**, **c** et **d** montrent que la signature  $\mathcal{S}_1$  est insensible aux variations des autres paramètres, on peut donc utiliser cette signature pour détecter et estimer les variations de  $k_B$  sans connaître les valeurs des autres variables. Plus de détails concernant cet outil graphique peuvent être trouvés dans [82] et [83]. Des détails sur l'utilisation de cet outil graphique pour l'estimation de ces paramètre

(les coefficients de l'isotherme, le débit de l'extraction et celui de l'alimentation) sont présentés dans [11].

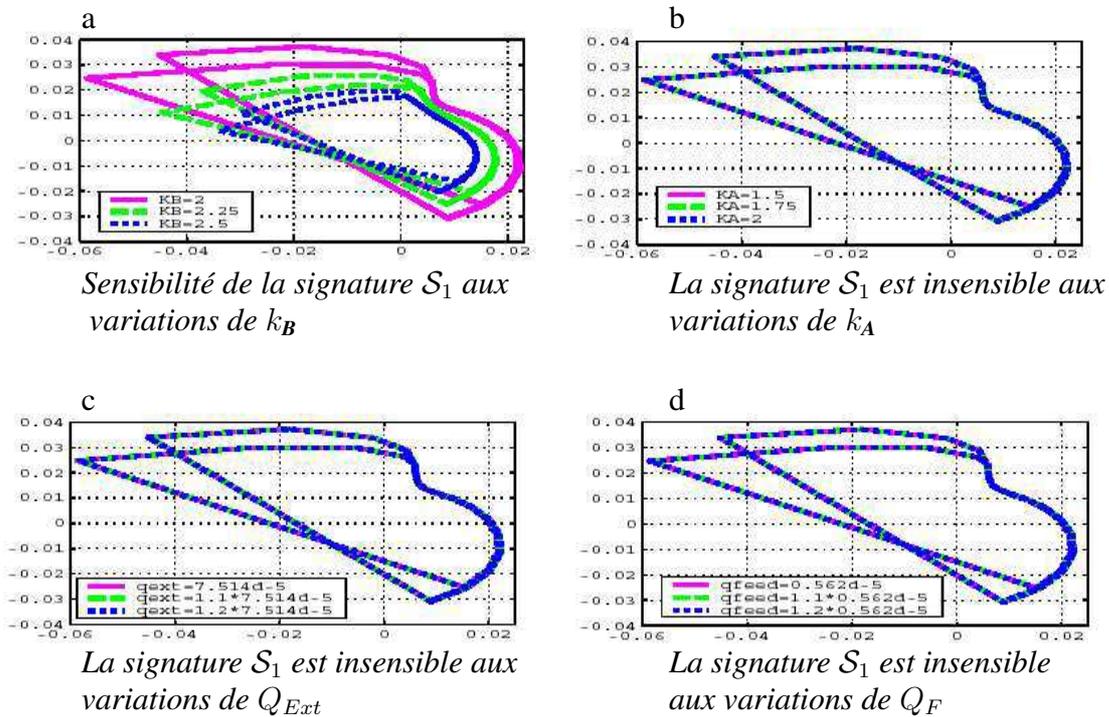


FIG. 4.23 – La détection des variations du coefficient  $k_B$ .

La comparaison entre l'approche basée sur cette méthode graphique et celle des moindres carrés de la section précédente 4.11.1 est réalisée en utilisant deux simulations et en considérant la même précision sur le critère d'arrêt. Dans la première simulation, les deux coefficients de l'isotherme sont bien estimés par les deux approches, toutefois l'outil graphique permet d'estimer les deux paramètres en faisant une seule itération, alors que l'optimisation par moindres carrés nécessite 22 itérations comme le montre le tableau 4.1.

Dans la deuxième simulation, l'estimation des quatre paramètres (les coefficients de l'isotherme, le débit de l'extraction et le débit de l'alimentation) est effectuée par la méthode graphique pour cinq conditions initiales différentes. Le nombre d'itérations correspondant est 6 itérations. Ceci montre clairement que l'approche basée sur la signature est plus avantageuse puisque le nombre d'itérations est beaucoup plus petit en comparant avec le nombre d'itération nécessaire pour la méthode des moindres carrés (voir tableau 4.2). Les résultats de cette étude ont été publiés dans [11].



## Conclusion générale et perspectives

Dans cette thèse, la stratégie de la commande prédictive non linéaire a été appliquée pour commander un lit mobile simulé. Il s'agit d'un procédé de séparation de deux composants se trouvant initialement mélangés dans un liquide. Ce procédé repose sur la chromatographie comme principe de séparation réalisé sur une colonne. Ainsi ce procédé est constitué de plusieurs colonnes chromatographiques connectées en série et regroupées en quatre sections. Ces dernières sont définies par leur emplacement entre quatre robinets qui sont commutés dans le sens d'écoulement du fluide.

Afin d'exploiter le potentiel économique d'un lit mobile simulé, plusieurs critères économiques sont pris en compte d'une manière flexible tout en respectant les contraintes primordiales sur les puretés des produits obtenus.

Face aux multiples sources de complexité (non linéarité, multi-variables, dynamique hybride, absence d'un régime stationnaire et la présence des contraintes sur la commande) la commande prédictive non linéaire s'impose comme une stratégie de commande adéquate.

Toutefois, l'optimisation non convexe associée à la commande prédictive non linéaire n'est pas faisable en-ligne, c'est la raison pour laquelle elle est distribuée dans le temps. Cette optimisation est basée sur la méthode de la région de confiance.

Les résultats de simulation démontrent que l'algorithme est capable d'améliorer le coût économique d'une façon flexible tout en respectant les contraintes sur les puretés. Les critères économiques considérés dans cette thèse sont l'accélération du taux de production, la réduction de la consommation du solvant et le respect de la date limite de livraison des produits.

Tous les résultats de simulation réalisés dans cette thèse sont évalués dans le cadre de l'optimisation distribuée dans le temps, en considérant une seule itération dans la période d'échantillonnage et en utilisant une approximation quadratique du critère d'optimisation. Autrement dit, ces résultats permettent d'explorer la meilleure réalisation dans le cas le plus rapide (une seule itération et une approximation quadratique). Toute augmentation du nombre d'itérations dans une période d'échantillonnage et toute augmentation du degré de l'approximation du critère conduit forcément à des améliorations. Ces augmentations peuvent être effectuées dans la mesure où le temps de calcul est toujours inférieur à la période nécessaire (choisie) pour mettre à jour la commande.

D'autre part, les méthodes de conception (en particulier la théorie triangulaire) présentées en détails dans le chapitre 3 - qui permettent de trouver le profil de commande aboutissant à une séparation complète- peuvent être intégrées dans l'algorithme pour rentrer immédiatement dans la phase 2. Dans

cette phase, le coût économique est amélioré tout en respectant les contraintes sur les puretés. Toutefois, l'un des objectifs attendus dans cette thèse est de développer un schéma de commande qui peut être adapté à d'autres procédés chimiques. D'un autre côté, la théorie triangulaire n'a pas été développée pour tous types d'isotherme alors que l'algorithme proposé dans cette thèse peut utiliser aisément tous types d'isotherme.

De multiples perspectives peuvent être envisagées parmi lesquelles,

- L'étude de la sensibilité vis-à-vis du nombre d'itérations effectuées de l'optimisation distribuée dans le temps.
- L'intégration d'un estimateur paramétrique (celui des moindres carrés ou celui de la signature graphique [82]) et l'intégration d'un schéma d'observateur.
- Une implémentation expérimentale, puisque les résultats de simulation obtenus qui permettent de démontrer l'applicabilité du schéma proposé, sont très encourageants.
- L'adaptation de l'algorithme pour commander d'autres procédés.

# Bibliographie

- [1] <http://www.uop.com/objects/actual%20moving%20bed.pdf> .
- [2] E. Kloppenburg and E.D. Gilles. Communications: A new concept for operating simulated moving-bed processes . *Chemical Engineering and Technology*, 22:813–817, May 1999.
- [3] Giuseppe Storti, Maurizio Masi, Sergio Carrà, Massimo Morbidelli. Optimal design of multicomponent countercurrent adsorption separation processes involving nonlinear equilibria. *Chemical Engineering Science*, 44, No.6:1329–1345, 1989.
- [4] A. Toumi, S. Engell, O. Ludemann-Hombourger, R. M. Nicoud and M. Bailly. Optimization of simulated moving bed and Varicol processes . *Journal of Chromatography A*, 1006:15–31, 2003.
- [5] Abdelaziz Toumi, Sebastian Engell. Optimization-based control of a reactive simulated moving bed process for glucose isomerization. *Chemical Engineering Science*, 59:3777–3792, 2004.
- [6] M. Alamir and J. P. Corriou. Nonlinear receding horizon state estimation for dispersive adsorption columns with nonlinear isotherm. *Journal of Process Control*, 13(6):517–523, 2003.
- [7] Alirio E. Rodrigues and Mirjana Minceva. Modelling and simulation in chemical engineering: Tools for process innovation . *Computers and Chemical Engineering*, 29:1167–1183, 2005.
- [8] A.M. Katti and P. Jagland. Development and optimization of industrial scale chromatography for use in manufacturing. *Analisis*, 26:M38–M46, 1998.
- [9] Andreas Jupke, Achim Epping and Henner Schmidt-Traub. Optimal design of batch and simulated moving bed chromatographic separation processes. *Journal of Chromatography A*, 944:93–117, January 2002.
- [10] N.I.M. Gould A.R. Conn and P.L. Toint. Trust-region methods. *MPS/SIAM Series on Optimization*, SIAM, 2000.
- [11] Mazen ALAMIR Bilal YOUSSEF and Fadi IBRAHIM. Diagnosis and on-line parametric estimation of simulated moving bed. *Proceedings of 44th IEEE Conference on Decision and Control and European Control Conference ECC 2005.*, 2005.
- [12] D.B. Broughton and C.G. Gerhold. Continuous sorption processes employing fixed bed of sorbent and moving inlets and outlets. *US Pat.* 2985589, 1961.
- [13] Butt. *Reaction Kinetics and Reactor Design*. Prentice-Hall international, 1980.
- [14] C. Migliorini, M. Wendlinger, M. Mazzotti and M. Morbidelli. Temperature Gradient Operation of a Simulated Moving Bed Unit. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 40:2606–2617, 2001.
- [15] F.Zonszain CI.Audigié, G.Dupont. *Principes des méthodes d'analyse biochimique*. DION, BP 60 26 avenue de l'Europe 78141 Vélizy Cedex, 1995.
- [16] Cristiano Migliorini, Marco Mazzotti, Massimo Morbidelli. Continuous chromatographic separation through simulated moving bed under linear and nonlinear conditions. *Journal of Chromatography A*, 827:161–173, 1998.
- [17] D.-J. Wu, Z. Ma, N.-H.L. Wang. Optimisation of throughput and desorbent consumption in simulated moving bed chromatography for paclitaxel purification. *Journal of Chromatography A*, 855:71–89, 1999.

- [18] C. V. Rao D. Q. Mayne, J. B. Rawlings and P. O. M. Scokaert. Constrained model predictive control: Stability and optimality. *Proceedings of 44th IEEE Conference on Decision and Control and European Control Conference ECC 2005.*, pages 789–814, 2005.
- [19] D.C.S. Azevedo and A.E. Rodrigues. Design of a simulated moving bed in the presence of mass-transfer resistances. *AIChE journal*, 45, No.5:956–966, 1999.
- [20] D.M. Ruthven and C.B. Ching. Counter-current and simulated counter-current adsorption separation processes. *Chemical Engineering Science*, 44:1011–1038, 1989.
- [21] D.M. Ruthven. *Principles of Adsorption and Adsorption Processes*. Wiley, July 1984.
- [22] E. Kloppenburg and E. D. Gilles. Automatic control of the simulated moving bed process for C8 aromatics separation using asymptotically exact input/output-linearization. *Journal of Process Control*, 9:41–50, February 1999.
- [23] Favoreel, W., De Moor, B., Van Overschee, P., Gevers, M. Model-free subspace-based LQG design. *Proceedings of the American Control Conference*, 5:3372–3376, 1999.
- [24] Frédéric Charton, Roger-Marc Nicoud. Complete design of a simulated moving bed. *Journal of Chromatography A*, 702:97–112, 1995.
- [25] G. Dünnebier and K. -U. Klatt. Modelling and simulation of nonlinear chromatographic separation processes: a comparison of different modelling approaches. *Chemical Engineering Science*, 55:373–380, 2 January 2000.
- [26] G. Dünnebier, I. Weirich and K. -U. Klatt. Computationally efficient dynamic modelling and simulation of simulated moving bed chromatographic processes with linear isotherms. *Chemical Engineering Science*, 53:2537–2546, 15 July 1998.
- [27] G. Dünnebier, S. Engell, K. -U. Klatt, H. Schmidt-Traub, J. Strube and I. Weirich. Modeling of simulated moving bed chromatographic processes with regard to process control design. *Computers and Chemical Engineering*, 22:855–858, 15 March 1998.
- [28] G. HOTIER et B. BALANNEC. Chromatographie à contre-courant simulé : développement et perspectives. *Revue de l'institute Français de pétrole*, 46:N 6, Novembre-Décembre 1991.
- [29] G. Zimmer, G. Dünnebier, K.-U. Klatt. On-line parameter estimation and process monitoring of simulated moving bed chromatographic processes. *Proceedings of the European Control*, page , 1999.
- [30] Giovanni Biressi, Olivier Ludemann-Hombourger, Marco Mazzotti, Roger-Marc Nicoud and Massimo Morbidelli. Design and optimisation of a simulated moving bed unit: role of deviations from equilibrium theory. *Separation Science and Technology*, 876:3–15, 2000.
- [31] T. Gu. *Mathematical Modeling and Scale up of Liquid Chromatography*. Springer, New York, 1995.
- [32] G. Zhong, G. Guiochon. Analytical solution for the linear ideal model of the simulated moving bed chromatographie. *Chemical Engineering Science*, 51:43076–4319, 1996.
- [33] H. Schmidt-Traub and J. Strube. Dynamic simulation of simulated-moving-bed chromatographic processes. *Computers and Chemical Engineering*, 20:S641–S646, 1996.
- [34] Henning Schramm, Stefan Grüner and Achim Kienle. Optimal operation of simulated moving bed chromatographic processes by means of simple feedback control. *Journal of Chromatography A*, 22:3–13, 2003.
- [35] J. Houwing. *Separation of proteins by simulated moving bed chromatography*. PhD thesis, Delft University of Technology, 10 June 2003.
- [36] Sabine Imamoglu. *Modern Advances in Chromatography*, volume 76, chapter 6, pages 211 – 231. Springer-Verlag GmbH, 2002.
- [37] In-Hyoun Song, Sang-Beom Lee, Hyun-Ku Rhee and Marco Mazzotti. Identification and predictive control of a simulated moving bed process: Purity control. *Chemical Engineering Science*, 61:1973–1986, 2006.

- [38] In-Hyoun Song, Sang-Beom Lee, Hyun-Ku Rhee and Marco Mazzotti. Optimization-based predictive control of a simulated moving bed process using an identified model. *Chemical Engineering Science*, 61:6165–6179, 2006.
- [39] J. J. van Deemter, F. J. Zuiderweg and A. Klinkenberg. Longitudinal diffusion and resistance to mass transfer as causes of nonideality in chromatography. *Chemical Engineering Science*, 50:3867, 1956.
- [40] J. Strube, U. Altenhöner, M. Meurer, H. Schmidt-Traub and M. Schulte. Dynamic simulation of simulated-moving-bed chromatographic processes. *Computers and Chemical Engineering*, 22:1309–1317, 1998.
- [41] LU Jian-gang. Mathematical modeling of salt-gradient ion-exchange simulated moving bed chromatography for protein separations. *Journal of Zhejiang University SCIENCE*, 12:1613–1620, 2004.
- [42] J.L., Tits, A.L., Lawrence, C.T. a FORTRAN code for solving constrained nonlinear (minimax) optimization problems, generating iterates satisfying all inequality and linear constraints. *User's guide for FFSQP version 3.7, University of Maryland*.
- [43] Joukje Houwing, Hugo A. H. Billiet, and Luuk A. M. van der Wielen. Mass-Transfer Effects During Separation of Proteins in SMB by Size Exclusion. *AIChE Journal*, 49, No. 5:1158–1167, May 2003.
- [44] J.P.Courrio. *Automatique des procédés chimiques, Modélisation, estimation, cristallisation*. Hermes.
- [45] Karsten-Ulrich Klatt, Felix Hanisch and Guido Dünnebier. Model-based control of a simulated moving bed chromatographic process for the separation of fructose and glucose. *Journal of Process Control*, 12:203–219, February 2002.
- [46] Karsten Ulrich Klatt, Guido Dünnebier and Sebastian Engell. Modeling and computationally efficient simulation of chromatographic separation processes. *Mathematics and Computers in Simulation*, 53:449–455, 30 October 2000.
- [47] Kathleen Mihlbacher, Jörg Fricke, Tong Yun, Andreas Seidel-Morgenstern, Henner Schmidt-Traub, Georges Guiochon. Effect of homogeneity of the column set on the performance of a simulated moving bed. I. Theory. *Journal of Chromatography A*, 908:49–70, 2001.
- [48] L. Lapidus, N. Amundsen. Mathematics of adsorption in beds IV. The effect of longitudinal diffusion in ion exchange and chromatographic columns. *The Journal of Physical Chemistry*, 56:984–988, 1952.
- [49] Leonard B. A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream procedure. *Comput. Meth. Appl. Mech. Engng*, 19:59–98, 1979.
- [50] M. Douglas LeVan and Theodore Vermeulen. Binary langmuir and freundlich isotherms for ideal adsorbed solutions. *The Journal of Physical Chemistry*, 85(3):3247 – 3250, 1981.
- [51] L.Savidan. *La Chromatography*. DUNOD, paris, 1963.
- [52] Luís S. Pais and Alírio E. Rodrigues. Design of simulated moving bed and Varicol processes for preparative separations with a low number of columns. *Journal of Chromatography A*, 1006:33–44, 2003.
- [53] M. Minceva and A.E. Rodrigues. Modeling and simulation of a simulated moving bed for the separation of p-xylene. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 41:3454–3461, 2002.
- [54] M. Mangold, G. Lauschke, J. Schaffner, M. Zeitz, and E.-D. Gilles. State and parameter estimation for adsorption columns by nonlinear distributed parameter state observers. *Journal of Process Control*, 4(3):163–172, 1994.
- [55] Marco Mazzotti, Giuseppe Storti, Massimo Morbidelli. Optimal operation of simulated moving bed units for nonlinear chromatographic separations. *Journal of Chromatography A*, 769:3–24, 1997.
- [56] Marco Mazzotti, Massimo Morbidelli, Sergio Carrà. Robust design of binary countercurrent adsorption separation processes. *AIChE Journal*, 39, No.3:471–492, 1993.
- [57] Martin A., Synge R. A new form of chromatogram employing two liquid phases. I.A theory of chromatography. II. Application to the microdetermination of the higher monoamino acids in proteins. *Biochemical Journal*, 35:1358–1368, 1941.

- [58] Mazen Almir, Fadi Ibrahim, Jean Pierre Corriou. A flexible nonlinear model predictive control scheme for quality/performance handling in nonlinear SMB chromatography. *Journal of Process Control*, 16:333–344, 2006.
- [59] M. ben Thabet, M. Almir, M. Bailly and J. P. Corriou. Nonlinear control of a simulated moving bed. *Conference on separation science and technology. AICH EJ 97, Los Angeles*, pages 1316–1321, November 1997.
- [60] Gordon McKay and Bushra Al Duri. Prediction of multicomponent adsorption equilibrium data using empirical correlations. *The Chemical Engineering Journal*, 41(3):9–23, 1989.
- [61] Mirjana Minceva and Alírio E. Rodrigues. Two-level optimization of an existing SMB for p-xylene separation. *Computers and Chemical Engineering*, 29:2215–2228, 2005.
- [62] M. M. Kearney, K. L. Hieb. . *US Pat.*, page 5 102 553, 1992.
- [63] Johannes P. Schlöder Moritz Diehl, Hans Georg Bock. A real-time iteration scheme for nonlinear optimization in optimal feedback control. *Society for Industrial and Applied Mathematics.*, 43:1714–1736, 2005.
- [64] Natarajan S., Lee J. H., Lee K. S. Repetitive model predictive control for continuous processes with periodicity, *Advances in MPC. AICHE Annual Conference, Dallas, TX, USA*, November 1999.
- [65] O. Ludemann-Hombourger, G. Pigorini, R. M. Nicoud, D. S. Ross, G. Terfloth. Application of the VARICOL process to the separation of the isomers of the SB-553261 racemate. *Journal of Chromatography A*, 947:59–68, 2002.
- [66] O. Ludemann-Hombourger, M. Bailly and R. M. Nicoud. Design of a simulated moving bed: Optimal particle size of the stationary phase. *Separation Science and Technology*, 35:1285–1305, 2000.
- [67] O. Ludemann-Hombourger, R. M. Nicoud, M. Bailly. The VARICOL Process: A New Multicolumn Continuous Chromatographic Process. *Separation Science and Technology*, 35:1829–1862, 2000.
- [68] L. S. Pais. *Chiral separations by SMB chromatography*. PhD thesis, 1999.
- [69] Pröll T., Küsters E. Optimization strategy for simulated moving bed systems. *Journal of Chromatography A*, 800:135–150, 1998.
- [70] S. J. Qin and T. A. Badgwell. An overview of industrial model predictive control technology. *Fifth International Conference on Chemical Process Control*, pages 232–256, 1996.
- [71] S. J. Qin and T. A. Badgwell. An overview of nonlinear model predictive control applications. *Nonlinear Predictive Control*, pages 369–393, 2000.
- [72] W. E. Stewart E. N. Lightfoot R. B. Bird. *Transport phenomena*. Wiley, New York, 1960.
- [73] Raymond P. W. Scott. *Liquid Chromatography Column Theory*. Wiley, 1991.
- [74] Sebastian Engell and Abdelaziz Toumi. Optimisation and control of chromatography. *Computers and Chemical Engineering*, 29:1243–1252, 15 May 2005.
- [75] Seshatre Natarajan and Jay H. Lee. Repetitive model predictive control applied to a simulated moving bed chromatography system. *Computers and Chemical Engineering*, 24:1127–1133, 15 July 2000.
- [76] Stefanie Abel, Gültekin Erdem, Marco Mazzotti, Manfred Morari and Massimo Morbidelli. Optimizing control of simulated moving beds-linear isotherm. *Journal of Chromatography A*, 1033:229–239, 16 April 2004.
- [77] Stefanie Abel, Gültekin Erdem, Mohammad Amanullah, Manfred Morari, Marco Mazzotti and Massimo Morbidelli. Optimizing control of simulated moving beds- experimental implementation. *Journal of Chromatography A*, 1092:2–16, 15 July 2005.
- [78] Thomas B. Jensen, Tiem G. P. Reijns, Hugo A. H. Billiet and Luuk A. M. van der Wielen. Novel simulated moving-bed method for reduced solvent consumption. *Journal of Chromatography A*, 873:149–162, 24 March 2000.

- [79] Jérôme M.B. Walmag and Éric J.M. Delhez. A trust-region method applied to parameter identification of a simple prey-predator model. *Applied Mathematical Modelling*, 29(3):289–307, March 2005.
- [80] Y. Zang and P.C. Wankat. SMB operation strategy - Partial feed . *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 41:2504–2511, May 2002.
- [81] York A. Beste, Mark Lisso, Günter Wozny, Wolfgang Arlt. Optimization of simulated moving bed plants with low efficient stationary phases: separation of fructose and glucose. *Journal of Chromatography A*, 868:169–188, 2000.
- [82] Bilal YOUSSEF. *Diagnostic par signatures graphiques des systèmes non linéaires*. PhD thesis, INPG, Novembre 2005.
- [83] Bilal Youssef and Mazen Alamir. Generic signature generation tool for diagnosis and parametric estimation of multi-variable dynamique nonlinear systems. *Proceeding of the IEEE conference on Decision and Control, Hawaiï, USA*, 2003.
- [84] Z. Ma and N.-H.L. Wang. Sanding wave analysis of SMB chromatography: Linear systems. *AIChE*, 43:2488–2508, 1997.
- [85] Z. Zhang, M. Mazzotti and M. Morbidelli. Multiobjective optimization of simulated moving bed and Varicol processes using a genetic algorithm. *Journal of Chromatography A*, 989:95–108, 2003.
- [86] Ziyang Zhang, Marco Mazzotti and Massimo Morbidelli. Multiobjective optimization of simulated moving bed and Varicol processes using a genetic algorithm. *Separation Science and Technology*, 989:95–108, 2003.
- [87] Ziyang Zhang, Marco Mazzotti and Massimo Morbidelli. PowerFeed operation of simulated moving bed units: changing flow-rates during the switching interval. *Journal of Chromatography A*, 1006:87–99, 2003.

# A flexible nonlinear model predictive control scheme for quality/performance handling in nonlinear SMB chromatography

Mazen Alamir<sup>a,\*</sup>, Fadi Ibrahim<sup>a</sup>, Jean Pierre Corriou<sup>b</sup>

<sup>a</sup> *Laboratoire d'Automatique de Grenoble, CNRS/INPG/UJF, BP 46, Domaine Universitaire, 38400 Saint Martin d'Hères, France*

<sup>b</sup> *Laboratoire des Sciences du Génie-Chimique, Groupe ENSIC, 1, rue Grandville, BP 451, 54001 Nancy Cedex, France*

Received 23 June 2004; received in revised form 16 June 2005; accepted 4 July 2005

## Abstract

In this paper, a new state feedback scheme is proposed for the control of simulated moving beds with strongly nonlinear isotherms. The proposed scheme offers a unified framework enabling different performance criteria to be improved according to the active production constraints (achieving low cost, improving efficiency, respecting deadlines) that may unpredictably change during the production batch. The proposed scheme is illustrated through several examples showing the robustness of the closed-loop behavior against parameter uncertainties as well as its reactivity to changes in the active auxiliary criterion.

© 2005 Elsevier Ltd. All rights reserved.

*Keywords:* Simulated moving bed; Chromatography; Nonlinear constrained model predictive control; Robustness

## 1. Introduction

Among different separation tools, chromatographic processes gain increasing importance in domains such as food, fine chemicals and pharmaceutical industry where high purities and yields are required. The chromatographic separation principle lies on the different adsorption affinities of the components in a multi-component mixture. Originally, the processes were operated in batch mode and this operation was repeated resulting in a periodic process. Nowadays, the attractive character of continuous processes is realized in the true counter-current chromatographic process where several chromatographic columns are disposed in series in which the solid and liquid phases move in opposite directions. Practically, this continuous process suffers from several drawbacks including in particular the fast degradation of the solid adsorbent, so that it is preferable to simulate

its movement by cyclic switching of the inlet and outlet ports in the direction of the fluid flow. Due to its hybrid character including continuous and discrete dynamics, its operational conditions close to the optimum, its great sensitivity to operation parameters and disturbances, the control of the simulated moving bed (SMB) process is complicated and many different strategies have been proposed. In the following, a quick overview of existing solutions is made in order to properly underline the novelty of the feedback methodology proposed in the present paper.

In [1], a simple feedback scheme is proposed that combines PI controller with nonlinear wave propagation module. The idea is to use decoupled PI controllers in order to induce slight movements of the wave fronts once a convenient and optimized cyclic regime is established. The latter is calculated using the Triangle Theory approach that neglects columns efficiency effects. The wave front propagation block uses simple rules that are valid for the equivalent true moving bed. The scheme is dedicated to a maximum feed throughput and minimum solvent consumption operations. It is

\* Corresponding author. Tel.: +33 476826326; fax: +33 476826388.  
E-mail address: [mazen.alamir@inpg.fr](mailto:mazen.alamir@inpg.fr) (M. Alamir).

particularly suitable in the absence of precise model of the process.

In [2], an asymptotically input/output linearizing controller is proposed. Both the observer scheme and the input/output linearizing feedback are computed using the equivalent true moving bed.

In [3], a model predictive control is proposed based on the linearized equations. This leads to a LP optimization problem. A linear form of the efficiency cost function is used by taking  $F = \lambda_1 Q_D - \lambda_2 Q_F$  as penalty function. The robustness of the proposed scheme has been tested under various uncertainty and disturbance conditions. The two stage philosophy consisting in first achieving purity requirements and then improving auxiliary cost function is also used in the present paper. With this respect, the present paper may be viewed as a generalization of [3] to the case of higher order on-line approximation of the SMB nonlinear model.

Quite similarly, a repetitive model predictive control scheme is proposed in [4] which exploits the periodic nature of the problem. Thus a run-to-run discrete linear model is obtained around some reference configuration by assuming a constant switching period. This model is then used in a MPC scheme in order to maximize the yields under purity-related inequality constraints.

In [5], a two stage feedback control is proposed in which the on-line control task is to maintain the system state regulated along an off-line computed optimal trajectory. In the resulting linear system model, the state and the control are deviations from the off-line computed ones. Recently, a nonlinear model predictive control scheme has been applied to low purity separation process [6].

The feedback scheme proposed in this paper shows the following features:

- The control scheme needs no initially optimized configuration to be available. This can be crucial when unpredictable changes occur in the system configuration (changes in feed composition, desired purities). However, any a priori knowledge on the optimal operation conditions can be easily incorporated by suitably initializing the algorithm.
- The fact that control schemes are often based on off-line computed optimal configuration comes from the fact (see [5]) that the underlying constrained non convex optimal control problem cannot be exactly solved on-line in a classical nonlinear predictive control scheme [7]. To overcome this difficulty, the optimal control problem is solved here during the system life time in the sense that the iterations leading to its solution are distributed in time.
- The feedback scheme handles in a quite flexible and easy way sudden changes in the production planning. This may arise for instance when further to an unpredictable new order, it becomes advantageous to finish

the current production earlier than initially decided, including doing this by increasing the desorbent flow rate  $Q_D$  that one generally aims to minimize. In such a case, the classical efficiency related cost functions becomes (at least temporarily) irrelevant and may be supplanted by a maximum flow rate cost function that expresses the need to accelerate the production rate whatever is the related cost that is lower than the delay penalty-related cost.

- Apart from [2], few papers consider the yields on the optimization cost function used to update the control variables. The cost function is defined in terms of flow rate dependent function under purity-related inequality constraints. In the feedback scheme proposed in the present paper, the yield is explicitly used in the cost function via a small weight term that is added to the purity constraint violation term.
- The feedback scheme incorporates an integration-like feature to robustify the closed-loop against unavoidable parameter uncertainties.
- The switching time that is frequently taken constant in many existing schemes is a decision variable in the proposed one. This is a crucial feature when several auxiliary performance indexes may be used according to the production context since it enables the quasi invariance of solutions up to a time scaling to be extensively used (see Section 6 for simulations illustrating this feature).

More generally, it goes without saying that the “best” control strategy deeply depends on the context. This includes several facts, among other:

- The accuracy of the available model. This depends on the initial knowledge on the system’s parameters as well as whether an on-line parameter estimation is being used. Such estimation may be done through on-line nonlinear least squares minimization. This is made easier by the fact that the limit cycles are initial state independent. This enables to decouple the effect of modelling error and initial state estimation errors.
- The uncertainties on the production scheduling that determine to which extent the performance index may vary. This is also linked to the quality of the feed stream as well as that of the local flow rate regulation and measurement systems.
- The amplitude of the set point changes that may disqualify linearization based schemes as well as the degree of desired purity that render the strategies based on the use of equivalent true moving bed inappropriate.

The paper is organized as follows: First some facts on simulated moving bed (SMB) chromatography are recalled in Section 2. The control problem is stated in Section 3. Some definitions and notations are given in

Section 4. The proposed feedback algorithm is given in Section 5 while illustrative scenario are proposed in Section 6 to assess the efficiency and underline some features of the proposed feedback scheme.

## 2. Recalls on binary simulated moving beds

Simulated moving bed (SMB) is a continuous countercurrent separation process in which the movement of the solid phase is simulated by switching the inlet/outlet ports in the liquid flow direction (Fig. 1). The process is obtained by connecting in series several single chromatographic columns to form four functional sections. Fig. 1 shows a SMB with five columns per section. Each of these sections is defined by its boundary ports. For instance, Section 1 is the one between the desorbent inlet and the extract outlet. Since these ports switch, the functional sections are geometrically moving.

Because of their different adsorption affinities, the two components initially present in the feed inlet have different equivalent convection velocities through the sections. This results in the less adsorbed component being extracted at the raffinate outlet while the more adsorbed component is recovered at the extract outlet.

The performances of the SMB can be monitored by five independent variables. These are the delay  $\tau_s > 0$  between switches and four independent flow rates that are chosen here to be  $Q_D$ ,  $Q_{ext}$ ,  $Q_F$  and  $Q_{IV}$ . The remaining flow rates may be computed by simple mass balance equations under liquid incompressibility assumption.

In what follows,  $U$  denotes these decision variables

$$U := (Q_D \ Q_{ext} \ Q_F \ Q_{IV} \ \tau_s)^T \in \mathbb{U} \quad (1)$$

where  $\mathbb{U}$  denotes the compact set of possible values for which all the flow rates are positive and lower than their saturation levels, this reduces to the following constraints:

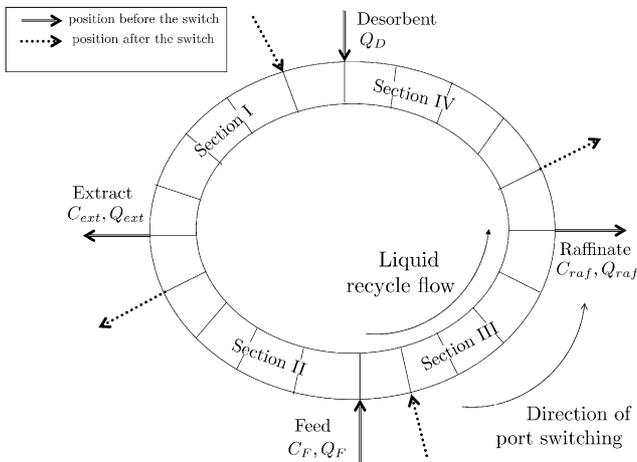


Fig. 1. Schematic view of a simulated moving bed.

$$\forall i \in \{1, \dots, 5\}, \quad U_i^{\min} \leq U_i \leq U_i^{\max} \quad (2)$$

$$U_2 \leq U_1 + \min\{U_3, U_4\} \quad (3)$$

Considering a binary SMB with  $n_c$  columns, the state vector  $C \in \mathbb{R}_+^{2n_c}$  is obtained by concatenating  $C_a \in \mathbb{R}_+^{n_c}$  and  $C_b \in \mathbb{R}_+^{n_c}$  where  $C_{a,i}$  [respectively  $C_{b,i}$ ] is the concentration of species (a) [respectively (b)] in the  $i$ th column. Since the system's equations depend on the positions of the ports; let  $\sigma \in \{1, \dots, n_c\}$  be the configuration index, say, the position of the Feed inlet for instance. The evolution of  $\sigma$  is piecewise constant with jumps occurring at the switching instants  $t_k$ , that is

$$\sigma(t_k + \tau_s(t_k)) = \sigma(t_k) \bmod(n_c) + 1$$

and assuming instantaneously reachable equilibrium between liquid and solid phases, the system equations under piecewise constant control  $U(\cdot)$ , that is, a control being constant between two successive switches, may be written as follows:

$$\dot{C}(t) = F_{\sigma(t_k)}(C(t), U(t_k), C_F(t)) \quad t \in [t_k, t_{k+1}[ \quad (4)$$

$$\sigma(t_k + U_5(t_k)) = \sigma(t_k) \bmod(n_c) + 1 \quad (5)$$

where  $F_{\sigma}(\cdot)$  is the smooth convection–diffusion evolution law that holds under the configuration  $\sigma$ .

It is worth noting that the control algorithm proposed in this paper is valid for any “simulation model” that may be used to predict the behavior of the SMB under some control. The simplifications leading to (4), (5) are not mandatory. If more detailed simulation model is available, it can be used.

On the other hand, the control strategy proposed in the following assumes the state to be completely measured. It goes without saying that a convenient state observer [8–11] has to be used.

## 3. The control problem

Assume that the SMB operates over  $[t_0, t_0 + T]$  to satisfy a customer's order. Denote by  $m_a^{\text{ext}}$  and  $m_b^{\text{ext}}$  [respectively  $m_a^{\text{raf}}$  and  $m_b^{\text{raf}}$ ] the mass of species (a) [respectively (b)] collected at the extract and the raffinate ports over the operating interval  $[t_0, t_0 + T]$ . One clearly has

$$m_j^{\text{ext}} = \int_{t_0}^{t_0+T} Q_{\text{ext}}(t) \cdot C_j^{\text{ext}}(t) dt, \quad j \in \{a, b\}$$

$$m_j^{\text{raf}} = \int_{t_0}^{t_0+T} Q_{\text{raf}}(t) \cdot C_j^{\text{raf}}(t) dt, \quad j \in \{a, b\}$$

therefore, in order to keep up with the order's requirements, the following constraints have to be carefully observed.

(1) The purity requirements:

$$\min \left\{ \frac{m_a^{\text{ext}}}{m_a^{\text{ext}} + m_b^{\text{ext}}} - P_{\text{ext}}^d, \frac{m_b^{\text{raf}}}{m_a^{\text{raf}} + m_b^{\text{raf}}} - P_{\text{raf}}^d \right\} \geq 0 \quad (6)$$

where  $p_{\text{ext}}^{\text{d}}$  and  $p_{\text{raf}}^{\text{d}}$  are the contractually minimal purities to hold in the delivered product.

(2) The total produced quantities:

$$m_{\text{a}}^{\text{ext}} \geq m_{\text{ext}}^{\text{d}}, \quad m_{\text{b}}^{\text{raf}} \geq m_{\text{raf}}^{\text{d}} \quad (7)$$

(3) The delivery deadline:  $t_0 + T \leq t^{\text{d}}$

an optimal admissible strategy is therefore a one that meets the above requirements while minimizing some cost function. This may be for instance the quantity of desorbent being used, namely

$$J_{\text{D}} := \int_{t_0}^{t_0+T} Q_{\text{D}}(t) dt \quad (8)$$

alternatively, the following efficiency criterion may be used when only one product is of interest

$$J_{\text{E}} := \int_{t_0}^{t_0+T} \frac{Q_{\text{D}}(t)}{Q_i(t)} dt, \quad i \in \{\text{ext}, \text{raf}\} \quad (9)$$

or (when the two products are required)

$$J_{\text{E}} := \int_{t_0}^{t_0+T} \frac{Q_{\text{D}}(t)}{Q_{\text{F}}(t)} dt \quad (10)$$

Finally, when the production rate is to be maximized in order to meet the delivery time constraint, the following criterion maybe used

$$J_{\text{P}} := - \int_{t_0}^{t_0+T} [Q_{\text{D}} + Q_{\text{F}}] dt \quad (11)$$

provided that the concentration in the outlet flows are taken into account adequately (see below).

Given the initial state  $C(t_0)$ , the above problem may be considered as a constrained free final-time optimal control problem that can be solved using nonlinear dynamic programming. However, as mentioned in [5], the associated computation complexity would be incompatible with on-line solution in a classical nonlinear predictive control scheme.

#### 4. Some definitions and notations

In order to properly define the feedback strategy, the following definitions are needed:

**Definition 1** (*Steady mean solutions*). Given a constant profile  $U(\cdot) \equiv U^0$ , the corresponding steady mean solution is denoted by  $\bar{C}(U^0)$ , namely

$$\bar{C}(U^0) := \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{U_5^0} \int_t^{t+U_5^0} C(\tau)|_{U(\cdot)=U^0} d\tau \quad (12)$$

(Recall that according to (1),  $U_5^0$  is the corresponding constant switching period).

**Definition 2** (*Admissible constant profiles*). Given some positive real  $\eta > 0$ ,  $U^0 \in \mathbb{U}$  is said to be  $\eta$ -admissible iff the following holds

$$\psi_{\text{ext}}(U^0) := \frac{\bar{C}_{\text{a}}^{\text{ext}}(U^0)}{\bar{C}_{\text{a}}^{\text{ext}}(U^0) + \bar{C}_{\text{b}}^{\text{ext}}(U^0)} - p_{\text{ext}}^{\text{d}} \geq \eta \quad (13)$$

$$\psi_{\text{raf}}(U^0) := \frac{\bar{C}_{\text{b}}^{\text{raf}}(U^0)}{\bar{C}_{\text{a}}^{\text{raf}}(U^0) + \bar{C}_{\text{b}}^{\text{raf}}(U^0)} - p_{\text{raf}}^{\text{d}} \geq \eta \quad (14)$$

where  $p_{\text{ext}}^{\text{d}}$  and  $p_{\text{raf}}^{\text{d}}$  are the desired purities. The admissible set defined above is hereafter denoted by  $\mathcal{U}_{\eta} \subset \mathbb{U}$ .

The relevance of the above definitions comes from the fact that an admissible profile  $U^0$  makes the purity and the production requirements (6) and (7) achievable in finite time. Roughly speaking, the purity margin  $\eta > 0$  is used to compensate for potential “lack of purity” that would have been accumulated during the transient phase.

Hereafter, the constraints (13) and (14) are shortly written as follows:

$$J_{\text{pur}}(U^0, \eta) \leq 0 \quad (15)$$

where  $J_{\text{pur}}$  is given by

$$J_{\text{pur}}(U, \eta) := \eta - \min \{\psi_{\text{ext}}(U), \psi_{\text{raf}}(U)\} \quad (16)$$

and the admissibility set can be defined equivalently as follows:

$$\mathcal{U}_{\eta} := \{U \in \mathbb{U} \quad \text{s.t.} \quad J_{\text{pur}}(U, \eta) \leq 0\} \quad (17)$$

When the cost function  $J_{\text{pur}}(U, \eta)$  becomes negative, it only guarantees that under the constant profile  $U$ , the purities meet the requirement after some finite time, nothing is said about the in-between transient behavior. This is handled by the following definition:

**Definition 3** (*Invariant admissible configuration*). The set of invariant admissible configurations  $\mathcal{A}_{\eta}^{\text{ad}}$  is the set of all pairs  $(C, U) \in \mathbb{R}^{2n_c} \times \mathcal{U}_{\eta}$  of initial states  $C$  and an admissible constant profiles  $U$  such that for all  $t \in [0, \infty]$ :

$$\frac{\int_t^{t+U_5} C_{\text{a}}^{\text{ext}}(\tau; C; U) d\tau}{\int_t^{t+U_5} [C_{\text{a}}^{\text{ext}}(\tau; C; U) + C_{\text{b}}^{\text{ext}}(\tau; C; U)] d\tau} - p_{\text{ext}}^{\text{d}} \geq \eta \quad (18)$$

$$\frac{\int_t^{t+U_5} C_{\text{b}}^{\text{raf}}(\tau; C; U) d\tau}{\int_t^{t+U_5} [C_{\text{a}}^{\text{raf}}(\tau; C; U) + C_{\text{b}}^{\text{raf}}(\tau; C; U)] d\tau} - p_{\text{raf}}^{\text{d}} \geq \eta \quad (19)$$

where  $C(\tau; C; U)$  is the solution at instant  $\tau$  starting at  $t = 0$  with the initial state  $C$ .

Roughly speaking, when  $(C, U) \in \mathcal{A}_{\eta}^{\text{ad}}$  then by applying the constant profile  $U$ , the resulting behavior satisfies the purity requirement over “all the future”. With this respect, the following cost function is relevant

$$J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(C, U, \eta, T) := \min_{t \in [0, T]} [\eta - \min \{\Phi_{\text{ext}}(t), \Phi_{\text{raf}}(t)\}] \quad (20)$$

where  $\Phi_{\text{ext}}$  and  $\Phi_{\text{raf}}$  are the lhs of (18) and (19) respectively. Note that for sufficiently high  $T$ , the cost function  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$  may be used to characterize the invariant admissible profiles set  $\mathcal{A}_{\eta}^{\text{ad}}$  as follows:

$$\{(C, U) \in A_\eta^{\text{ad}}\} \iff \{J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(C, U, \eta, T) \geq 0\} \quad (21)$$

this results from the open-loop stability of the mean behavior over switching periods. Namely, if (21) holds for some sufficiently high  $T$ , it would be satisfied for all greater  $T$ 's.

In the above optimization arguments, the concentrations of the components at the extract and the raffinate ports are still not taken into account. Only the purities and the flow rates are used in the definition of the optimization cost. In order to overcome this drawback, the cost functions  $J_{\text{pur}}$  and  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$  respectively defined by (16) and (20) are redefined as follows:

$$J_{\text{pur}}(U, \eta) := \eta - \min \{ \psi_{\text{ext}}(U), \psi_{\text{raf}}(U) \} - \frac{\eta}{2C_F} \min \{ \bar{C}_a^{\text{ext}}(U), \bar{C}_b^{\text{raf}}(U) \} \quad (22)$$

$$J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(C, U, \eta, T) := \min_{t \in [0, T]} \left[ \eta - \min \{ \Phi_{\text{ext}}(t), \Phi_{\text{raf}}(t) \} - \frac{\eta}{2C_F} \min \left\{ \int_t^{t+T} C_a^{\text{ext}}(\tau) d\tau, \int_t^{t+T} C_b^{\text{raf}}(\tau) d\tau \right\} \right] \quad (23)$$

Indeed, if the optimal values of the original versions (16)–(20) of  $J_{\text{pur}}$  and  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$  are negative then the optimal values of the new versions (22) and (23) are lower than  $\eta/2$  and therefore the purity requirements are still satisfied with a lower margin  $\eta/2$  instead of  $\eta$ . Note that  $C_F$  is constant in our case and is used in (22) and (23) only as a normalization factor.

Assuming an  $\eta$ -admissible constant profile  $U^0$  and an initial profile  $C^0$ , the time necessary for the quality and the production requirement (6) and (7) to be achieved is hereafter denoted by

$$\Delta T_{\text{ach}}(C^0, U^0)$$

This enables the set of constant profiles that are compatible with the deadline to be defined:

**Definition 4** (*Deadline-compatible constant profiles*). Given a deadline  $t^d$ , for all  $t \in [t_0, t_d[$  and all  $\eta > 0$ , a deadline-compatible constant profile is an admissible constant profile that meets the delivery deadline, namely:

$$\mathcal{U}_d(t, \eta) := \{ U \in \mathcal{U}_\eta \mid t + \Delta T_{\text{ach}}(C(t), U) \leq t^d \} \quad (24)$$

Finally, the following definition is needed

**Definition 5.** For all  $U \in \mathbb{U}$ , the following control transformation

$$\tilde{U} = \Gamma_\rho(U) \leftrightarrow \begin{cases} \tilde{U}_i = \rho U_i, & i \in \{1, \dots, 4\} \\ \tilde{U}_5 = U_5 / \rho \end{cases} \quad (25)$$

is defined for all  $\rho > 0$  satisfying

$$\rho \in \left[ \frac{U_i^{\min}}{\min_{1 \leq i \leq 4}(U_i)}, \frac{U_i^{\max}}{\max_{1 \leq i \leq 4}(U_i)} \right] \quad (26)$$

The transformation (25) is inspired by the fact that in the absence of diffusion,  $U$  and  $\Gamma_\rho(U)$  leads to the same solution in terms of concentrations up to a time scaling. Typically, such transformation is used to rapidly improve the cost function  $J_D$  and  $J_P$  defined above [see (8) and (11)] while leaving quasi invariant the cost function  $J_E$  [see (10)]. The constraint (26) guarantees that  $\Gamma(U)$  still meet the constraint (2) whenever  $U$  does.

### 5. The proposed feedback scheme

The feedback algorithm may be described as follows:

(1) Initial data.

The instant  $t = 0$  is the starting instant for the production corresponding to an order defined by the quality parameters  $p_{\text{ext}}^d$  and  $p_{\text{raf}}^d$ , the total quantities to be produced  $m_{\text{ext}}^d$  and  $m_{\text{raf}}^d$  and the delivery deadline  $t^d$ . Let some security margin  $\eta_0 > 0$  be fixed as well as some initial constant control profile  $U(\cdot) = U^0$ . Put the switching period index  $k = 0$  and the initial switching instant  $t_k = t_0 = 0$ . Put  $i = 1$ .

(2) During the switching period  $[t_k, t_k + U_5^k[$ .

The switching time being given by  $U_5^k$ , the constant flow rates  $U(\cdot) \equiv U_{1, \dots, 4}^k$  are applied over the switching period  $[t_k, t_{k+1} := t_k + U_5^k[$ . During this switching period, computations are done to find the control profile to be applied during the next switching period  $[t_{k+1}, t_{k+1} + U_5^{k+1}[$ . In order to do this, a prediction  $\hat{C}(t_{k+1})$  is first computed by simulating the model starting from  $C(t_k)$  under the constant control  $U_{1, \dots, 4}^k$ .

Two main situations are to be distinguished for which, different classes of updating policies are adopted:

(a)  $(C(t_k), U^k) \notin \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}}$ :

In this case, the system has not yet reached an invariant admissible configuration. Therefore,  $U^k$  is improved in the sense of decreasing  $J_{\text{pur}}$  [see (16)–(22)]. Consequently,  $U^{k+1}$  is obtained by performing a given number of steps of some minimization subroutine starting from  $U^k$  as initial guess. This can be formally written as follows:

Make  $N$  iterations

$$(\alpha_i^{(k+1)}, U^{k+1}) \leftarrow \text{Improve}(J_{\text{pur}}, U^k, \alpha_i^{(k)}, i) \quad (27)$$

$$i \leftarrow (i \bmod 5) + 1 \quad (28)$$

end

where  $i$  is the index of the component of  $U$  being updated while  $\alpha_i$  is the corresponding trust region parameter (more about this is developed in Section 5.2).  $N$  is the number of iterations compatible with

the available computation time (the switching period duration). Note that since  $J_{\text{pur}}$  cannot be indefinitely improved, the control profile becomes constant after a finite number of iterations and since the system is open-loop stable, an invariant admissible configuration is reached (provided that the purity requirements are achievable). The situation (b) hereafter is then “fired”.

(b)  $(C(t_k), U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}}$ :

In this case, an admissible configuration is reached that is invariant under  $U^k$ . However, better control profiles may improve the production cost, the efficiency or the possible delivery time. The choice of the cost function to be considered depends on the context. However, regardless of the context, the principle is the following: The decision variables are split into two categories, namely

$$U := \bigotimes_{i \in I_p \cup I_a} U_i; \quad I_p, I_a \subset \{1, \dots, 5\} \quad (29)$$

where  $I_p$  and  $I_a$  form a partition of  $\{1, \dots, 5\}$ . Roughly speaking,  $I_p$  is the set of indexes of decision variables that are used to create purity margin (the subscript ‘p’ in  $I_p$ ) by minimizing  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$ . This margin enables the other decision variables, called the auxiliary optimizing variables (the subscript ‘a’ in  $I_a$ ) to decrease some auxiliary function  $J_a$ , for instance  $J_D$ ,  $J_E$  or  $J_P$  defined above (see Fig. 2 for a schematic view of this feature).

More precisely, two situations may occur

(i) Either  $U^k \in \mathcal{U}_d(t_k, \eta)$  in which case, the delivery deadline can be respected, therefore, auxiliary optimization may be focused on production cost. This is done hereafter by taking

$$J_a := Q_D, \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = Q_D \quad (I_a := \{1\}) \quad (30)$$

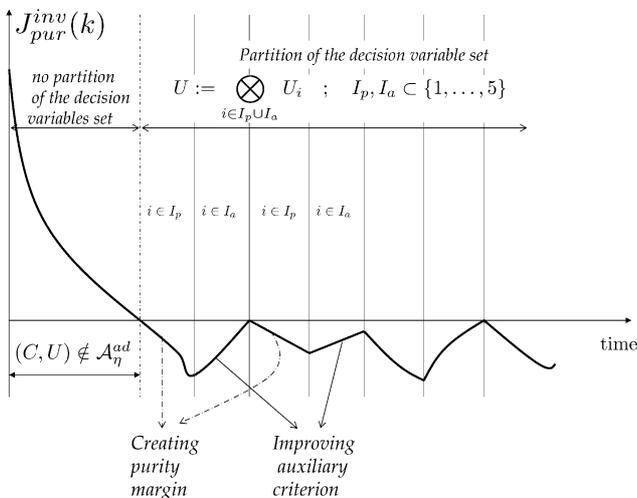


Fig. 2. Schematic view of the control algorithm.

Alternatively, one may be interested in maximizing efficiency by taking

$$J_a := \frac{Q_D}{Q_F}, \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = (Q_D, Q_F)^T \quad (I_a := \{1, 3\}) \quad (31)$$

equivalent straightforward definitions may be easily derived for the case where efficiency is defined by  $Q_D/Q_{\text{raf}}$  or  $Q_D/Q_{\text{ext}}$ .

(ii) Or  $U^k \notin \mathcal{U}_d(t_k, \eta)$  in which case cost consideration is temporarily dropped in favor of maximizing the production rate. In this case, one takes

$$J_a := -(Q_D + Q_F) \quad \bigotimes_{i \in I_a} U_i = (Q_D \ Q_F)^T, \quad I_a := \{1, 3\} \quad (32)$$

The computations to be performed when  $(C(t_k), U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}}$  can now be given as follows:

Make  $N$  iterations

$$(\alpha_i^{(k+1)}, U^{k+1}) \leftarrow \text{Improve}(J^{(i)}, U^k, \alpha_i^{(k)}, i) \quad (33)$$

$$\text{under the constraint } (C(t_{k+1}), U^{k+1}) \in \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}} \quad (34)$$

$$\text{and } U^{k+1} \in \mathcal{U}_d(t_{k+1}, \eta) \text{ if } U^k \in \mathcal{U}_d(t_k, \eta) \quad (35)$$

Apply  $U^{k+1} \leftarrow \Gamma_\rho(U^{k+1})$  when appropriate by computing a convenient  $\rho$  satisfying (26)  
 $i \leftarrow (i \bmod 5) + 1$   
 end

where

$$J^{(i)} := \begin{cases} J_a & \text{if } i \in I_a \\ J_{\text{pur}}^{\text{inv}} & \text{otherwise} \end{cases} \quad (36)$$

where  $J_a$  is given by either (30), (31) or (32) according to the context. Note that the optimization step in (33) is performed under the constraints (34) and (35). In other words, the auxiliary optimization must keep guaranteed all already guaranteed achievements. This is clearly always feasible since keeping the past values is always a candidate option.

A schematic view of the control philosophy is depicted on Fig. 2. Namely, at a first stage ( $(C(t_k), U^k) \notin \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}}$ ), no partition of the decision variables is made and all of them are used to decrease the cost function  $J_{\text{pur}}$ . This is the case (a) of the present section. As soon as  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$  becomes negative ( $(C(t_k), U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}}$  the case (b) is “fired”. In this phase, the decision variables with indices in  $I_p$  are used to create purity margin enabling those with indices in  $I_a$  to decrease the auxiliary cost. It is crucial to note that since the auxiliary cost depends only on the decision variables with indices in  $I_a$  [see (30)–(32)], the auxiliary cost remains unchanged during the purity margin’s creation phases.

### 5.1. Robustness against uncertainties

In order to make the controlled system robust against uncertainties (equivalent void fraction, isotherm coefficients, ...), an integrator effect has to be introduced. This is done using the purity margin  $\eta$ . Note that under free-uncertainty context and for sufficiently long prediction horizon, the property  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}} \leq 0$  is invariant. In other words, if  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$  changes its sign from negative to positive, one must deduce that there are errors on the parameters used in the prediction. In such a case, the purity margin must be increased in order to guarantee the purity requirements achievement. That is why whatever is the active configuration ( $C(t_k, U^k) \in \mathcal{A}_\eta^{\text{ad}}$  or not) the following updating rule is used for  $\eta_k$ :

$$\begin{aligned} &\text{if } (J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(k) > 0 \text{ and } J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(k-1) \leq 0) \text{ then} \\ &\eta_k \leftarrow \eta_k + \delta_\eta \\ &\text{Else} \\ &\eta_k \leftarrow \max\{\eta_{\min}, \gamma\eta_{k-1}\}; \quad \gamma < 1 \\ &\text{Endif} \end{aligned} \quad (37)$$

Where  $\eta_{\min}$  is a minimal purity margin that is used in the nominal configuration.

### 5.2. Some computational issues

In the present section, some computational issues concerning the feedback algorithm presented in Section 5 are clarified. In particular, the role and the updating rules of the trust region parameters  $\alpha_i^k$  are explained.

The solution of (27) [respectively (33)] is based on a  $q$ th order approximation of the cost function  $J_{\text{pur}}$  [respectively  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}$ ] as a function of  $U_i^k$ . This approximation needs  $q$  evaluations and is made on a so called trust region defined by the present value of  $\alpha_i^k$ , namely

$$[U_i^k - \alpha_i^k \delta_i, U_i^k + \alpha_i^k \delta_i] \cap \mathbb{U}_i(U^k) \quad (38)$$

where  $\delta_i > 0$  is some fixed step value and  $\mathbb{U}_i(U^k)$  is the admissible region of the  $i$ th component that is compatible with  $\mathbb{U}$ .

Based on the use of this approximation, a candidate solution  $\hat{U}^{k+1}$  is obtained. If  $J_{\text{pur}}(\hat{U}^{k+1}) < J_{\text{pur}}(U^k)$  [respectively  $J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(\hat{U}^{k+1}) \leq J_{\text{pur}}^{\text{inv}}(U^k)$ ], then the solution is adopted and the trust region is enlarged

$$U^{k+1} \leftarrow \hat{U}^{k+1}, \quad \alpha_i^k \leftarrow \beta^+ \alpha_i^k, \quad \beta^+ > 1 \quad (39)$$

otherwise,  $U^{k+1} = U^k$  and the following updating rule is used to reduce the trust region:

$$\alpha_i^k \leftarrow \max\{\beta^- \alpha_i^k, \alpha_{\min}\}, \quad \beta^- < 1 \quad (40)$$

where  $\alpha_{\min} > 0$  is used to prevent the ‘‘collapse’’ of  $\alpha_i^k$  when the optimal solution is reached. This maintains the reactivity of the control algorithm.

## 6. Illustrative simulations

First of all, it is worth noting that the feedback scheme proposed in this paper is independent of the particular structure of the simulator. The latter is invoked by the feedback algorithm as a black box prediction tool that gives for some control profile the corresponding future evolution.

In this section, some illustrative scenario are simulated in order to assess the efficiency of the proposed strategy. The controller efficiency is tested using two different SMB's with respectively medium and high separation capacities.

### 6.1. Medium separation SMB

#### 6.1.1. The simulation model

The particular model used in this section is based on the use of a cascade of perfectly agitated reactors to model each single column. The number of columns in each section is equal to 5, each column is modelled by 4 reactors in series. Therefore, the total number of reactors used to model the whole SMB is equal to  $n_c = 80$ . A langmuir nonlinear isotherm is used with constants  $K_1 = 0.56$  (cm<sup>3</sup>/g) and  $K_2 = 0.2$  (cm<sup>3</sup>/g) with saturation loading capacities  $qm_1 = qm_2 = 1$  g/cm<sup>3</sup>. Both feed concentrations are equal to 0.05 g/cm<sup>3</sup>. The column diameter, length and void fraction used in the simulations are:

$$D = 3.68 \text{ cm}, \quad L = 53.6 \text{ cm}, \quad \epsilon = 0.45$$

The nominal flow rates are those appearing at the initial instant on Fig. 3. The switching time is 30 s.

Consequently, a system of 160 first order ODE's is obtained that is solved by LSODA implemented in FORTRAN 90 code.

#### 6.1.2. The controller parameters

The saturation level  $U_i^{\text{max}} = 0.15$  cm<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> on the flow rates is used. The number of iterations per switching period  $N = 1$  is applied in order to carry on to its limit the distributed in time optimization principle. The basic incremental values

$$\delta = (0.005, 0.005, 0.005, 0.0025, 2.5)^T$$

are used in (38). In (37), updating  $\eta_k$  is done using  $\delta_\eta = 0.005$ ,  $\eta_{\min} = 0.001$  and  $\gamma = 0.95$ . Finally, the pair  $(\beta^+, \beta^-) = (2, 0.5)$  is used in (39) and (40) to update the trust region coefficient  $\alpha_i$ .

#### 6.1.3. Simulations

Two different scenario have been simulated for this medium separation SMB.

**6.1.3.1. Scenario 1 (Figs. 3–5): startup and step change in the desired purities.** Efficiency related auxiliary cost:  $J_\alpha := \frac{Q_D}{Q_F}$ . The system is initially with uniform

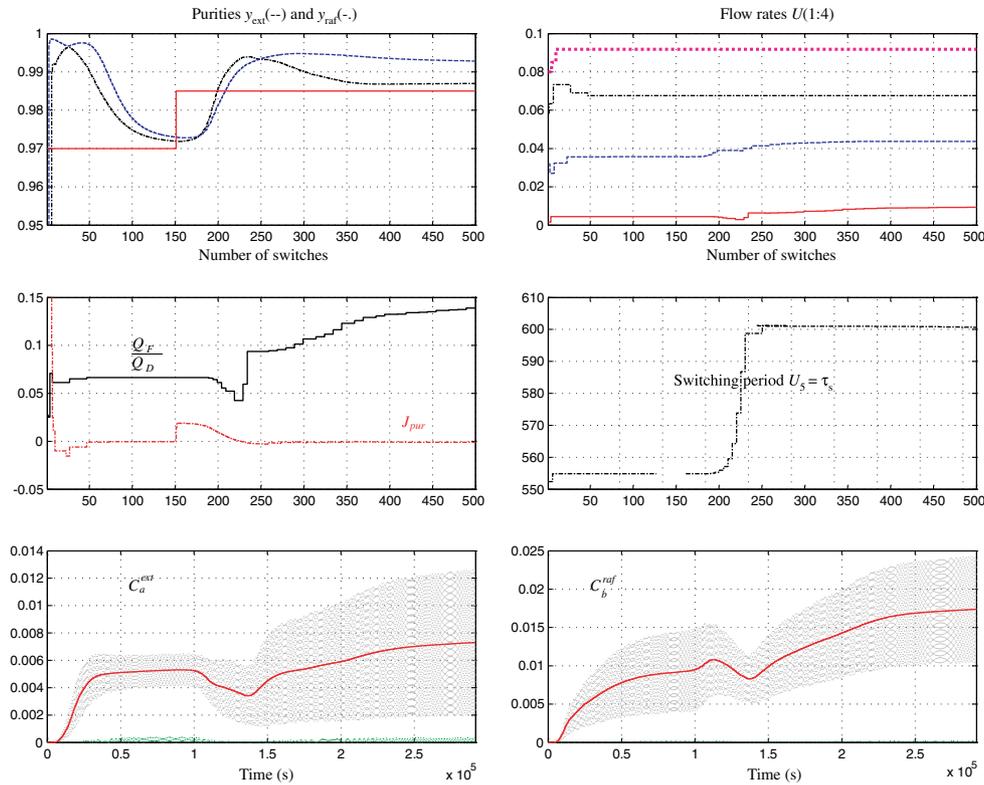


Fig. 3. Response of the controlled SMB to a step change of the desired purities  $y_d$ :  $y_d$  changes at  $k = 150$  from  $(0.97, 0.97)$  to  $(0.99, 0.99)$ .

concentrations close to 0 ( $C \equiv 0.001$  everywhere). A first step  $y_d = (0.97, 0.97)$  is applied and after 150 switching periods, a step change is applied to require purities  $y_d = (0.985, 0.985)$ . Fig. 3 shows plots related to this experiment. The purities evolution and the flow rates are shown on the two top plots. Note in particular that the initial values of the flow rates was not appropriate. This can be particularly seen on the  $J_{pur}$  evolution (plot(2,1) of Fig. 3) where it can be observed that the initial value of  $J_{pur}$  is highly positive indicating that the mean steady state regime corresponding to the initial values of the flow rates and the switching time (the control  $U$ ) does not satisfy the purity requirement  $y_d = (0.97, 0.97)$ . The auxiliary cost function  $J_a$  used in this experiment is  $J_a = Q_D/Q_F$ . The evolution of the efficiency ratio  $Q_F/Q_D$  is shown on the plot(2,1) of Fig. 3. This shows how the feedback algorithm increases this ratio as soon as the purity requirements are guaranteed. This ratio may however decrease on transient periods where these purities are not guaranteed, for instance in the transient following the step change in the purities (between  $k = 150$  and  $k = 230$ ), and then increases as soon as the closed-loop retrieves guarantee of purities achievement. The two bottom figures also show the role of the yield related weighting term in (22) and (23) in increasing the corresponding yield. Note that the two bottom figures show the cyclic behavior as well as the corresponding mean values over the switching period.

The evolution of the trust region parameters  $(\alpha_i)_{i=1}^5$  is depicted on Fig. 4. From this figure, it can be inferred that before the step change at  $k = 150$ , a local minimum has been reached since all the trust region parameters tend to 0 since no better solution can be found in the neighborhood of the one already found. As soon as a step change in the desired purities is applied, these parameters “wake up” to modify the control value in order to meet the new requirements.

Finally, Fig. 5 shows a zoom on the evolution of the purity related cost functions  $J_{pur}$  and  $J_{pur}^{inv}$ . Note first that  $J_{pur}$  reaches the negative values before  $J_{pur}^{inv}$  since it is exclusively concerned by the final mean steady values of the purities while  $J_{pur}^{inv}$  needs the whole purities from the current instant to “infinity” to satisfy the purity requirements. The chattering behaviour schematically depicted in Fig. 2 can be clearly observed where  $J_{pur}$  (and  $J_{pur}^{inv}$ ) alternatively decreases and increases according to the nature of the decision variable being optimized leading to either purity margin creation or to decreasing the auxiliary cost (see Fig. 2).

**6.1.3.2. Scenario 2 (Fig. 6): startup and unmeasured step change in the void fraction. Robustness against parameter uncertainties. Efficiency related auxiliary cost:**  $J_a := \frac{Q_D}{Q_F}$ . The first 150 switching periods are the same as those of the preceding scenario. At  $k = 150$ , instead of a step change in the required purities, an unmeasured

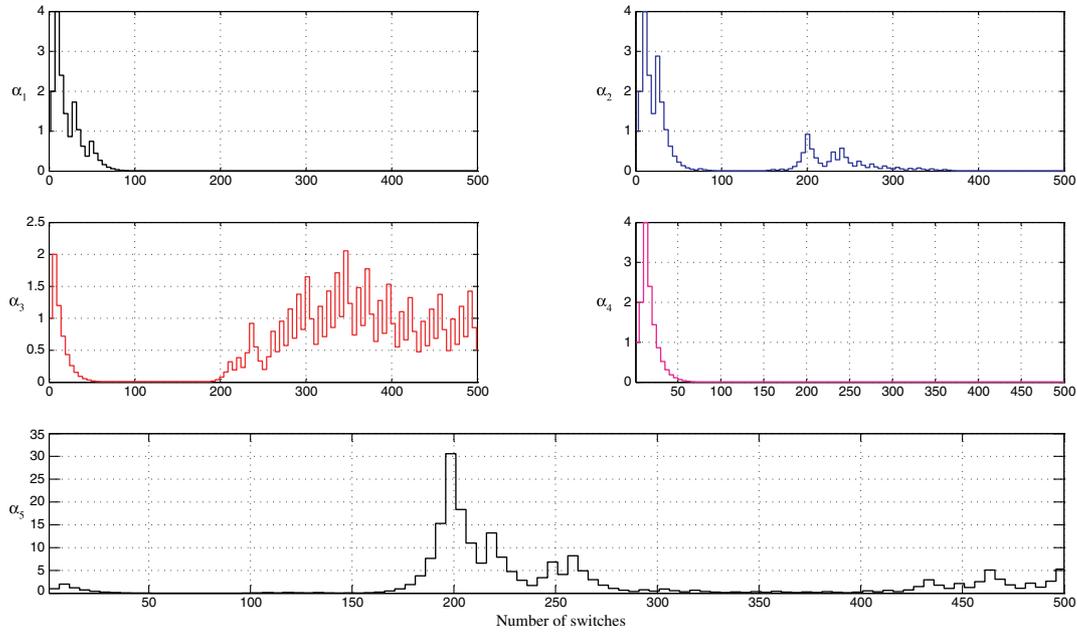


Fig. 4. Evolution of the trust region parameters  $\alpha_i$  during the experiment depicted in Fig. 3.

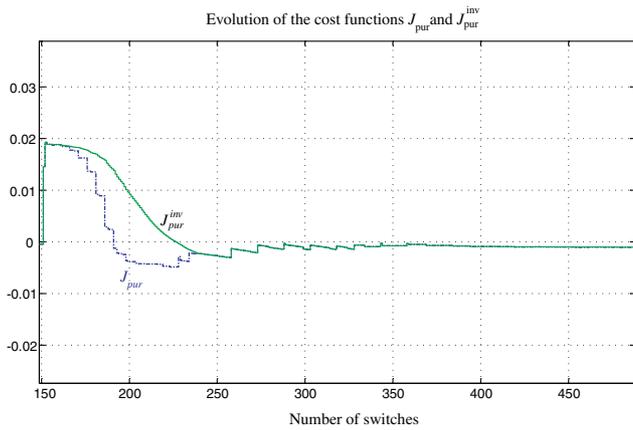


Fig. 5. Zoom on the cost functions evolution after the step change in the desired purity  $y_d$ .

(−10%) step change in the void fraction  $\epsilon$  is applied in order to test the robustness of the closed-loop system to parameter uncertainties. Plot(1,1) of Fig. 6 also shows the behaviour of the system if open-loop control is used after  $k = 150$ . This enables to evaluate the effect of the parameter uncertainties on the purities that would have been obtained in the absence of feedback. Note that the controller reacts in order to maintain the required purities in spite of the error in the parameter it uses. On the other hand, the auxiliary efficiency criterion as well as the yield is still increased despite the error on the key parameter  $\epsilon$ . Note however that this increase is no more monotonic since the condition  $J_{\text{pur}} \leq 0$  is no more invariant and the controller swings between periods where the primary purity requirements are looked for and periods where the auxiliary cost function is

decreased. This can be viewed on the plot (2, 1) of Fig. 6 where it can be observed that  $J_{\text{pur}}$  oscillates around 0. Comparable results were obtained when simulating the system reaction to uncertainty of +15% on the Langmuir coefficients  $K_1$  and  $K_2$ . Simulations were not reported for lake of space.

## 6.2. High separation nonlinear SMB

### 6.2.1. The simulation model

In this section, a high purity dedicated nonlinear SMB is used. Finite difference scheme is used to solve the system convection diffusion PDE's. Here, the Langmuir coefficients belong to a difficult chromatographic separation task ( $K_1 = 2 \text{ cm}^3/\text{g}$ ,  $K_2 = 1.5 \text{ cm}^3/\text{g}$ ), the saturation level capacities  $q_{m_1} = q_{m_2} = 1 \text{ g}/\text{cm}^3$  are taken. Both feed concentrations are equal to  $0.005 \text{ g}/\text{cm}^3$ . Two columns per section have been used with 20 nodes per columns for the finite difference scheme. This leads to a system with 320 state variables. The SMB parameters are the following

$$D = 5 \text{ cm}, \quad L = 50 \text{ cm}, \quad \epsilon = 0.4$$

The nominal flow rates are taken equal to the central values with respect to the minimal and maximal values defined hereafter. The nominal switching time is 30 s.

### 6.3. The controller parameters

The values of  $U_{\text{min}}$  and  $U_{\text{max}}$  have been taken as follows:

$$U_{\text{max}} = (117 \ 82 \ 6 \ 128 \ \text{cm}^3 \ \text{s}^{-1} \ 33 \ \text{s})$$

$$U_{\text{min}} = (95 \ 68 \ 5 \ 105 \ \text{cm}^3 \ \text{s}^{-1} \ 27 \ \text{s})$$

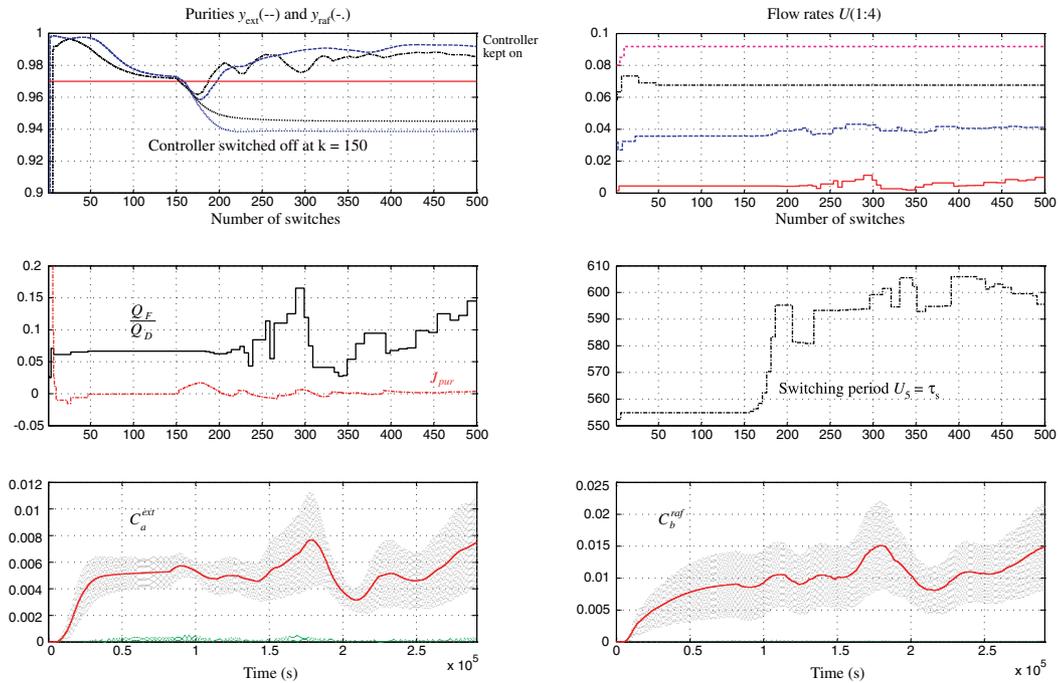


Fig. 6. Response of the controlled/uncontrolled SMB to a unmeasured  $-10\%$  step change of the void fraction  $\varepsilon$ .

the values of the  $\delta'_i$ s was taken equal to  $1\%$  of the central value for each  $U_i$ . The parameters  $\beta^+ = 1.8$ ,  $\beta^- = 0.7$ ,  $\eta_{\min} = 0.001$  and  $\gamma = 0.95$  have been used.

6.3.1. The simulations

Three scenario have been tested in order to assess the basic claims of this paper:

- (1) Constant desired purities with changes in the fired auxiliary cost (Fig. 7).

The aim here is to assess the flexibility of the proposed scheme and its reactivity to sudden changes in the auxiliary cost function. The desired high purities are fixed at  $y_d = (0.992, 0.997)$ . The auxiliary cost is  $J_a = Q_D/Q_{\text{ext}}$  over the first 500 switches (Phase 1 on Fig. 7),  $J_a = Q_F/Q_{\text{ext}}$  during the next 500 switches (Phase 2 on Fig. 7) while the maximum flow rate cost  $J_a = Q_D + Q_F$  is used during the last phase (Phase 3 on Fig. 7).

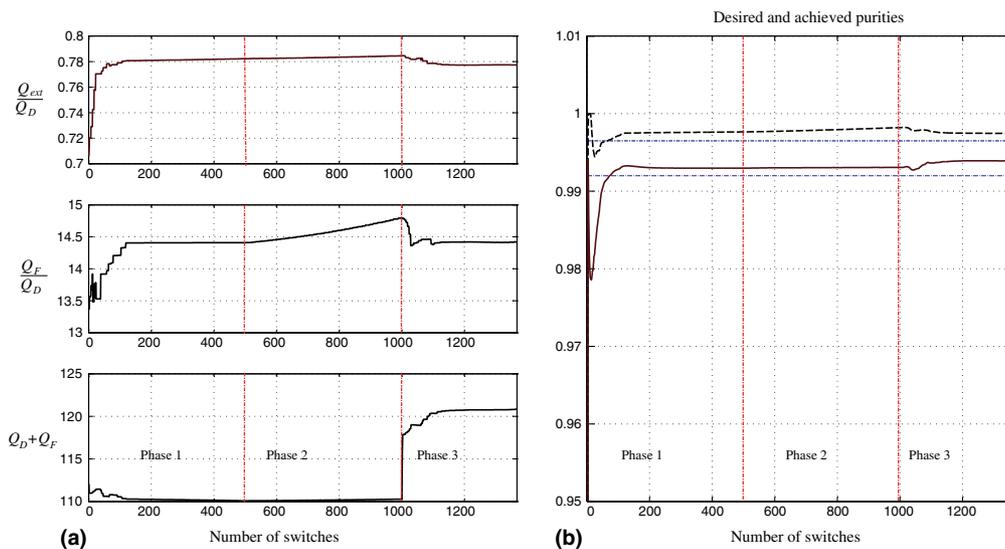


Fig. 7. Scenario 1, High separation SMB. (a) The purities and their set point  $y_d = (0.992, 0.997)$ . (b) The different cost functions fired at different instants during the scenario. Note how the controller takes into account the sudden changes in the fired auxiliary cost and increases appropriately the corresponding value while keeping the purities above the required set-points.

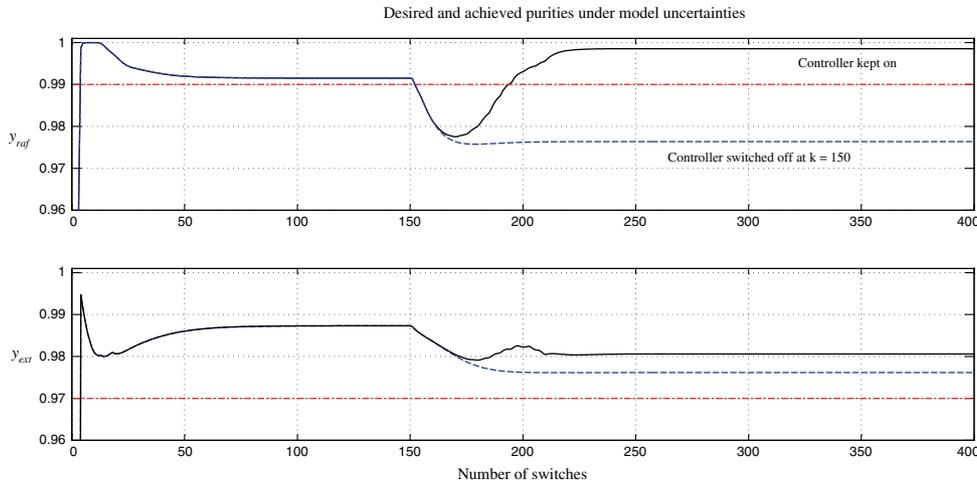


Fig. 8. Behaviour of the closed loop system (continuous line) and the system with the controller switched off after the 150th switch (dotted line) in the presence of +1.8% unmeasured step change of the Langmuir coefficients.

Note how the controller takes into account the sudden changes in the fired auxiliary cost and increases appropriately the corresponding value while keeping the purities above the required set-points.

- (2) Robustness against model uncertainties (Fig. 8). In this scenario, a small error (+1.8%) on both Langmuir coefficients  $K_1$  and  $K_2$  is introduced, namely, the true system is more sensitive than the one used by the controller. Fig. 8 shows how the closed loop system retrieves the specified purities. The plots show the response that would be obtained if the controller was switched off just after the 150th switch where the step on model error is introduced. This shows the high sensitivity of such high separation SMB to model uncertainties and suggests to use some on-line identification scheme in conjunction with the proposed control

strategy. Note that during this simulation, the related auxiliary cost function  $J_a = \frac{Q_D}{Q_{ext}}$  is used.

- (3) Successive setpoint changes in the desired purities. Finally, Fig. 9 shows how the controller improves the auxiliary cost when decreasing steps are applied on the one of the desired purities.

### 7. Conclusion

In this paper, a nonlinear model predictive control is proposed for the control of a simulated moving bed with highly nonlinear isotherm. The key feature of the proposed scheme is that the optimization is distributed on the plant life time according to the available computation time. Furthermore, several performance indexes may be easily handled and online changed according to the production scheduling context. Simulations show good robustness of the closed-loop system against uncertainties on the system parameters (void fraction, isotherm coefficients). No a priori knowledge of the optimal profile is needed since the feedback scheme is not based on regulation around some pre-computed trajectories. However, any such knowledge may be easily included in the feedback initialization to improve its performance. The feedback scheme may be applied to a wide class of processes since only the “black box” prediction of the future behavior is needed for the feedback implementation. Note however that for highly sensitive SMB, the proposed control scheme (as any other one) has to be coupled with an on-line parameter identification. The robustness of any feedback approach with such systems reaches its limit.

### References

[1] H. Schramm, S. Gruner, A. Kienle, Optimal operation of simulated moving bed chromatographic processes by means of

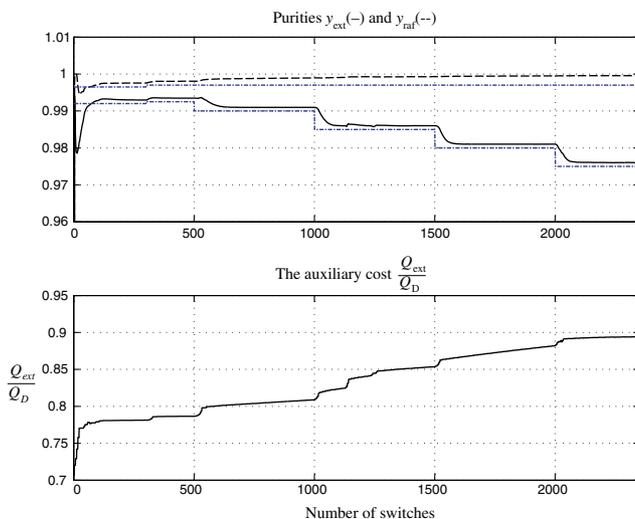


Fig. 9. Response of the controlled SMB to different references.

- simple feedback control, *Journal of Chromatography A* (1006) (2003) 3–13.
- [2] E. Kloppenburg, E.D. Gilles, Automatic control of the simulated moving bed process for  $C_8$  aromatics separation using asymptotically exact input/output linearization, *Journal of Process Control* 9 (1999) 41–50.
- [3] S. Abel, G. Erdem, M. Mazzotti, M. Morari, M. Morbidelli, Optimizing control of simulated moving beds-linear isotherm, *Journal of Chromatography A* (1033) (2003) 229–239.
- [4] N. Seshatre, J.H. Lee, Repetitive model predictive control applied to a simulated moving bed chromatography system, *Computers and Chemical Engineering* 24 (2000) 1127–1133.
- [5] U.K. Klatt, F. Hanisch, G. Dunnebier, Model-based control of a simulated moving bed chromatographic process for the separation of fructose and glucose, *Journal of Process Control* 12 (2002) 103–219.
- [6] A. Toumi, S. Engell, Optimization-based control of a reactive simulated moving bed process for glucose isomerization, *Chemical Engineering Science* 43 (14) (2004) 3895–3907.
- [7] D.Q. Mayne, J.B. Rawlings, C.V. Rao, P.O.M. Scokaert, Constrained model predictive control: Stability and optimality, *Automatica* 36 (2000) 789–814.
- [8] M. Mangold, G. Lauschke, J. Schaffner, M. Zeitz, E.-D. Gilles, State and parameter estimation for adsorption columns by nonlinear distributed parameter state observers, *Journal of Process Control* 4 (3) (1994) 163–172.
- [9] M. Almir, J.P. Corriou, Nonlinear receding horizon state estimation for dispersive adsorption columns with nonlinear isotherm, *Journal of Process Control* 13 (6) (2003) 517–523.
- [10] L. Robertson, J.B. Rawlings, A moving horizon-based approach for least-squares estimation, *AIChE* 42 (8) (1996) 2209–2224.
- [11] J.P. Corriou, M. Almir, A hybrid nonlinear state observer for concentration profiles reconstruction in nonlinear simulated moving beds, *Journal of Process Control*, in press, doi:10.1016/j.jprocont.2005.07.002.

# Diagnosis and on-line parametric estimation of simulated moving bed

Bilal YOUSSEF, Mazen ALAMIR, and Fadi IBRAHIM

**Abstract**— In this paper, a recently developed graphical signatures generation tool is used for diagnosis and on-line parametric estimation of simulated moving bed (SMB). The underlying diagnosis problem corresponds to variations affecting four of system's parameters, namely, the two Langmuir coefficients, the extract and the feed flow rates. It is shown that this diagnosis method enables detection, isolation and parameter estimation even under simultaneous faults. Comparison with a simple least squares approach shows that the proposed approach needs drastically less iterations and therefore corresponds to a fast estimation results.

**keywords:** Diagnosis, parameters estimation, nonlinear dynamics, signature generation, multiple faults.

## I. INTRODUCTION

The Simulated-Moving-Bed (SMB) is an efficient counter-current separation process that is extensively used in the process industry. The SMB has been studied in the literature concerning different aspects including design, modelling and simulation [7], [10], [19], optimization for selection of optimal operating conditions and respect of operating constraints, control [22], [8], [23], [15], [17] and state observers design [20], [16], [2]. All these studies clearly show that the performances of a high separation **SMB** are extremely sensitive to variations in the system's parameters. Consequently, model based approaches in control as well as in state observer design need a very good knowledge of these parameters. Key parameters in **SMB** are the isotherm coefficients and the flow rates realized at the input and output ports. Monitoring variations and/or fault affecting these parameters is linked to what is commonly known as fault detection and isolation or more shortly, on line diagnosis.

Diagnosis includes fault detection and isolation (FDI). By fault detection, one means that a faulty behaviour symptoms have been detected while isolation amounts to identify the precise fault configuration leading to these symptoms. In the FDI literature, faults are often modeled as additional terms in a state-space model. This is a reasonable approach for most sensor and actuator faults, but it is not the case for faults in the system itself. An alternative approach consists in modeling faults as change in systems parameters. The problem of FDI thus amounts to the detection and isolation of parameter change in a model. This more versatile approach is adopted in this paper.

Various approaches have been proposed for the design of FDI algorithms in the literature. Among them, the observer based methods [30], [14], [21], [24], [9], [13]. Analytical redundancy can also be used in an algebraic framework in order to detect variations on parameters [28], [27], [1], [11]. Fuzzy logic-based schemes may be invoked through parity equations [26], [29], [18], [12]. Statistical and local approaches based on signal processing and statistical properties monitoring have been proposed [4], [6], [5], [33], [3] as well as methods based on the wavelets transformation [25] that can generically be applied to detect singular behaviors based on the spectral content of the measured signals.

In the present paper, a recently developed [31], [32] signature-based methodology is used to derive a diagnosis tool for the Simulated moving bed. The signature based methodology proposed in [31], [32] uses a general signature generation algorithm to yield a diagnosis procedure by means of the following three steps :

**Step 1: Generating signatures.** In this first step, a family of  $2D$  graphical signatures is generated for nominal and faulty configurations. This is done using the physical simulation model in which variations on the parameters are introduced. Furthermore, several parameterizations of the signature generation tool are used in order to enhance detection and isolation capacity.

**Step 2: Signature analysis.** In this second step, the high classification ability of human brain is used to analyse the signatures produced in the first step. The way variations on parameters induce signature deformations is analyzed in order to define relevant GEOMETRICAL residuals. This step may invoke the first one in order to produce additional signatures enabling detection and isolation to be performed.

**Step 3: Definition of mathematical residuals.** Once a relevant set of geometrical residuals is defined in Step 2. A mathematical translation is then performed in order to derive mathematical residuals that can be used in an on-line diagnosis framework.

The above three-steps diagnosis design strategy is applied in this paper to yield a diagnosis algorithm for the simulated moving bed **SMB** diagnosis problem.

The paper is organized as follows. The **SMB** system model is presented in section II and the diagnosis problem under interest is clearly stated. Section III recalls the technique based on graphical signature [31] for the fault

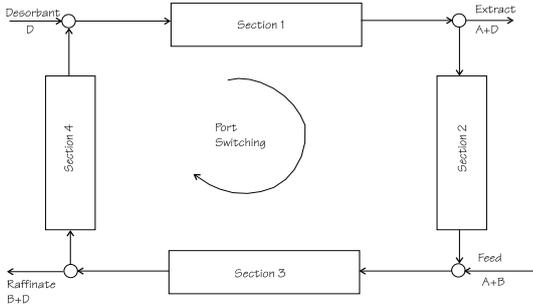


Fig. 1. Schematic view of a simulated moving bed

detection and isolation of dynamical systems which is used. Application of this methodology to the **SMB** diagnosis problem is presented in section IV. Section V shows how one can estimate the values of parameters using an automatic on-line SMB parametric estimation. A comparison with a simple least squares approach is done in Section VI. The paper ends with a conclusion.

## II. THE SIMULATED MOVING BED DIAGNOSIS PROBLEM

A simulated-moving-bed (**SMB**) chromatographic system (see Figure 1) is obtained by connecting several single chromatographic columns in series to form four functional sections. A countercurrent movement of the bed is simulated by periodically switching the inlet and outlet ports in the direction of the fluid stream. The aim of the whole system is to separate the components  $A$  and  $B$  initially present in the inlet feed stream. In the case of the SMB shown in Figure 1, component  $A$  is recovered at the outlet of section 1 while component  $B$  is recovered at the outlet of section 3. The flow rates of the fluid stream in the different four sections can be controlled by varying the four independent flow rates: recycle, extract, raffinate and desorbent. Assuming a fast transfer of species  $A$  and  $B$  between the the two phases, the system behaviour in each section may be described by the following PDE's

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} c_A \\ c_B \end{pmatrix} = Q(c_A, c_B) \left[ D_{ax}(u) \frac{\partial^2}{\partial x^2} \begin{pmatrix} c_A \\ c_B \end{pmatrix} - u \frac{\partial}{\partial x} \begin{pmatrix} c_A \\ c_B \end{pmatrix} \right] \quad (1)$$

where  $u$  is the fluid velocity in the considered section. Therefore, four velocities  $u_i$ 's are to be considered that can be computed from the four flow rates at inlet/outlet ports using classical incompressibility assumption.  $D_{ax}(u)$  is the diffusion coefficient while the matrix  $Q(c_A, c_B) \in \mathbb{R}^{2 \times 2}$  is given by

$$Q(c_A, c_B) := \begin{pmatrix} 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \frac{\partial q_A^{eq}(c)}{\partial c_A} & \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \frac{\partial q_A^{eq}(c)}{\partial c_B} \\ \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \frac{\partial q_B^{eq}(c)}{\partial c_A} & 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \frac{\partial q_B^{eq}(c)}{\partial c_B} \end{pmatrix}^{-1}$$

where  $q_j^{eq}(c_A, c_B)$  expresses the Langmuir competitive isotherm given by :

$$q_j^{eq}(c_A, c_B) := \frac{K_j c_j}{1 + K_A c_A + K_B c_B} \quad ; \quad j \in \{A, B\} \quad (2)$$

Different isotherms can be used according to the components to be separated, however, the competitive Langmuir isotherm is a quite general and efficient law that can be used to

model the separation of many multivariate mixtures.

The performances of the Simulated moving bed are very sensitive to variations on  $K_A$ ,  $K_B$  and to errors (offset, drift) on the inlet/outlet flow rates. In this paper, a recently developed signature based diagnosis tool [31] is applied to detect and isolate even simultaneous variations on the Langmuir coefficients  $K_A$ ,  $K_B$  and the feed and extract flow rate  $q_{feed}$  and  $q_{ext}$ . This is done using a vector  $y_m$  of some measured outputs, namely, the concentrations of the components  $A$ , and  $B$  at the inlet and outlet ports:

$$y_m = ( y_1 \quad y_2 \quad y_3 \quad y_4 ) \quad (3)$$

$y_1$ ,  $y_2$  are the concentrations (at the extract) of components  $A$  and  $B$  respectively.  $y_3$  is the concentration of component  $A$  at the feed extract while  $y_4$  is the concentration of component  $B$  at the desorbent inlet port.

The **SMB** diagnosis problem considered in the present paper may be stated as follows: Design an algorithm that uses the measurements vector (3) to detect and isolate any even simultaneous variations in the parameter vector

$$(K_B \quad K_A \quad q_{ext} \quad q_{feed}) \in \mathcal{K} \subset \mathbb{R}^4$$

where  $\mathcal{K}$  is a domain of interest containing realistic values of the above parameters.

It goes without saying that the problem at hand can a priori be solved using least squares optimisation, namely, by finding the parameter values that minimise the integral of the squared measurement prediction error over the admissible domain. It has been shown however that the graphical residual definition step performed by the human eye in the first step defined above leads to a kind of decoupling or "coordinate change" that makes the signature based diagnosis more efficient than simple least squares methods in terms of the number of iterations needed to obtain a good solution. Comparisons are given in section VI to assess this claim.

Since in each iteration, the system has to be simulated over a long time horizon, reducing the number of iterations automatically leads to shorter response time. This feature enabled an on-line application of the signature based methodology to the problem of diagnosis and parameter estimation of an automotive electronic throttle control system [32].

The aim of the present paper is to show that the same generic methodology applies to the SMB diagnosis problem defined above.

## III. DIAGNOSIS BY GRAPHICAL SIGNATURE

The starting point of this method is the known fact that "human eyes through the underlying brain activity" is able

to accomplish high complexity classification tasks. This high classification ability needs however to be applied to some pattern. The aim of this method is to propose output-measurement-based generated patterns that are called signatures.

More precisely a map from a high dimensional space to which belong the vector of past measurements over some moving time-window to  $\mathbb{R}^2$  is defined. When applying this map to a moving-horizon past measurements, one obtains a bi-dimensional curve. Now, if for each faulty scenario, the "corresponding signature" differs from the nominal one in a distinguishably different way, from a human eye "viewpoint" then the graphical tool may be used in the context of fault detection and even isolation under certain assumptions.

In order to clearly summarize the signature generation algorithm proposed in [31] and used hereafter to solve the **SMB** diagnosis problem, some definitions and notations are needed. This is the aim of the following section.

#### A. Some definitions and notations

The definitions given here refer to the case of one-dimensional output measurement. To this respect, each of the three components of  $y_m$  given by (3) is used to generate a different signature.

##### 1) The normalization function $N_\varepsilon$ :

Consider a scalar output  $y$  that is measured with some sampling rate. The vector of past measurements  $y(t_1), \dots, y(t_N)$  is then used to construct a measurement vector  $Y$ . A normalization map is then applied to  $Y$  in order to obtain components that lie in  $[-1, 1]$ , namely

$$N_\varepsilon : \mathbb{R}^N \rightarrow \mathbb{R}^N ; N_\varepsilon(Y) = \bar{Y} = \frac{Y}{\|Y\|_\infty + \varepsilon} \quad (4)$$

where  $\varepsilon > 0$  is some small regularizing coefficient while  $\|Y\|_\infty$  is given by:  $\|Y\|_\infty = \max |Y_i|_{i=1}^N$

##### 2) Definition of a pencil $P_\varepsilon$ :

A pencil is a map  $P_\varepsilon : \mathbb{R}^N \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}^2$  that associates to each element  $(Y, y)$  of  $\mathbb{R}^N \times \mathbb{R}$  (a set of  $N + 1$  measurements) a point in the bi-dimensional plane:

$$P_\varepsilon : \mathbb{R}^N \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}^2$$

$$(Y, y) \rightarrow \Phi_0(\bar{Y}) + \lambda_\varepsilon(\bar{Y}, y)[\Phi_1(\bar{Y}) - \Phi_0(\bar{Y})]$$

where:  $\lambda_\varepsilon(\bar{Y}, y) = \frac{y}{\|\bar{Y}\|_\infty + \varepsilon} - \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \bar{Y}_i,$

$$\Phi_0(\bar{Y}) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \Psi_j(\bar{Y}); \Phi_1(\bar{Y}) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \bar{Y}_j \Psi_j(\bar{Y}),$$

$$\Psi_i(\bar{Y}) = \frac{1}{2} [(1 + \bar{Y}_i)Q_{(i+1|N)} - (\bar{Y}_i - 1)Q_i],$$

$$Q_i : \text{image}(e^{2j(i-1)\frac{\pi}{N}}) ; j^2 = -1.$$

$(Q_i)_{i=1}^N$  are the  $N$  nodes of a regular  $N$ -dimensional polygone in  $\mathbb{R}^2$ ,  $(i+1|N) = (i+1) \text{Modulo } N$ . Figure 2 shows

an example of the preceding definitions in the case where:  $N = 6$ ,  $\bar{Y} = (0, 0.5, -0.5, 0.25, -0.25, 0)^T$ .

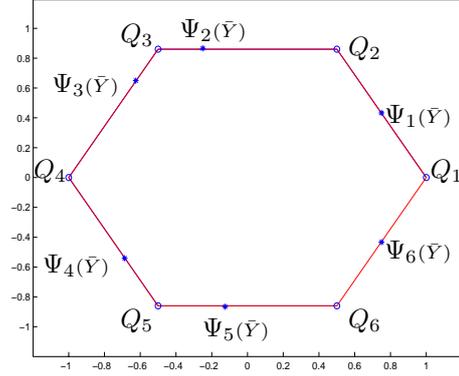


Fig. 2. Example of definitions of  $\Psi(\bar{Y})$ .

Note that  $\Phi_0(\cdot)$  and  $\Phi_1(\cdot)$  clearly define two points in the two-dimensional plan that are respectively the non weighted center of mass of the  $\Psi_i(\bar{Y})$  and the weighted c.o.m with  $Y_i$  as weights.  $P_\varepsilon(Y, y)$  is a point on the line  $\overline{\Phi_0\Phi_1}$  with relative position defined by  $y$ . See [31] for more details.

#### B. Dynamical signature generation

Let us denote by  $\delta$  the sampling time for measurements acquisition and define the following vector:

$$Y(t, N) = [y(t - N\delta), \dots, y(t - \delta)]^T \in \mathbb{R}^N \quad (5)$$

Using a moving window of width  $N$  from measurements  $[y(t - i\delta)]_{i=0}^{m-1+N}$  and the pencil  $P_\varepsilon$  defined above, the following points in the 2D plane can be defined:

$$P_i(t, N) = P_\varepsilon(Y(t - (i-1)\delta), N),$$

$$y(t - (i-1)\delta) \quad i = 1 \dots m \quad (6)$$

$(P_i(t, N))_{i=1}^m$  define  $m$  points in  $\mathbb{R}^2$  which constitute the two-dimensional signature  $S_\varepsilon(t, N)$  at time  $t$ . Analytically,  $S_\varepsilon(t, N)$  can be written as follow:  $S_\varepsilon(t, N) = (S_\varepsilon^x, S_\varepsilon^y)$  where  $S_\varepsilon^x = (P_1^x(t, N) \dots P_m^x(t, N))^T$  and  $S_\varepsilon^y = (P_1^y(t, N) \dots P_m^y(t, N))^T$ . Note that Different signatures can be obtained by modifying the value of  $N$  which will be called signature order.

#### IV. APPLICATION TO THE SIMULATED MOVING BED

In this section, the signature generation tool is used to solve the **SMB** diagnosis problem stated in section II. According to the definition of the signature, one degree of freedom can be modified to be useful in diagnosis, namely, the signature order  $N$ . By taking 80 measurements of  $y_1, y_2, y_3$  and  $y_4$  with a sampling period of  $2s$  that is a moving window of  $160s$ , one generates four dynamical signatures:  $S_1 = S_\varepsilon(t, 20)$  generated from  $y_4$  measurements,  $S_2 = S_\varepsilon(t, 36)$  generated from  $y_1$  measurements,  $S_3 = S_\varepsilon(t, 15)$  generated from  $y_3$  measurements and  $S_4 = S_\varepsilon(t, 5)$  (without

normalisation,  $\|Y\|_\infty = 1$ ) generated from  $y_2$  measurements. Using these signatures, one could detect isolate and estimate all even simultaneous variations of the four considered parameters  $K_B$ ,  $K_A$ ,  $q_{ext}$  and  $q_{feed}$  within the prescribed regions given in table 1. As it is shown in the following section, SMB diagnosis is done in the following order:  $K_B$ ,  $K_A$  and then  $q_{ext}$ ,  $q_{feed}$ .

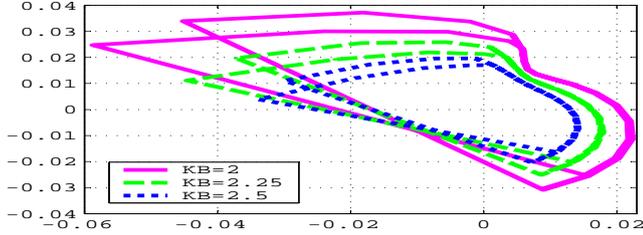


Fig. 3. Sensitivity of the signature  $S_1$  to variations on  $K_B$ ,  $(K_A, q_{ext}, q_{feed}) = (1.5, 7.514 \times 10^{-5}, 0.562 \times 10^{-5})$ .

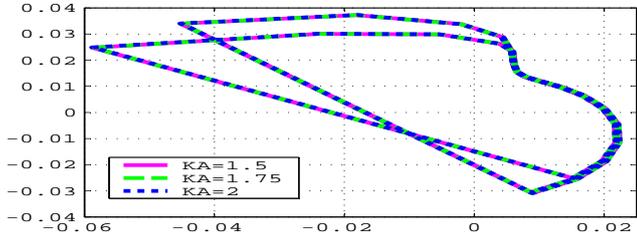


Fig. 4. The signature  $S_1$  is insensitive to variations on  $K_A$ ,  $(K_B, q_{ext}, q_{feed}) = (2, 7.514 \times 10^{-5}, 0.562 \times 10^{-5})$ .

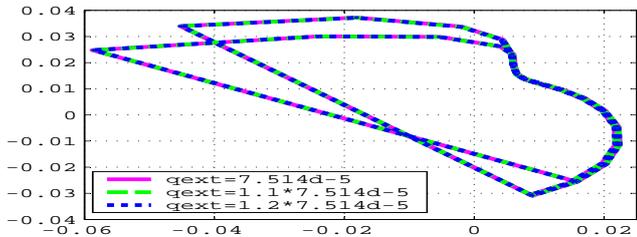


Fig. 5. The signature  $S_1$  is insensitive to variations on  $q_{ext}$ ,  $(K_B, K_A, q_{feed}) = (2, 1.5, 0.562 \times 10^{-5})$ .

#### A. Detection of variations on $K_B$

The *allure* of the signature  $S_1$  in the case of variations affecting  $K_B$  under nominal values of  $(K_A, q_{ext}, q_{feed})$  is illustrated on figure 3. It is easy to notice that when  $K_B$  decreases, the *allure* of the signature  $S_1$  lengthens. Now, the interesting question is: How does this property (residual ... ?) changes when the other parameters vary ?

Figures 4,5, 6 show that the signature  $S_1$  is insensitive to variations on the other parameters, thus one can use this

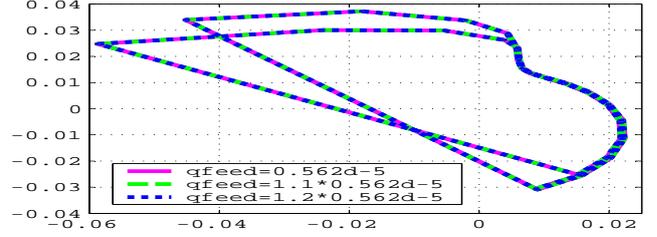


Fig. 6. The signature  $S_1$  is insensitive to variations on  $q_{feed}$ ,  $(K_B, K_A, q_{ext}) = (2, 1.5, 7.514 \times 10^{-5})$ .

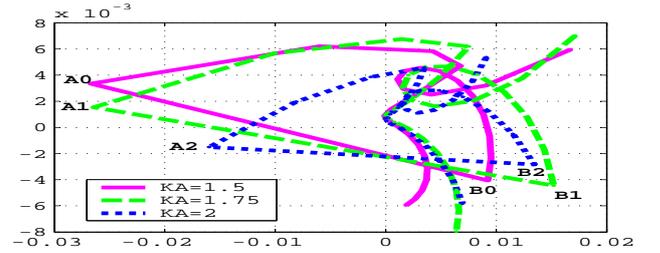


Fig. 7. Sensitivity of the signature  $S_2$  to variations on  $K_A$ ,  $(K_B, q_{ext}, q_{feed}) = (2, 7.514 \times 10^{-5}, 0.562 \times 10^{-5})$ .

signature to detect, isolate and estimate variations on  $K_B$  without knowing the other parameters. Note that interesting points of  $S_1$  are clearly those corresponding to minimal or maximal values for x-coordinate. Consequently the mathematical, say residual  $r_{kb}$  which allows us to detect, isolate and estimate variations on  $K_B$  can be written as follow:

$$r_{kb}(t) = \min[S_1^x] \quad (\text{or} \quad r_{kb}(t) = \max[S_1^x]).$$

#### B. Detection of variations on $K_A$

The *allure* of the signature  $S_2$  in the case of variations affecting  $K_A$  under nominal values of  $(K_B, q_{ext}, q_{feed})$  is illustrated on figure 7. It is clear that when  $K_A$  increases, the *slope* of the line  $A_i B_i$  of the signature  $S_2$  decreases. Interesting points of  $S_2$  are those corresponding to minimal values for x-coordinate ( $A_i$ ) and those corresponding to maximal absolute values for second derivative  $|\frac{d^2 S_2^y}{dS_2^x}|$  such as  $S_2^x > 0$  ( $B_i$ ) and consequently  $K_A$ -estimation can be done using these points. Note that this property of  $S_2$  is

TABLE I  
SMB SYSTEM FAULTS  
DOMAINE OF VARIATIONS OF THE PARAMETERS ( $\mathcal{K}$ ).

No.	Description	Parameter	Interval
1	Langmuir coefficient	$K_B$	[2 2.4]
2	Langmuir coefficient	$K_A$	[1.5 2]
3	Extract flow rate	$q_{ext}$	$[7.51 \times 10^{-5} \quad 9.02 \times 10^{-5}]$
4	Feed flow rate	$q_{feed}$	$[0.56 \times 10^{-5} \quad 0.68 \times 10^{-5}]$

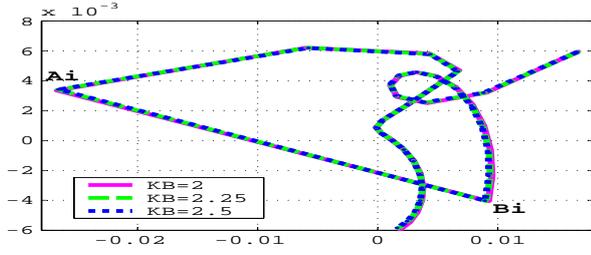


Fig. 8. The slope of the lines  $A_i B_i$  of the signature  $S_2$  is insensitive to variations on  $K_B$ ,  $(K_A, q_{ext}, q_{feed}) = (1.5, 7.514 \times 10^{-5}, 0.562 \times 10^{-5})$ .

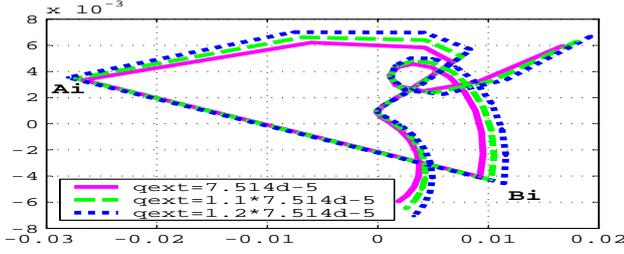


Fig. 9. The slope of the lines  $A_i B_i$  of the signature  $S_2$  is insensitive to variations on  $q_{ext}$ ,  $(K_B, K_A, q_{feed}) = (2, 1.5, 0.562 \times 10^{-5})$ .

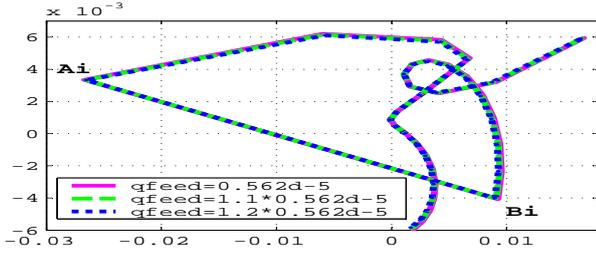


Fig. 10. The slope of the lines  $A_i B_i$  of the signature  $S_2$  is insensitive to variations on  $q_{feed}$ ,  $(K_B, K_A, q_{ext}) = (2, 1.5, 7.514 \times 10^{-5})$ .

insensitive to variations on  $K_B$ ,  $q_{ext}$  and  $q_{feed}$  (see figures 8,9,10). Thus one can use this signature to detect, isolate and estimate variations on  $K_A$  without knowing the value of  $(K_B, q_{ext}, q_{feed})$ . Consequently, residual  $r_{ka}$  which allows us to detect, isolate and estimate variations on  $K_A$  can be written as follow:

$$r_{ka}(t) = \frac{S_2^y(B) - S_2^y(A)}{S_2^x(B) - S_2^x(A)}$$

Where in the signature  $S_2$ , A is the point of minimal x-coordinate and B is the point of positive x-coordinate such as the absolute value for second derivative is maximum.

#### C. Detection of variations on $q_{ext}$

Figure 11 illustrates the *allure* of the signature  $S_3$  in the case of variations affecting  $q_{ext}$  under nominal values of  $(K_B, K_A, q_{feed})$ . It is easy to notice that when  $q_{ext}$  increases, the signature  $S_3$  lengthens. In this case, Interesting

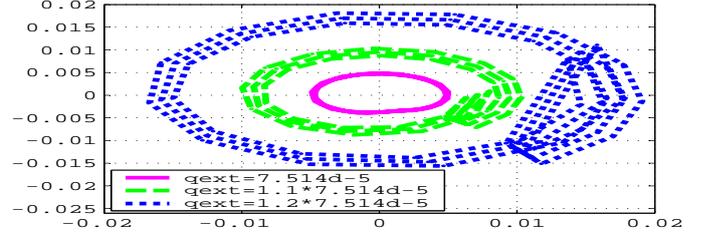


Fig. 11. Sensitivity of the signature  $S_3$  to variations on  $q_{ext}$ ,  $(K_B, K_A, q_{feed}) = (2, 1.5, 0.562 \times 10^{-5})$ .

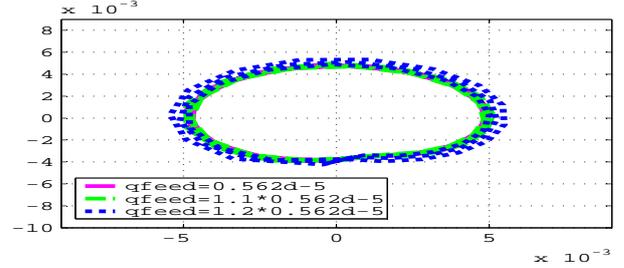


Fig. 12. The signature  $S_3$  is insensitive to variations on  $q_{feed}$ ,  $(K_B, K_A, q_{ext}) = (2, 1.5, 7.514 \times 10^{-5})$ .

points which allow us the estimation of  $q_{ext}$  are those of  $S_3$  corresponding to maximal and minimal values for x-coordinate. Note that this property of  $S_3$  remains valid for all admissible values of  $(K_B, K_A)$  and this signature is insensitive to variations on  $q_{feed}$  (see figure 12). Thus one can use this signature to detect, isolate and estimate variations on  $q_{ext}$  if the value of  $(K_B, K_A)$  is known and without knowing the value of  $q_{feed}$ .  $(K_B, K_A)$  can be estimated using the signatures  $S_1$  and  $S_2$ . Consequently residual  $r_{q_{ext}}$  which allows us to detect, isolate and estimate variations on  $q_{ext}$  can be written as follows :

$$r_{q_{ext}}(t) = \max[S_3^x] - \min[S_3^x]$$

#### D. Detection of variations on $q_{feed}$

Figure 13 illustrates the *allure* of the signature  $S_4$  in the case of variations affecting  $q_{feed}$  under nominal values of  $(K_B, K_A, q_{ext})$ . It is easy to notice that when  $q_{ext}$  increases, the *allure* of the signature  $S_4$  lengthens to the right. Interesting points of  $S_4$  are those corresponding to maximal values for x-coordinate and consequently  $q_{ext}$ -estimation can be done using these points. Note that this property of  $S_4$  remains valid for all admissible values of  $(K_B, K_A, q_{ext})$ . Thus one can use this signature to detect, isolate and estimate variations on  $q_{feed}$  if the value of  $(K_B, K_A, q_{ext})$  is known.  $(K_B, K_A, q_{ext})$  can be estimated using the signatures  $S_1$ ,  $S_2$  and  $S_3$  associated to the above sections. Consequently residual  $r_{q_{feed}}$  which allows us to detect, isolate and estimate variations on  $q_{feed}$  can be written as follow:

$$r_{q_{feed}}(t) = \max[S_4^x].$$

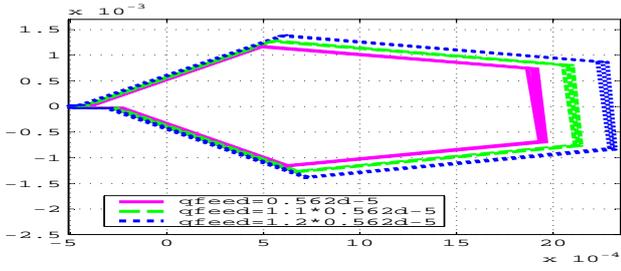


Fig. 13. Sensitivity of the signature  $S_4$  to variations on  $q_{feed}$ ,  $(K_B, K_A, q_{ext}) = (2, 1.5, 7.514 \times 10^{-5})$ .

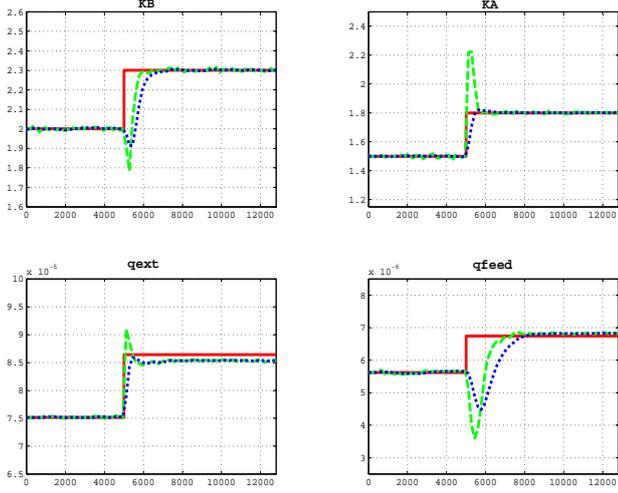


Fig. 14. On line SMB estimated parameters in the case of simultaneous change at  $t=5000s$  (real parameters: solid line '-', estimated parameters: dashed line '-', estimated parameters after filtering: dotted line ':').

## V. SMB PARAMETERS ESTIMATION

Based on the mathematical residuals defined above, the on-line SMB parameters estimation can be done using interpolation method. The value of estimated parameter can be deduced from the corresponding residual value. Parameters estimation is done in the following order:  $K_B$ ,  $K_A$ ,  $q_{ext}$  and then  $q_{feed}$ .

For instance the estimated  $q_{ext}$  given  $\hat{K}_b$ ,  $\hat{K}_a$  is the solution of  $\varphi(q_{ext}, \hat{K}_b, \hat{K}_a, q_{feedn}) = measured [r_{q_{ext}}(t)]$  where  $\varphi(\sigma, \hat{K}_b, \hat{K}_a, q_{feedn})$  is the residual  $r_{q_{ext}}(t)$  computed with  $q_{ext} = \sigma$ ,  $(K_B, K_A) = (\hat{K}_b, \hat{K}_a)$  (estimated values) and  $q_{feed} = q_{feedn}$  (nominal value).

Figure 14 shows estimated parameters in the case of simultaneous parameters change at  $t = 5000s$  from :

$$\begin{pmatrix} K_B \\ K_A \\ q_{ext} \\ q_{feed} \end{pmatrix} = P_0 = \begin{pmatrix} 2 \\ 1.5 \\ 7.514 \times 10^{-5} \\ 0.562 \times 10^{-5} \end{pmatrix}$$

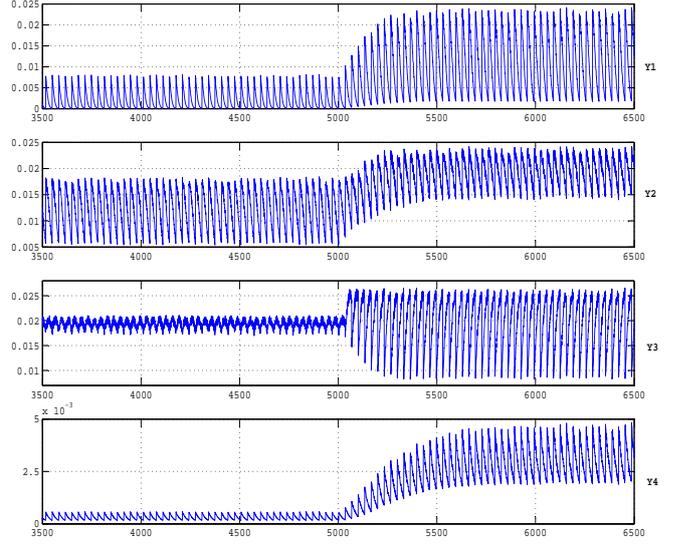


Fig. 15. Measurements with simultaneous parameters change at  $t=5000s$ .

$$to \begin{pmatrix} K_B \\ K_A \\ q_{ext} \\ q_{feed} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1.15 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1.2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1.15 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1.2 \end{pmatrix} \times P_0$$

A 5% relative noise is added to measurement (see figure 15).

Since all signatures and residuals are defined for a constant values of the parameters in a moving window of width  $L = 160s$ , signatures generated by a measurement window containing the step change are not relevant. For this reason estimated parameters are filtered by a low pass filter.

Figures 16,17 show estimated parameters in the case of two parameters change:  $(K_B, q_{feed})$  and  $(K_A, q_{ext})$  respectively.

It is clear that one can consider the difference between estimated parameters and nominal parameters as residuals which allow us to detect and isolate all considered parameters variations. In practice, due the noisy measurement, a residual is never completely vanishing even when the corresponding parameter is not faulty (see for instance figures 16-17), therefore, a thresholds should be used in the decision unity. The definition of such threshold is in itself an active research area in the diagnosis community and is not handled in the present paper.

Note that Detection and isolation are almost immediate while estimation needs some time. For instance, in figure 16 estimation response time of  $q_{feed}$  equals to the triple of the response time of the SMB.

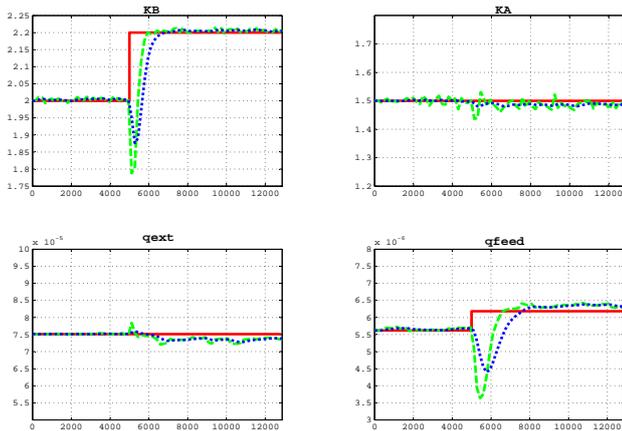


Fig. 16. On line SMB estimated parameters in the case of simultaneous change in ( $K_B, q_{feed}$ ) at  $t=5000s$  (real parameters: solid line '-', estimated parameters: dashed line '- -', estimated parameters after filtering: dotted line':').

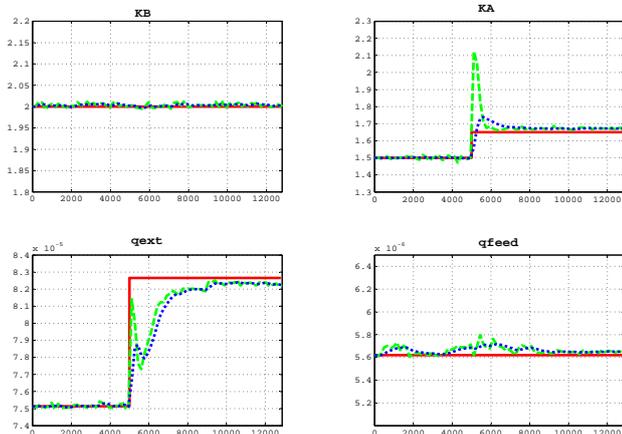


Fig. 17. On line SMB estimated parameters in the case of simultaneous change in ( $K_A, q_{ext}$ ) at  $t=5000s$  (real parameters: solid line '-', estimated parameters: dashed line '- -', estimated parameters after filtering: dotted line':').

## VI. COMPARISON WITH LEAST SQUARES APPROACH

The least squares estimation approach looks for the parameter vector that minimizes the integral of the squared output prediction error. Note that the two approaches invoke as the key task, the integration system model over some prediction horizon in order to perform computation (residual evaluation for the signature-based approach and the cost function evaluation for a candidate vector for the least squares approach).

To this respect, note that the signature based approach needs **6 iterations** to perform a very good estimation (the one given in the above figures). This is because the

estimation of the Langmuir coefficients  $K_A$  and  $K_B$  needs no iterations while three simulations are needed for  $q_{ext}$  and  $q_{feed}$  respectively. Note that this is valid over the whole range of parameter admissible domain.

In order to compare to least squares based approach, the MATLAB optimization subroutine FMIN has been used with a precision parameter that is comparable to the signature based results for five different initial conditions, the corresponding number of iterations so obtained was

$$\{68, 14, 52, 43, 76\}_{\text{leastsquares}} \quad \text{vs} \quad \{6\}_{\text{Signature}}$$

which clearly suggests that the signature based approach may be really advantageous since the number of iteration is much lower and independent of the step change or the initial guess value.

## VII. CONCLUSION

In this paper, simulated moving bed diagnosis based on graphical signature tool is proposed. This graphical tool when joined to the particularly powerful human classification ability facilitates the extraction of relevant graphical residuals. The latter can then be expressed in a mathematical form for use in a real time context. Representative numerical results are presented and discussed to demonstrate the performance of the graphical signature tool in diagnosing a set of SMB failures. On line parameters estimation are presented.

## REFERENCES

- [1] Miron. Abramovici and Melvin A. Breuer. On redundancy and fault detection in sequential circuits. *IEEE Trans. Comput.*, 28:864–865, 1979.
- [2] M. Alamir and J. P. Corriou. Nonlinear receding horizon state estimation for dispersive adsorption columns with nonlinear isotherm. *Journal of Process Control*, 13(6):517–523, 2003.
- [3] Michèle. Basseville. Information criteria for residual generation and fault detection and isolation. *Automatica*, 33(5):783–803, 1997.
- [4] Michèle. Basseville. On-board component fault detection and isolation using the statistical local approach. *Automatica*, 34(11):1391–1415, 1998.
- [5] Michèle. Basseville, Maher. Abdelghani, and Albert. Benveniste. Subspace-based fault detection algorithms for vibration monitoring. *Automatica*, 36(1):101–109, 2000.
- [6] Michèle (ed.) Basseville and Thomas (ed.) Parisini. Special issue: Fault detection and isolation. *Int. J. Adapt. Control Signal Process.*, 14(7):681–798, 2000.
- [7] F. Charton and R. M. Nicoud. Complete design of a simulated moving bed. *J. Chromatogr. A*, 702:97–112, 1995.
- [8] N. Couenne, G. Bornard, J. Chebassier, and D. Humeau. Contrôle et optimisation d'une unité de séparation de xylènes par contre-courant simulé. In *SIMO 2002, Toulouse (France)*, 2002.
- [9] X. Ding and L. Guo. An approach to time domain optimization of observer-based fault detection systems. *Int. J. Control*, 69(3):419–442, 1998.
- [10] G. Dnnebie and K. -U. Klatt. Modelling and simulation of nonlinear chromatographic separation processes: a comparison of different modelling approaches. *Chem. Eng. Sci.*, 55:373–380, 2000.
- [11] Paul M. Frank. Fault diagnosis in dynamic systems using analytical and knowledge-based redundancy - a survey and some new results. *Automatica*, 26(3):459–474, 1990.
- [12] P.M. Frank and T. Marcu. Fuzzy techniques in fault detection, isolation and diagnosis. In *Fuzzy logic control. Advances in applications. Delft Univ. of Technology, Delft, the Netherlands*, pages 135–159, 1999.
- [13] E.Alcorta García and P.M. Frank. Observer-based fault detection via control system decomposition. *Syst. Anal. Modelling Simulation*, 24(1-3):175–184, 1996.

- [14] H. Hammouri, M. Kinnaert, and E.H. El Yaagoubi. Observer-based approach to fault detection and isolation for nonlinear systems. *IEEE Trans. Autom. Control*, 44(10):1879–1884, 1999.
- [15] K. -U. Klatt, F. Hanisch, and G. Dnnebier. Model-based control of a simulated moving bed chromatographic process for the separation of fructose and glucose. *J. Proc. Cont.*, (12):203–219, 2002.
- [16] T. Kleinert and J. Lunze. Modelling and state observation of simulated moving bed processes. In *ECC03: European Control Conference, Cambridge (UK)*, 2003.
- [17] E. Kloppenburg and E. D. Gilles. Automatic control of the simulated moving bed process for C<sub>8</sub> aromatics separation using asymptotically exact input-output linearization. *J. Proc. Cont.*, (1):41–50, 1999.
- [18] Zhiyan. Liu, Yi. Shen, and Yiping. Liu. An approach to fault detection and isolation in nonlinear system based on fuzzy logic. *Control Theory Appl.*, 18(2):234–237, 2001.
- [19] O. Ludemann-Hombourger and R. M. Nicoud. The.
- [20] M. Mangold, G. Lauschke, J. Schaffner, M. Zeitz, and E. D. Gilles. State and parameter estimation for adsorption columns by nonlinear distributed parameter state observers. *J. Proc. Cont.*, 4(3):163–171, 1994.
- [21] Teodor. Marcu, Letitia. Mirea, and Paul M. Frank. Development of dynamic neural networks with application to observer-based fault detection and isolation. *Int. J. Appl. Math. Comput. Sci.*, 9(3):547–570, 1999.
- [22] M. Mazzotti, G. Storti, and M. Morbidelli. Optimal operation of simulated moving bed units for nonlinear chromatographic separations. *J. Chromatogr. A*, 769:3–24, 1997.
- [23] S. Natarajan and J. H. Lee. Repetitive model predictive control applied to a simulated moving bed chromatography system. *Comp. Chem. Eng.*, 24:1127–1133, 2000.
- [24] Henrik. Niemann, Ali. Saberi, Anton A. Stoorvogel, and Peddapulliah. Sannuti. Exact, almost and delayed fault detection: An observer based approach. *Int. J. Robust Nonlinear Control*, 9(4):215–238, 1999.
- [25] S. Petropol. *Ondelettes et diagnostic, application aux défauts diélectriques et électriques des machines tournantes*. PhD thesis, INPG, Grenoble, France, 2001.
- [26] Vicenç. Puig and Joseba. Quevedo. Passive robust fault detection using fuzzy parity equations. *Math. Comput. Simul.*, 60(3-5):193–207, 2002.
- [27] Asok. Ray and Mukund. Desai. A redundancy management procedure for fault detection and isolation. *J. Dyn. Syst. Meas. Control*, 108:248–254, 1986.
- [28] M. Staroswiecki and G. Comtet-Varga. Analytical redundancy relations for fault detection and isolation in algebraic dynamic systems. *Automatica*, 37(5):687–699, 2001.
- [29] Sun Xiang-Fang, Fan Yue-Zu, and Zhang Fei-Zhou. Fault detection using an adaptive fuzzy system. *Int. J. Syst. Sci.*, 33(7):599–609, 2002.
- [30] Yi Xiong and Saif Mehrdad. Robust fault detection and isolation via a diagnostic observer. *Int. J. Robust Nonlinear Control*, 10(14):1175–1192, 2000.
- [31] B. Youssef and M. Almir. Generic signature generation tool for diagnosis and parametric estimation of multi-variable dynamical nonlinear systems. In *Proceedings of the IEEE Conference on Decision and Control, Hawaii, USA*, December 2003.
- [32] B. Youssef and M. Almir. Diagnosis and on-line parametric estimation of automotive electronic throttle control system. In *Proceedings of the IFAC World Congress, Praha, Czech Republic.*, 2005.
- [33] Qinghua. Zhang, Michèle. Basseville, and Albert. Benveniste. Fault detection and isolation in nonlinear dynamic systems: A combined input-output and local approach. *Automatica*, 34(11):1359–1373, 1998.