



**HAL**  
open science

# Contrôle de l'évolution d'un procédé de cristallisation en batch gouverné par des équations aux dérivées partielles

Kun Zhang

## ► To cite this version:

Kun Zhang. Contrôle de l'évolution d'un procédé de cristallisation en batch gouverné par des équations aux dérivées partielles. Autre. Université Claude Bernard - Lyon I, 2011. Français. NNT : 2011LYO10243 . tel-00965757

**HAL Id: tel-00965757**

**<https://theses.hal.science/tel-00965757>**

Submitted on 25 Mar 2014

**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.

N<sup>o</sup> d'ordre : 243-2011

Année 2011

# THÈSE DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

Délivrée par

L'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD LYON 1

DIPLOME DE DOCTORAT

(arrêté du 7 août 2006)

ECOLE DOCTORALE Électronique, Électrotechnique, Automatique

Spécialité : Automatique

par

**Kun Zhang**

## Contrôle de l'évolution d'un procédé de cristallisation en batch gouverné par des équations aux dérivées partielles

Directeur de thèse : M. Cheng-Zhong XU

Co-directeur de thèse : Mme Madiha NADRI

soutenue publiquement le 8 décembre 2011 devant le jury composé de :

M. Bernard BONNARD	Professeur, Université de Bourgogne	Président
M. Christophe PRIEUR	Directeur de Recherche, Gipsa-lab	Rapporteur
M. Pierre ROUCHON	Professeur, École des Mines de Paris	Rapporteur
M. Gilles FEVOTTE	Professeur, UCB Lyon 1	Examineur
Mme Madiha NADRI	Maître de Conférences, UCB Lyon 1	Examineur
Mme Isabelle QUEINNEC	Directeur de Recherche, LAAS-CNRS	Examineur
M. Cheng-Zhong XU	Professeur, UCB Lyon 1	Examineur

# UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

## **Président de l'Université**

**M. A. Bonmartin**

Vice-président du Conseil d'Administration

M. le Professeur G. Annat

Vice-président du Conseil des Etudes et de la Vie Universitaire

M. le Professeur D. Simon

Vice-président du Conseil Scientifique

M. le Professeur J-F. Mornex

Secrétaire Général

M. G. Gay

## ***COMPOSANTES SANTE***

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard

Directeur : M. le Professeur J. Etienne

Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux

Directeur : M. le Professeur F-N. Gilly

UFR d'Odontologie

Directeur : M. le Professeur D. Bourgeois

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Directeur : M. le Professeur F. Locher

Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation

Directeur : M. le Professeur Y. Matillon

Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

Directeur : M. le Professeur P. Farge

## ***COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE***

Faculté des Sciences et Technologies

Directeur : M. le Professeur F. Gieres

Département Biologie

Directeur : M. le Professeur F. Fleury

Département Chimie Biochimie

Directeur : Mme le Professeur H. Parrot

Département GEP

Directeur : M. N. Siauve

Département Informatique

Directeur : M. le Professeur S. Akkouche

Département Mathématiques

Directeur : M. le Professeur A. Goldman

Département Mécanique

Directeur : M. le Professeur H. Ben Hadid

Département Physique

Directeur : Mme S. Fleck

Département Sciences de la Terre

Directeur : Mme le Professeur I. Daniel

UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives

Directeur : M. C. Collignon

Observatoire de Lyon

Directeur : M. B. Guiderdoni

Ecole Polytechnique Universitaire de Lyon 1

Directeur : M. P. Fournier

Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique

Directeur : M. G. Pignault

Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1

Directeur : M. le Professeur C. Coulet

Institut de Science Financière et d'Assurances

Directeur : M. le Professeur J-C. Augros

Institut Universitaire de Formation des Maîtres

Directeur : M. R. Bernard

# Remerciement

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés. Je remercie Monsieur Hatem Fessi, directeur du LAGEP, ainsi que l'ensemble des membres du LAGEP, de m'avoir permis d'effectuer ce travail dans les meilleures conditions.

J'adresse mes remerciements les plus sincères envers ceux qui m'ont dirigés pendant ces dernières années, Madame Madiha Nadri et Monsieur Cheng-Zhong Xu, pour leurs qualités humaines et scientifiques. Je ne pourrai jamais oublier leurs gentillesse, leurs générosité, leurs esprits de recherche et leurs commentaires efficaces. Un grand merci de m'avoir donné la chance de faire une thèse.

Mes remerciements s'adressent également à Messieurs Gilles Févotte et Hassan Hammouri pour leur soutien scientifique, théorique au début de ma thèse.

J'adresse mes remerciements à tous les membres du jury. Je remercie vivement Messieurs Pierre Rouchon et Christophe Prieur, d'avoir accepté d'être rapporteurs. Leurs précieux conseils, leurs sens critique et leur rigueur scientifique m'ont beaucoup apportés et permis la correction de diverses erreurs et imprécisions. Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Monsieur Bernard Bonnard pour avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse. Je remercie également Madame Isabelle Queinnec d'avoir accepté de faire partie du jury et d'examiner cette thèse.

Je tiens à remercier tout particulièrement Hui, Hoang, Hector, Naveed, Sofiane, Zouaoui, Nassim, pour leur amitié, leur aide et leur générosité, en somme pour tout ce que nous avons partagé au cours de ces années.

Je remercie vivement ma famille, mes parents pour leur amour, leur confiance et leur soutien inconditionnel tout au long de ma thèse.

Enfin, un remerciement spécial à Qiong, ma femme, pour son soutien constant tout au long de ces années.



# Table des matières

<b>Remerciement</b>	<b>i</b>
<b>Table des Figures</b>	<b>viii</b>
<b>Liste des Tableaux</b>	<b>ix</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Généralité et modèles</b>	<b>5</b>
1.1 Généralités sur les procédés de cristallisation . . . . .	6
1.1.1 Introduction . . . . .	6
1.1.1.1 Solubilité . . . . .	7
1.1.1.2 Sursaturation . . . . .	7
1.1.1.3 Zone métastable . . . . .	8
1.1.2 Différentes méthodes de l'obtention de la sursaturation . . . . .	9
1.1.2.1 Refroidissement direct ou par échange thermique . . . . .	9
1.1.2.2 Refroidissement par évaporation du solvant . . . . .	10
1.1.2.3 Concentration par évaporation . . . . .	10
1.1.3 Mécanismes de cristallisation . . . . .	10
1.1.3.1 Nucléation . . . . .	10
1.1.3.2 Croissance . . . . .	11
1.1.4 Procédé de cristallisation en batch par refroidissement . . . . .	12
1.2 Modèle de cristallisation en batch par refroidissement . . . . .	14
1.2.1 Hypothèses pour le modèle . . . . .	14
1.2.2 Bilan de population . . . . .	15
1.2.3 Bilan de matière . . . . .	16
1.2.4 Bilan d'énergie . . . . .	17
1.2.5 Cinétique de nucléation et cinétique de croissance . . . . .	17
1.2.5.1 Cinétique de nucléation . . . . .	17

1.2.5.2	Cinétique de croissance . . . . .	18
1.2.6	Condition initiale et condition frontière du bilan de population . . . . .	20
1.2.7	Cas sous saturé . . . . .	20
1.3	Conclusion . . . . .	21
<b>2</b>	<b>Résolution numérique</b>	<b>23</b>
2.1	Introduction . . . . .	24
2.1.1	Introduction de la résolution numérique . . . . .	24
2.1.2	Condition requise pour les résolutions numériques . . . . .	25
2.2	Les méthodes numériques . . . . .	25
2.2.1	Méthode des moments . . . . .	25
2.2.2	Méthode des Différences Finies (MDF) . . . . .	28
2.2.3	Méthode des Caractéristiques (MDC) . . . . .	30
2.2.3.1	Cas de la croissance taille-indépendante . . . . .	31
2.2.3.2	Cas de la croissance taille-dépendante . . . . .	34
2.3	Simulations numériques en boucle ouverte . . . . .	36
2.3.1	Exemple du cas 1-D . . . . .	36
2.3.1.1	Méthode des moments . . . . .	38
2.3.1.2	Comparaison des résultats de simulation par la MDC et la MDF . . . . .	38
2.3.2	Sensibilité des paramètres . . . . .	46
2.4	Extension de MDC pour le modèle bidimensionnel . . . . .	47
2.4.1	Introduction . . . . .	47
2.4.2	Modèle bidimensionnel (2-D) . . . . .	48
2.4.3	MDC pour le cas de tailles 2-D . . . . .	50
2.4.4	Exemple du cas 2-D . . . . .	53
2.5	Conclusions . . . . .	55
<b>3</b>	<b>Commandabilité du procédé</b>	<b>57</b>
3.1	Introduction . . . . .	58
3.2	Commandabilité du système discrétisé . . . . .	58
3.2.1	Notion fondamentale . . . . .	58
3.2.2	Commandabilité du procédé de cristallisation en batch . . . . .	60
3.2.3	Atteignabilité d'une DTC désirée . . . . .	61
3.2.3.1	Cas de la croissance taille-indépendante . . . . .	61
3.2.3.2	Cas de la croissance taille-dépendante . . . . .	64
3.3	Commandabilité du système basé sur l'EDP . . . . .	67
3.3.1	Commandabilité du système . . . . .	67

3.3.2	Atteignabilité du système . . . . .	68
3.4	Conclusion . . . . .	70
<b>4</b>	<b>Commande en boucle fermée du procédé</b>	<b>73</b>
4.1	Introduction . . . . .	74
4.2	État de l'art sur le contrôle du procédé de cristallisation . . . . .	74
4.3	Contrôle de la distribution des tailles de cristaux . . . . .	75
4.3.1	Le modèle du procédé de cristallisation retenu . . . . .	75
4.3.2	Problématique de la commande . . . . .	77
4.3.3	Commande par Feedback avec le modèle idéal . . . . .	78
4.3.4	Poursuite des trajectoires des états . . . . .	79
4.3.5	Commande par Feedback avec les paramètres de nucléation incertains . . . . .	81
4.4	Observateur du procédé de cristallisation . . . . .	83
4.4.1	Introduction . . . . .	83
4.4.2	Un observateur pour le modèle des moments . . . . .	85
4.5	Simulations et discussions . . . . .	87
4.5.1	Simulation du modèle nominal . . . . .	89
4.5.2	Simulation de l'observateur du système . . . . .	91
4.5.3	Simulation du modèle perturbé . . . . .	91
4.6	Conclusion . . . . .	94
<b>5</b>	<b>Conclusion générale</b>	<b>97</b>
<b>A</b>	<b>Acte publié à l'occasion du congrès CIFA 2010</b>	<b>99</b>
<b>B</b>	<b>Acte publié à l'occasion du congrès CCC 2011</b>	<b>107</b>
<b>C</b>	<b>Acte publié à l'occasion du congrès IFAC 2011</b>	<b>115</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>127</b>
	<b>Liste des symboles</b>	<b>129</b>
	<b>Liste des acronymes</b>	<b>131</b>



# Table des figures

1.1	Courbe de solubilité . . . . .	8
1.2	Classification des nucléations . . . . .	11
1.3	Profil de la concentration autour d'un cristal . . . . .	12
1.4	Crystalliseur en batch . . . . .	13
2.1	Schéma de la méthode des caractéristiques dans le plan $xt$ . . . . .	32
2.2	L'évolution des moments . . . . .	38
2.3	L'évolution de la nucléation . . . . .	39
2.4	L'évolution de la croissance . . . . .	39
2.5	L'évolution des concentration . . . . .	40
2.6	La distribution de l'ensemencement des cristaux . . . . .	41
2.7	Comparaison de la DTC et de la MDF à 1800s . . . . .	42
2.8	Comparaison de la DTC et de la MDF à 3600s . . . . .	43
2.9	L'évolution de la DTC simulée par la MDC (cas de 1-D) . . . . .	43
2.10	L'évolution de la DTC simulée par la MDF (cas de 1-D) . . . . .	44
2.11	Comparaison des DTCs finales (cas de 1-D) . . . . .	44
2.12	La comparaison entre la distribution désirée et celle simulée par la MDC . . . . .	45
2.13	La courbe du contrôle . . . . .	46
2.14	L'évolution des taux de nucléation avec les trois jeux de paramètres . . . . .	47
2.15	La DTC finale avec les trois jeux de paramètres . . . . .	48
2.16	Le cristal en taille bidimensionnelle . . . . .	48
2.17	Schéma de la méthode des caractéristiques dans le plan- $xy$ . . . . .	53
2.18	La DTC simulée par la MDC à $t=895s$ (cas de 2-D) . . . . .	54
2.19	La DTC finale simulée par la MDC (cas de 2-D) . . . . .	55
3.1	La DTC désirée . . . . .	69
3.2	La DTC désirée à $T - t_l$ . . . . .	70

4.1	Simple feedback control scheme . . . . .	79
4.2	Schéma du contrôle PI . . . . .	80
4.3	Schéma de contrôle . . . . .	83
4.4	Schéma de principe d'un observateur . . . . .	84
4.5	Le schéma du contrôle par retour d'état avec l'observateur . . . . .	88
4.6	DTC Désiré . . . . .	88
4.7	Température du cristalliseur désirée . . . . .	90
4.8	La DTC finale avec le modèle nominal . . . . .	90
4.9	L'estimation du moment d'ordre 3 . . . . .	91
4.10	L'estimation du moment d'ordre 2 . . . . .	92
4.11	L'estimation du moment d'ordre 1 . . . . .	92
4.12	L'estimation du moment d'ordre 0 . . . . .	93
4.13	La DTC finale avec le modèle perturbé . . . . .	93
4.14	La DTC finale avec les paramètres de nucléation perturbés et avec la correction par $\mu_0$ mesuré . . . . .	94
4.15	La température du cristalliseur avec la correction par $\mu_0$ mesuré . . . . .	95
4.16	La DTC finale avec les paramètres de nucléation perturbés et avec la correction par $\mu_0$ estimé . . . . .	95

# Liste des tableaux

2.1	Paramètres pour le modèle 1-D	37
2.2	Comparaison du temps de calcul	45
2.3	Paramètres pour le modèle 2-D	54
4.1	Paramètres du modèle simulé	89



# Introduction

La cristallisation en solution est un des plus anciens procédés chimiques. Les anciens le connaissent à partir de l'évaporation de l'eau de mer pour obtenir du sel au début. Aujourd'hui, la cristallisation en solution est une technique beaucoup utilisée dans des différents domaines industriels, par exemple dans l'industrie pharmaceutique, dans le génie chimique et alimentaire etc. Dans ces industries, des opérations de la purification, la séparation et la mise en forme du solide sont largement utilisées pour obtenir des produits finaux ou intermédiaires. Les propriétés des cristaux dépendent principalement de leur taille et de leur faciès, donc le contrôle de l'évolution de la cristallisation nous apparaît comme un facteur essentiel du procédé. Le contrôle de la cristallisation permet d'obtenir des cristaux de la phase désirée mais aussi de tailles et de faciès adéquats. Cela nous donne une motivation pour l'étude du contrôle du procédé de cristallisation.

Le procédé de cristallisation est modélisé par des équations aux dérivées partielles couplées avec des équations différentielles non-linéaires. La partie des équations aux dérivées partielles apparaît naturellement suite au bilan de population dans la modélisation du procédé, et elle décrit la dynamique du profil de distribution des tailles de cristaux. La partie des équations différentielles ordinaires gouverne l'évolution de la concentration du soluté dans la solution et de la concentration du solide dans la suspension ainsi que celle de la température du réacteur. Elle permet aussi de modéliser les moyens disponibles de la commande et de l'état des conditions physico-chimiques de la cristallisation. Ces deux parties, l'une en dimension infinie et l'autre en dimension finie, sont couplées de manière fortement non-linéaire via la cinétique de la réaction.

Comme la qualité et les propriétés physico-chimiques des cristaux dépendent sensiblement de la distribution des tailles de cristaux, nous voulons étudier l'influence des commandes sur l'évolution des profils de la distribution des tailles de cristaux, et souhaitons caractériser l'ensemble des profils atteignables par les commandes à notre disposition. Nous souhaitons avoir une idée plus précise sur la structure géométrique

des profils atteignables pour une meilleure maîtrise de la qualité du produit final. De façon plus précise, la contribution de la thèse est la réalisation des travaux suivants :

- simulation numérique du modèle dynamique,
- étude du problème de la commandabilité,
- contrôle de l'évolution des trajectoires du procédé de cristallisation,
- poursuite de la trajectoire désirée en boucle fermée.

L'organisation de ce mémoire est suivante :

Dans le chapitre 1, nous décrivons brièvement le procédé de cristallisation. Puis, nous présentons le modèle du procédé que nous utilisons dans la suite du mémoire.

Dans le chapitre 2 nous présentons notre contribution à la simulation numérique du procédé de cristallisation en batch, en proposant une méthode précise et peu coûteuse en temps de calcul. Nous introduisons dans ce chapitre quelques méthodes de discrétisation. Après la comparaison des résultats de simulation, nous nous proposons de simuler ce procédé à l'aide de la méthode des caractéristiques. La vitesse de calcul avec cette méthode s'avère suffisamment rapide pour une utilisation en temps réel dans l'objectif de concevoir des observateurs d'état et d'étudier des lois de contrôle, afin de commander la distribution des tailles de cristaux. De plus, l'étude a été poursuivie dans le cas des cristaux multidimensionnels. Nous présentons aussi des solutions numériques pour le cas de tailles bidimensionnelles.

Dans le chapitre 3, nous décrivons brièvement la commandabilité du système en dimension finie, puis en dimension infinie. Ensuite, nous étudions la commandabilité du modèle discrétisé par la méthode des caractéristiques. Étant donné un profil désiré de la distribution des tailles de cristaux, nous étudions son atteignabilité par une méthode du problème inverse. Par cette méthode, nous pouvons déterminer un domaine atteignable sur le plan de "distribution vs. concentration". Cela nous aide à construire la distribution désirée. L'étude de la commandabilité est réalisée à la fois pour le modèle décrit par l'équation aux dérivées partielles et pour le modèle discrétisé. Les résultats que nous obtenons pour les deux types de modèle sont pertinents et cohérents.

Dans le chapitre 4, à partir de l'étude du problème de l'atteignabilité, nous concevons un système d'asservissement en boucle fermée pour atteindre la distribution désirée. Pour compenser l'incertitude des paramètres du modèle, le système en boucle fermée est complété par une deuxième boucle en retour d'état afin d'assurer

la poursuite du profil désiré en présence de l'incertitude. Comme certaines variables d'état nécessaires dans la conception du contrôle désiré sont difficiles à mesurer, nous nous proposons de construire un observateur qui permet d'avoir en ligne l'estimation de ces variables d'état. Ensuite, nous utilisons ces variables d'état estimées dans la loi de contrôle désirée et nous démontrons, par simulations, que ce schéma de commande permet d'atteindre la distribution des tailles de cristaux en temps voulu.



# Chapitre 1

## Les procédés de cristallisation en batch et leur modèles

### Sommaire

---

<b>1.1 Généralités sur les procédés de cristallisation</b> . . . . .	<b>6</b>
1.1.1 Introduction . . . . .	6
1.1.2 Différentes méthodes de l'obtention de la sursaturation . .	9
1.1.3 Mécanismes de cristallisation . . . . .	10
1.1.4 Procédé de cristallisation en batch par refroidissement . .	12
<b>1.2 Modèle de cristallisation en batch par refroidissement</b> .	<b>14</b>
1.2.1 Hypothèses pour le modèle . . . . .	14
1.2.2 Bilan de population . . . . .	15
1.2.3 Bilan de matière . . . . .	16
1.2.4 Bilan d'énergie . . . . .	17
1.2.5 Cinétique de nucléation et cinétique de croissance . . . . .	17
1.2.6 Condition initiale et condition frontière du bilan de population . . . . .	20
1.2.7 Cas sous saturé . . . . .	20
<b>1.3 Conclusion</b> . . . . .	<b>21</b>

---

Dans ce chapitre, nous introduisons brièvement les procédés de cristallisation, et détaillons le modèle qui décrit le procédé de cristallisation en batch. Quelques notions fondamentales et les bilans nécessaires à la modélisation sont développés.

## 1.1 Généralités sur les procédés de cristallisation

### 1.1.1 Introduction

Aujourd'hui, on a plusieurs manières pour obtenir un produit cristallisé (cf. [Villemers \(1993\)](#) et [KLEIN \*et al.\* \(1994\)](#)) :

- **la cristallisation à partir de la phase vapeur** : on chauffe des solides, les transforme à la phase vapeur et puis les refroidit pour obtenir les cristaux. Les produits tels la mélamine, l'anhydride phtalique etc. sont normalement faits par ce procédé.
- **la cristallisation à partir de bains fondus** : on transforme les solides à la phase liquide par réchauffement et les refroidit pour obtenir les cristaux. Les produits sont le silicium, les métaux etc.
- **la solidification** : le procédé pris en masse est destiné à une mise en forme commercialisable.
- **la cristallisation à partir d'une solution** : le solide dissoluble se dissout dans le solvant, et s'extrait de la solution avec la variation de la condition de la solution. Les produits sont par exemple le sel, le sucre, etc.

La cristallisation à partir d'une solution est une des opérations anciennes les plus pratiquées plus particulièrement pour l'évaporation de l'eau de mer pour isoler du sel. Aujourd'hui, la cristallisation à partir d'une solution est une technique très utilisée dans des différents domaines industriels, par exemple la pharmacie, la chimie et l'industrie alimentaire etc. C'est une opération physique consistant à isoler un produit en solution pour le récupérer sous une forme solide. Les cristaux produits doivent répondre à des spécifications bien déterminées, comme la phase cristalline, le faciès, la pureté, la solidité, la taille, ...etc, afin d'être utilisés dans des différentes applications. Le contrôle de ce procédé est notre intérêt de recherche. Dans la suite, nous entendons par la cristallisation celle à partir d'une solution si nous ne l'indiquons pas autrement.

### 1.1.1.1 Solubilité

Lors de la dissolution d'un composé dans un solvant, le solvant présente une limite de concentration du composé au-dessus de laquelle le composé ne peut plus être dissous, il s'agit d'un équilibre thermodynamique entre le composé et la solution. Dans notre cas le composé représente le cristal. Cette limitation dépend de la température, de la pression et des impuretés dans le cristalliseur. Elle est appelée solubilité et la solubilité notée  $C_{sat}$  est exprimée en fonction de la température du cristalliseur par :

$$C_{sat}(t) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t)}\right) \quad (1.1)$$

avec :

- $a_{sat}$  : Constante de saturation [ $mol.m^{-3}$ ]
- $R$  : Constante de Boltzmann [sans dimension]
- $\Delta H_f$  : Enthalpie de fusion [ $J.mol^{-1}$ ]
- $T_{cr}(t)$  : Température du cristalliseur [ $K$ ]

### 1.1.1.2 Sursaturation

La sursaturation est la différence de potentiel chimique entre la solution sursaturée et le cristal. Pour des raisons cinétiques, il est fréquent d'observer que le système cristal/solution n'est pas en l'état d'équilibre thermodynamique. On observe que la concentration du soluté est supérieure à la solubilité dans le cas de sursaturation. Une solution sursaturée est une solution qui contient plus de soluté qu'elle ne peut en dissoudre normalement. Ainsi, cette solution est métastable, le système va donc évoluer de manière à tendre vers l'équilibre thermodynamique.

Dans le procédé de cristallisation par refroidissement en vue de l'obtention de cristaux, le composé reste toujours dissous même si on dépasse un peu la limite de solubilité. La différence de potentiel chimique est considérée comme la force motrice permettant de former de petits cristaux ou de faire croître les cristaux. Dans les cas pratiques d'étude de cristallisation, on approxime la sursaturation par l'écart entre la concentration du soluté  $C$  et la solubilité  $C_{sat}$  :

- Le rapport de sursaturation  $\beta(t) = \frac{C(t)}{C_{sat}(t)}$
- La sursaturation relative  $\sigma(t) = \frac{C(t) - C_{sat}(t)}{C_{sat}} = \beta - 1$
- La sursaturation absolue  $\Delta C(t) = C(t) - C_{sat}(t)$

### 1.1.1.3 Zone métastable

Nous expliquons ici les phénomènes de la cristallisation en solution sur le plan “température vs. concentration”. Les notions présentées précédemment sont illustrées sur la figure 1.1, les trois zones sont distinguées par la courbe de solubilité et la courbe de limite de saturation (PUEL *et al.* (2005)) :

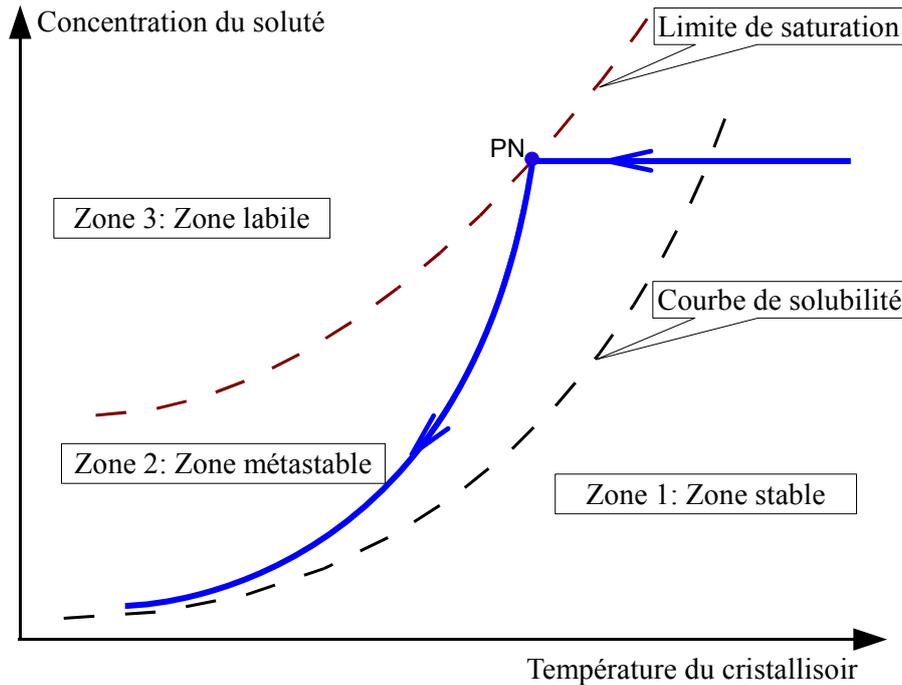


FIGURE 1.1 – Courbe de solubilité

- Zone 1 : c’est la zone stable où la solution est sous saturée. Dans cette zone la concentration du soluté est inférieure à la solubilité, le rapport de sursaturation  $\beta < 1$ , tous les cristaux sont dissous dans le solvant donc il n’y a pas de phase solide dans le cristalliseur.
- Zone 2 : c’est la zone métastable où la solution est sursaturée. Dans cette zone  $\beta > 1$ , la solution n’est pas à l’équilibre thermodynamique, la concentration du soluté est supérieure à la solubilité et les cristaux commencent à apparaître lentement, c’est le phénomène que l’on appelle la nucléation. Des cristaux introduits dans cette solution pourront croître.
- Zone 3 : c’est la zone labile où la solution génère des cristaux de manière spontanée. Dans cette zone  $\beta > 1$ , la solution n’est pas à l’équilibre thermodynamique. Elle est délimitée par la courbe de limite de saturation. Cette dernière

est une fonction relativement complexe des conditions hydrodynamiques, de la température, de la pression et surtout des impuretés, ce qui constitue un problème sérieux pour la modélisation de ce procédé, et donc ce qui cause des incertitudes pour le modèle.

Pour illustrer l'évolution du procédé dans ces trois zones, nous prenons un exemple de la cristallisation par refroidissement sans ensemencement (voir la figure 1.1), la courbe solide est l'évolution de la concentration du soluté en fonction de la température du cristalliseur. Lorsqu'on refroidit la solution initialement caractérisée par la température, on se déplace sur une horizontale de la courbe solide, on est pour l'instant dans la zone stable et les cristaux n'apparaissent pas. Après que l'horizontale traverse la courbe de solubilité et entre dans la zone métastable, peu de cristaux apparaissent très lentement et consomment très peu de soluté. On continue à refroidir la solution jusqu'au point **PN** (point de la nucléation primaire, voir la figure 1.1) qui représente la limite de la zone métastable. A ce point, la force motrice est assez grande pour que les cristaux apparaissent spontanément et rapidement, cette apparition brutale de cristaux se fait par nucléation primaire. Une fois les cristaux nés, ils grossissent par croissance, génèrent éventuellement de nouveaux germes par nucléation secondaire, s'agglomèrent, se brisent, parfois changent de phase cristalline et éventuellement mûrissent. Ils consomment un grand nombre de soluté au cours de la croissance, la courbe de concentration s'approche de la courbe de solubilité jusqu'à ce que système arrive à l'équilibre thermodynamique.

### 1.1.2 Différentes méthodes de l'obtention de la sursaturation

D'après l'exemple ci-dessus, nous constatons que la nucléation et la croissance des cristaux se font dans la zone métastable où la sursaturation  $\beta > 1$ . Pour obtenir un produit cristallisé à partir d'une solution, il est donc nécessaire de créer une sursaturation, c'est-à-dire d'agir physiquement ou chimiquement sur la solution pour que la concentration du soluté dans la solution dépasse la solubilité. En particulier on peut appliquer le refroidissement et l'évaporation pour créer la sursaturation (KLEIN *et al.* (1994)).

#### 1.1.2.1 Refroidissement direct ou par échange thermique

D'après la formule de la solubilité Eq. (1.1), la solubilité est une fonction croissante de la température du cristalliseur et décroît de manière monotone avec décrois-

sante de la température. On peut donc refroidir le cristalliseur pour que la solubilité soit inférieure à la concentration du soluté afin de créer la sursaturation. Cette méthode est utilisée lorsque la variation de la solubilité est importante en fonction de la température. Pour des raisons économiques, les industriels recherchent généralement un solvant de cristallisation ayant cette propriété, ce qui explique que le refroidissement est une méthode de la sursaturation très couramment utilisée.

### 1.1.2.2 Refroidissement par évaporation du solvant

Cette manière consiste à évaporer une partie du solvant sous un vide de plus en plus poussé et provoque une chute de la température du cristalliseur. Le solvant évaporé est condensé et peut être réinjecté dans le cristalliseur. Dans ce cas, l'opération est équivalente à une opération par refroidissement par la double-enveloppe mais sans avoir les inconvénients liés à l'encrassement des surfaces froides. Il est ainsi possible de conduire un refroidissement plus rapide, donc d'obtenir un gain de productivité plus important.

### 1.1.2.3 Concentration par évaporation

Dans ce cas, la solution est rendue plus concentrée à la température constante par évaporation du solvant généralement sous pression réduite. L'évaporation est assurée par apport de chaleur à travers un échangeur thermique placé soit dans l'appareil, soit sur une boucle de circulation. Ce procédé est utilisé lorsque la solubilité varie peu avec la température (chlorure de sodium, sulfate de sodium anhydre, sucre...) ou lorsque, à froid, la concentration dans la solution résiduelle est trop importante pour une bonne rentabilité de l'installation.

## 1.1.3 Mécanismes de cristallisation

### 1.1.3.1 Nucléation

La nucléation est le mécanisme de naissance des cristaux, et elle définit les manières dont les molécules du soluté forment des germes par la formation d'assemblages moléculaires qui peuvent croître lorsqu'ils dépassent une taille critique.

Le mécanisme de nucléation, qui est souvent distingué en deux parties (PUEL *et al.* (2005)) : nucléation primaire et nucléation secondaire, est de plus classifié par les types à la figure 1.2.

La nucléation primaire peut avoir lieu sans présence de cristaux homogènes. Elle

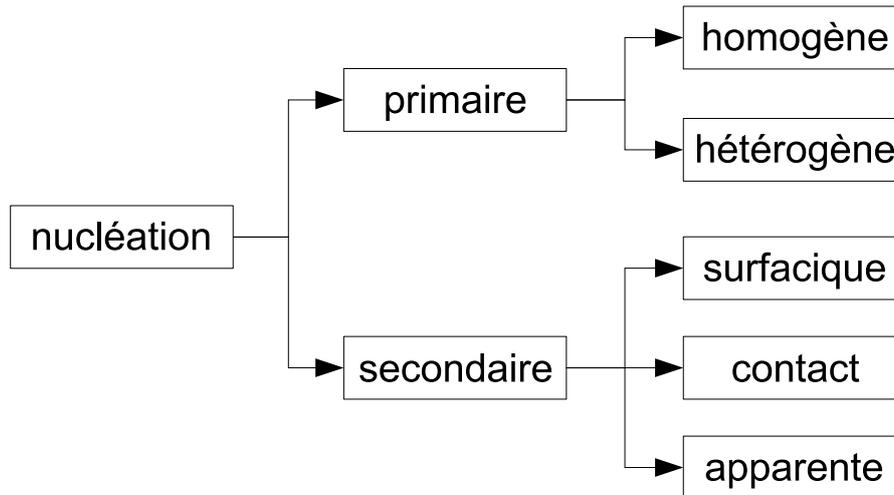


FIGURE 1.2 – Classification des nucléations

est homogène lorsque les germes se forment au sein de la solution sans introduire d'impureté solide dans la solution, et elle est hétérogène lorsque les germes apparaissent au contact d'un substrat qui peut être les parois du cristalliseur, le mobile d'agitation, des impuretés solides ou toutes autres surfaces.

La nucléation secondaire est une nucléation provoquée par l'ensemencement ou la présence de cristaux homogènes déjà formés dans la solution sursaturée. La nucléation secondaire est dite surfacique lorsque les germes se forment sur la surface des cristaux et se détachent des cristaux homogènes, ce qui est différent de celle primaire hétérogène. La nucléation secondaire de contact correspond à l'attrition des cristaux suite à des chocs, mais les débris dont le volume est négligeable par rapport aux cristaux sont considérés comme les germes. La nucléation apparente concerne les cristaux des semences, les germes apparents sont des débris cristallins collés à la surface des cristaux de semences et sont libérés une fois que la semence est mise en suspension.

### 1.1.3.2 Croissance

La croissance est le mécanisme par lequel les cristaux croissent, elle représente le transport des molécules du soluté de la solution vers les cristaux. Ce phénomène ne peut avoir lieu que dans la solution sursaturée ayant des cristaux ou des germes. La croissance des cristaux est encore un mécanisme, [Mersmann \(2001\)](#) a résumé les étapes suivantes par lesquelles un cristal croît dans une solution ionisante selon la description de [MULLIN \(1993\)](#) :

1. grand nombre des ions solvatés diffusent à travers le film de diffusion
2. les ions solvatés diffusent à travers la couche d'adsorption
3. les ions solvatés diffusent à la surface du cristal
4. désolvatation partielle ou totale des ions solvatés
5. ions sont intégrés dans le treillage
6. le solvant libéré diffusent en arrière à travers la couche d'adsorption
7. le solvant libéré diffusent en arrière à travers le film de diffusion

La figure 1.3 illustre le profil des concentrations autour d'un cristal dans la suspension (PUEL *et al.* (2005)).  $C_i$  est la concentration du soluté à l'interface solide/liquide.

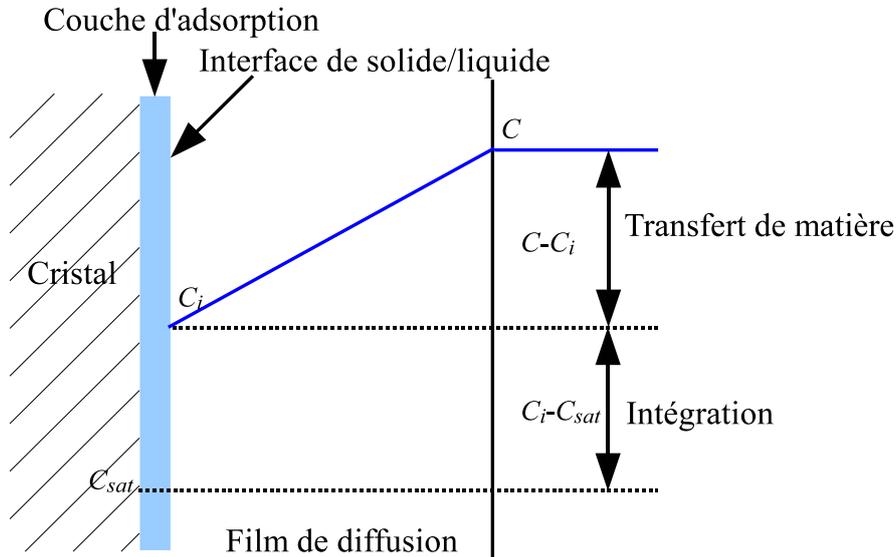


FIGURE 1.3 – Profil de la concentration autour d'un cristal

### 1.1.4 Procédé de cristallisation en batch par refroidissement

Dans notre étude, nous étudions le procédé de cristallisation en batch par refroidissement. Ce type de procédé est souvent utilisé dans les industries pour un petit volume de production ou pour la purification, il est aussi beaucoup utilisé dans le laboratoire pour étudier les caractéristiques de cristallisation.

Dans le cas d'un procédé en batch (voir la figure 1.4), tous les composants sont introduits dans le cristalliseur dès le départ, et il n'y a pas d'entrée ni de sortie qui change la quantité totale des composants lors de la mise en œuvre. La température

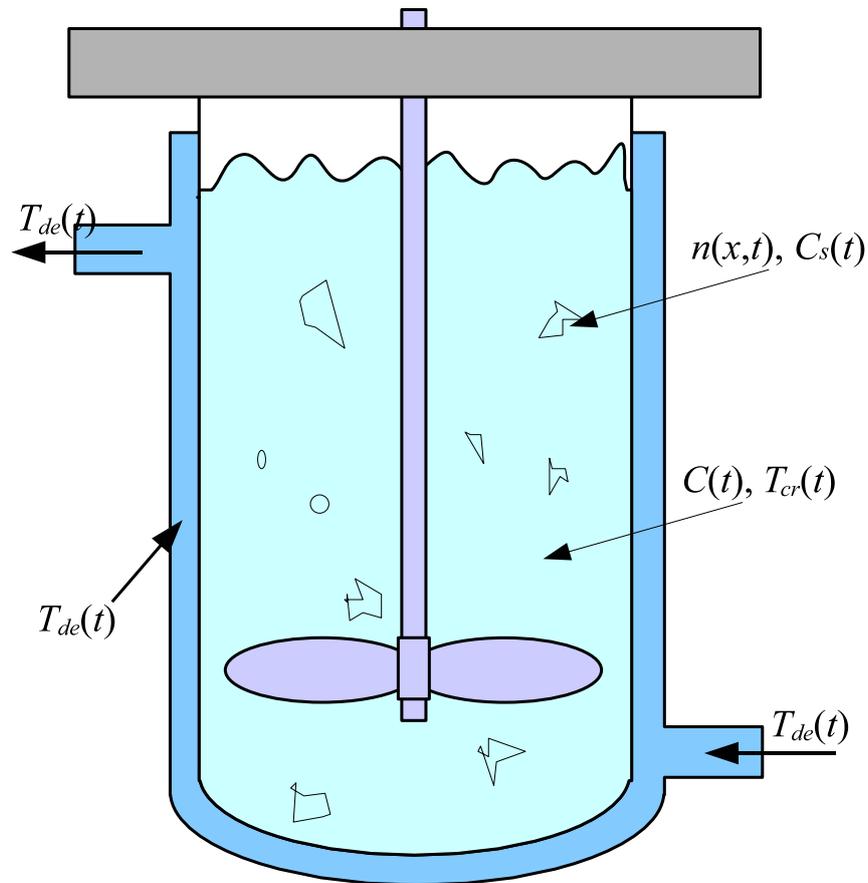


FIGURE 1.4 – Crystalliseur en batch

du cristalliseur est refroidie par la double-enveloppe pour créer la sursaturation et contrôler l'évolution de la distribution.

Les avantages de ce procédé sont des équipements simples et la minimisation de l'encrassement sur la surface. De plus, dans beaucoup de cas seulement le procédé en batch peut assurer la qualité désirée des cristaux par exemple la forme ou la distribution ou la pureté désirée. Par contre, le coût d'opération du procédé en batch est plus cher que celui du procédé de cristallisation continu, et le contrôle de la sursaturation pour le procédé en batch est plus compliqué que celui pour le procédé continu.

## 1.2 Modèle de cristallisation en batch par refroidissement

La modélisation de la cristallisation en batch par refroidissement nous permet d'avoir un modèle qui présente des dynamiques d'un ensemble de cristallisation afin d'étudier le problème de contrôle. Les lectures des travaux [Oullion \(1989\)](#), [Puel \(1994\)](#), [Lewiner \(2000\)](#), [Caillet \(2006\)](#) et [Bakir \(2006\)](#) au sein du LAGEP sont des ouvrages de modélisations, de mesures et d'estimations de la cristallisation exclusivement. Le modèle obtenu est basé sur la méthode du premier principe qui adapte les lois de conservation, le bilan de population couplé avec les bilans de matière et d'énergie permet d'évoluer la Distribution des Tailles de Cristaux (DTC). Il tient compte principalement des mécanismes de nucléation et de croissance qui sont modélisés de façon empirique à trouver des expériences effectuées.

### 1.2.1 Hypothèses pour le modèle

Afin de simplifier le modèle, nous faisons des hypothèses suivantes pour un cristalliseur en batch :

- la suspension dans le cristalliseur est parfaitement agitée.
- la solution est sursaturée.
- l'agglomération est négligeable.
- la brisure est négligeable.
- les caractéristiques des matériaux sont constantes.
- la nucléation se fait à la taille négligeable et à la masse négligeable.
- au-delà de la taille maximale de cristaux, la DTC est nulle et invariante.
- les opérations sont isothermes.
- la surface extérieure du cristalliseur est isolée.
- le volume de la suspension est invariant.

Sous ces hypothèses données, nous présentons le modèle que nous allons utiliser dans les sections suivantes. Ce modèle peut être trouvé aussi dans [Bakir \(2006\)](#).

## 1.2.2 Bilan de population

Dans un cristalliseur, des cristaux naissent, croissent, décroissent et disparaissent. Afin de décrire la dynamique d'un tel système, on étudie le comportement d'une population de cristaux qui sont caractérisés par la DTC. Le bilan de population (Ramkrishna (2000)) permet de décrire l'évolution de ce système au cours du temps et dans l'espace. KLEIN *et al.* (1994) a donné une description générale du bilan de population de tailles compris entre  $x$  et  $x + \Delta x$  dans la suspension d'un volume  $V$  pour une zone parfaitement agitée par unité de temps :

$$\begin{aligned}
 & \left( \begin{array}{c} \text{cristaux entrant dans} \\ \text{le volume } V \\ \text{par l'alimentation} \end{array} \right) + \left( \begin{array}{c} \text{cristaux produits} \\ \text{par nucléation} \end{array} \right) \\
 + & \left( \begin{array}{c} \text{flux net de} \\ \text{cristaux produits} \\ \text{par agglomération} \end{array} \right) = \left( \begin{array}{c} \text{cristaux sortant} \\ \text{le volume } V \\ \text{par soutirage} \end{array} \right) + \left( \begin{array}{c} \text{cristaux de taille } x \text{ qui} \\ \text{croissent et dépassent} \\ \text{la taille } x+\Delta x \end{array} \right) \\
 - & \left( \begin{array}{c} \text{cristaux de taille } x-\Delta x \\ \text{qui croissent et} \\ \text{dépassent la taille } x \end{array} \right) + \left( \begin{array}{c} \text{flux net de cristaux} \\ \text{détruits par brisure} \end{array} \right) \\
 + & \left( \begin{array}{c} \text{cristaux s'accumulant} \\ \text{dans le volume } V \end{array} \right)
 \end{aligned}$$

Selon l'expression dessus et les hypothèses, l'Équation Bilan de Population (EBP) de la cristallisation en batch est décrite par une Équation aux Dérivées Partielles (EDP) :

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial(G(x, t)n(x, t))}{\partial x} = 0 \tag{1.2}$$

Avec :

- $n(x, t)$  est la densité de population en nombre qui représente la Distribution des Tailles de Cristaux (DTC).  $n(x, t)$  définit le nombre de moles de cristaux compris entre  $x$  et  $x+dx$  par unité de volume au temps  $t$  avec  $x \in [X_{min}, X_{max}]$ , où  $X_{min}$  représente la taille du plus petit cristal stable qui ne dissout pas et ne peut que croître, et  $X_{max}$  est égal ou supérieur à la taille maximale du cristal dans la solution.
- $G(x, t)$  est le taux de croissance.

Selon la définition de la DTC, nous pouvons calculer le nombre total de cristaux

par unité de volume  $N_{tot}$  par l'équation suivante :

$$N_{tot}(t) = \int_{X_{min}}^{X_{max}} n(x, t) dx \quad (1.3)$$

Ceci est aussi connu sous le nom du moment d'ordre zéro que nous allons discuter dans le chapitre suivant.

### 1.2.3 Bilan de matière

Le bilan de matière décrit le transfert du soluté de la phase liquide par la concentration du soluté vers la phase solide par la concentration du solide. Cette équation différentielle est donnée par :

$$\frac{d(V_t(t)C(t))}{dt} + \frac{d(V_T C_s(t))}{dt} = 0 \quad (1.4)$$

avec :

- $C(t)$  : La concentration du soluté [ $mol \cdot m^{-3}$ ], définissant le nombre de mole du soluté dans l'unité de volume de la solution
- $C_s(t)$  : La concentration du solide [ $mol \cdot m^{-3}$ ], définissant le nombre de mole du solide dans l'unité de volume total
- $V_T$  : Volume total où le volume de la suspension [ $m^3$ ], sa variation due au transfert de masse est négligeable par la hypothèse
- $V_t$  : Volume de la solution ou de la phase liquide [ $m^3$ ], qui représente la différence entre le volume total de la solution et le volume occupé par la phase solide.

La relation entre le volume total et le volume de la phase liquide est donnée par :

$$V_t(t) = V_T \left(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)\right) \quad (1.5)$$

avec :

- $M_s$  : La masse molaire du solide [ $kg \cdot mol^{-1}$ ]
- $\rho_s$  : La masse volumique du solide [ $kg \cdot m^{-3}$ ]

La concentration de la phase solide est obtenue par l'intégration de la DTC, et calculée à partir de la relation suivante :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_{X_{min}}^{X_{max}} x^3 n(x, t) dx \quad (1.6)$$

où  $K_v$  est le facteur de forme qui convertit  $x^3$  en volume du cristal, il est égal à  $\pi/6$  pour les cristaux considérés de forme sphériques.

Si les valeurs initiales de  $C$  et de  $C_s$  sont connues, Eq. (1.4) peut s'écrire sous la forme suivante :

$$C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \quad (1.7)$$

où  $C(0)$  et  $C_s(0)$  sont les valeurs initiales de  $C$  et de  $C_s$  respectivement.

## 1.2.4 Bilan d'énergie

Dans le cristalliseur en batch, nous utilisons le refroidissement de la solution par la double-enveloppe pour obtenir la sursaturation. Le bilan d'énergie exprime l'échange thermique entre le cristalliseur et la double-enveloppe :

$$\sum_{i=1}^3 C p_i n_i(t) \dot{T}_{cr}(t) = -\Delta H_c V_T \dot{C}_s(t) - UA(T_{cr}(t) - T_{de}(t)) \quad (1.8)$$

avec :

- $C p_1, C p_2, C p_3$  : Capacités molaires thermiques, respectivement, du solide, du soluté et du solvant [ $J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$ ]
- $n_1, n_2, n_3$  : Nombre de moles respectivement du solide, du soluté et du solvant [ $mol$ ]
- $T_{cr}$  : Température du cristalliseur [ $K$ ]
- $\Delta H_c$  : Enthalpie de cristallisation [ $J \cdot mol^{-1}$ ]
- $U$  : Coefficient globale de transfert de la chaleur [ $J \cdot m^{-2} \cdot K^{-1} \cdot s^{-1}$ ]
- $A$  : Surface de transfert de chaleur [ $m^2$ ]
- $T_{de}$  : Température de la double enveloppe [ $K$ ]

## 1.2.5 Cinétique de nucléation et cinétique de croissance

### 1.2.5.1 Cinétique de nucléation

La nucléation représente le processus d'apparition des germes de cristal. Dans notre étude, nous nous intéressons aux cas de la nucléation primaire homogène et de la nucléation secondaire de contact (voir la section 1.1.3.1), le taux de la nucléation  $R_n(t)$  est la somme de ces deux types de nucléation :

$$R_n(t) = R_{n_1}(t) + R_{n_2}(t) \quad (1.9)$$

où  $R_{n_1}$  désigne le taux de la nucléation primaire et  $R_{n_2}$  désigne le taux de la nucléation secondaire.

### a. Nucléation primaire

Le taux de la nucléation primaire homogène est donné par :

$$R_{n_1}(t) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) \quad (1.10)$$

avec :

- $a_{n_1}$  : Paramètre constant  $[[nb] \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}]$
- $b_{n_1}$  : Paramètre constant [sans dimension]

On remarque que le taux de nucléation primaire homogène dépend à la fois du rapport de la sursaturation, et quand la sursaturation s'élève, le taux de la nucléation croît à travers l'expression d'une définition exponentielle Eq. (1.10).

### b. Nucléation secondaire

Le taux de la nucléation secondaire de contact est donné par l'expression suivante :

$$R_{n_2}(t) = K_{n_2}(C(t) - C_{sat}(t))^{I_{n_2}} C_s(t)^{J_{n_2}} \quad (1.11)$$

avec :

- $K_{n_2}$  : Paramètre constant  $[[nb] \cdot m^{3(I_{n_2}+J_{n_2}-1)} \cdot mol^{-(I_{n_2}+J_{n_2})} \cdot s^{-1}]$
- $I_{n_2}$  : Exposant constant [sans dimension]
- $J_{n_2}$  : Exposant constant [sans dimension]

On remarque que l'expression qui décrit la nucléation secondaire dépend des phases liquide et solide dans le cristalliseur, ce qui rend son étude plus intéressante.

En comparant les deux expressions de la nucléation primaire et celle de la nucléation secondaire, la première ne dépend que du rapport de la sursaturation, alors que la deuxième dépend de la sursaturation absolue et de la concentration du solide. Le nombre des germes produits par la nucléation secondaire est très faible par rapport à celui par la nucléation primaire dans le cas de la sursaturation élevée sans présence des cristaux. En revanche, dans le cas de la sursaturation faible avec la présence des cristaux, le taux de nucléation primaire est beaucoup moins important que celui de nucléation secondaire.

#### 1.2.5.2 Cinétique de croissance

La croissance représente le transport des molécules du soluté de la solution vers les cristaux. Dans le cas de la taille unidimensionnelle, le cristal est considéré comme une sphère, le taux de la croissance est donc représenté par la variation du diamètre

de cristal. Dans notre étude, nous étudions deux types de croissance : la croissance taille-indépendante et celle taille-dépendante.

### a. Croissance taille-indépendante

Le taux de croissance ne dépend que de la sursaturation sous la loi de  $\Delta L$  (McCabe (1929)), nous utilisons la formule de la croissance présentée dans Bakir (2006), et exprimée de la manière suivante :

$$G(t) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C(t) - C_{sat}(t))^J \quad (1.12)$$

avec :

- $K_c$  : Paramètre constant [ $m^{3J-2} \cdot mol^{1-J} \cdot s^{-1}$ ]
- $J$  : Exposant constant [sans dimension]

$\eta$  est la solution de l'équation non-linéaire :

$$\frac{K_c}{K_d} (C(t) - C_{sat}(t))^{J-1} \eta + \eta^{\frac{1}{J}} - 1 = 0 \quad (1.13)$$

avec :

- $K_d$  : Coefficient global de transfert de masse [ $m \cdot s^{-1}$ ]

### b. Croissance taille-dépendante

Quelques recherches (Canning et Randolph (1967)) ont montré que le taux de croissance peut dépendre fortement de la taille de cristaux dans quelques conditions d'opération, et la loi de  $\Delta L$  ne s'adapte pas au procédé. Dans notre étude, nous étudions le cas où le taux de croissance est le produit de deux fonctions (Aamir et al. (2009)). Le taux de croissance s'écrit :

$$G(x, t) = G_l(x) G_t(t) \quad (1.14)$$

où la fonction  $G_l(x)$  ne dépend que la taille de cristaux, et la fonction  $G_t(t)$  ne dépend que du temps. Ces deux fonctions sont définies par :

$$G_l(x) = (1 + ax)^b \quad (1.15)$$

$$G_t(t) = K_g (C(t) - C_{sat}(t))^{J_g} \quad (1.16)$$

avec :

- $a$  : Paramètre constant [sans dimension]
- $b$  : Exposant constant [sans dimension]
- $K_g$  : Paramètre constant [ $m \cdot s^{-1} \cdot mol^{-J_g} \cdot m^{3J_g}$ ]
- $J_g$  : Exposant constant [sans dimension]

### 1.2.6 Condition initiale et condition frontière du bilan de population

Afin de résoudre une EDP, il est nécessaire de donner des conditions initiales et des conditions frontières. Dans notre étude, nous définissons la condition initiale pour le bilan de population par l'équation suivante :

$$n(x, t = 0) = n_0(x) \quad (1.17)$$

Nous faisons l'hypothèse que la nucléation a lieu à la taille négligeable, et que l'agglomération et la brisure sont négligeables. Ainsi, d'après la définition de la nucléation, le taux de nucléation est égal à la variation du nombre total de cristaux par unité de volume :

$$R_n(t) = \frac{d}{dt} \left( \int_{X_{min}}^{X_{max}} n(x, t) dx \right) \quad (1.18)$$

Ce dernier est équivalent à l'équation suivante :

$$R_n(t) = \int_{X_{min}}^{X_{max}} \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} dx \quad (1.19)$$

D'après le bilan de population, nous remplaçons la partie de la dérivée partielle et nous obtenons :

$$R_n(t) = - [n(x, t)G(x, t)]_{X_{min}}^{X_{max}} \quad (1.20)$$

La distribution au-delà taille maximale  $X_{max}$  est nulle, nous obtenons la condition frontière suivante :

$$n(X_{min}, t) = \frac{R_n(t)}{G(X_{min}, t)} \quad (1.21)$$

$$n(X_{max}, t) = 0 \quad (1.22)$$

Ici, la taille maximale de cristaux  $X_{max}$  doit être suffisamment grand pour que cette hypothèse est toujours satisfaite, et la taille minimale de cristaux  $X_{min} = 0$  selon les hypothèses données (voir la section 1.2.1).

### 1.2.7 Cas sous saturé

Dans le cas d'une solution sous saturée, la concentration du soluté est inférieure à la solubilité, la différence de potentiel chimique entre la solution et le cristal est opposée à celle du cas sursaturé, les cristaux sont donc forcés à se dissoudre par la force motrice. Ainsi, la solution ne peut pas créer de germe et les cristaux dans

la solution décroissent. Le taux de décroissance  $D(t)$  est donné par l'expression suivante :

$$D(t) = K_{diss}(C_{sat}(t) - C(t))^{J_d} \quad (1.23)$$

avec :

- $K_{diss}$  : Paramètre constant de dissolution [ $m^{3J_d+1} \cdot mol^{-J_d} \cdot s^{-1}$ ]
- $J_d$  : Exposant constant et positif de dissolution [sans dimension]

Le bilan de population se réécrit sous forme :

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + D(t) \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} = 0 \quad (1.24)$$

Le phénomène de dissolution est considéré comme l'inverse de la croissance qui n'est pas l'objectif du contrôle. Il n'est pas économique puisqu'on doit réchauffer la solution pour avoir la dissolution et dépense de l'énergie. Ainsi, dans notre étude, nous supposons que la solution est toujours sursaturée et évitons que le contrôle cause la dissolution des cristaux.

### 1.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté brièvement le procédé de cristallisation. Nous avons donné le modèle de la cristallisation en batch par refroidissement, ainsi que les formules reliées aux mécanismes de cristallisation. C'est un modèle obtenu à partir du bilan de population et décrit par une équation aux dérivées partielles. D'une part, le modèle est complété par les bilans de matières et d'énergie qui sont décrits par des équations différentielles ordinaires, et d'autre part, par les mécanismes de nucléation qui sont exprimés par les équations non-linéaires algébriques. Dans ce procédé, nous nous intéressons à la nucléation primaire homogène et à la nucléation secondaire de contact. Dans notre étude, nous avons considéré deux cas du mécanisme de croissance : la croissance taille-indépendante et celle taille-dépendante.



# Chapitre 2

## Résolution numérique de la cristallisation en batch

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>24</b>
2.1.1	Introduction de la résolution numérique	24
2.1.2	Condition requise pour les résolutions numériques	25
<b>2.2</b>	<b>Les méthodes numériques</b>	<b>25</b>
2.2.1	Méthode des moments	25
2.2.2	Méthode des Différences Finies (MDF)	28
2.2.3	Méthode des Caractéristiques (MDC)	30
<b>2.3</b>	<b>Simulations numériques en boucle ouverte</b>	<b>36</b>
2.3.1	Exemple du cas 1-D	36
2.3.2	Sensibilité des paramètres	46
<b>2.4</b>	<b>Extension de MDC pour le modèle bidimensionnel</b>	<b>47</b>
2.4.1	Introduction	47
2.4.2	Modèle bidimensionnel (2-D)	48
2.4.3	MDC pour le cas de tailles 2-D	50
2.4.4	Exemple du cas 2-D	53
<b>2.5</b>	<b>Conclusions</b>	<b>55</b>

---

Dans ce chapitre, nous introduisons des méthodes numériques pour approximer le bilan de population, comparons les méthodes en simulant le système discrétisé, choisissons la méthode qui nous convient à notre étude de contrôle (Zhang *et al.* (2010a)). De plus, nous étudions aussi le bilan de population dans le cas de tailles multidimensionnelles (Zhang *et al.* (2010c)).

## 2.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté le modèle du procédé de cristallisation en batch par refroidissement. Ce modèle est basé sur le bilan de population décrit par une Équation aux Dérivées Partielles (EDP) hyperbolique du premier ordre, couplé par des Équations Différentielles Ordinaires (EDO). La DTC dépend du temps et des tailles de cristaux. Les problèmes d'optimisation, tel que la maximisation de la taille moyenne et la minimisation du coefficient de variance de la taille moyenne (voir Eq. (2.2)-Eq. (2.5)) à travers le contrôle de la température du cristalliseur, est un problème intéressant mais difficile à résoudre directement de l'EDP. Cela nous a motivé à chercher une résolution numérique de l'Équation du Bilan de Population (EBP) et à proposer un algorithme rapide et précis pour la simulation.

### 2.1.1 Introduction de la résolution numérique

La résolution numérique transforme le problème de dimension infinie en un problème de dimension finie par une discrétisation spatiale. Ce problème de dimension finie est souvent formé d'une séquence d'EDOs qui expriment l'évolution des variables d'intérêt sur tous les espaces discrétisés.

Dans le cadre du procédé de cristallisation, on s'intéresse à la discrétisation de l'EBP. Beaucoup d'efforts ont été investis pour développer des résolutions numériques appropriées. Parmi ces techniques numériques, nous pouvons citer les méthodes principales :

- la méthode des moments (Giaya *et Thompson* (2004) et Marchisio *et al.* (2003)) : elle sert à trouver une condition de fermeture, résoudre ce système des moments, et reconstruire la DTC avec les moments ;
- la méthode des différences finies (Godlewski *et Raviart* (1996)) : cette méthode discrétise toutes les dimensions des EDPs, transfère l'équation continue en équations discrètes et calcule la distribution de chaque nœud ;

- la méthode des volumes finis (LeVeque (2002)) : on étudie les volumes discrétisés au lieu des nœuds, et utilise la conservation des flux de chaque volume discrétisé ;
- la méthode des éléments finis (Mahoney *et al.* (2002)) : on approxime la distribution avec des polynômes d'ordre faible pour les éléments discrétisés ;
- la méthode des caractéristiques : elle est une méthode de la résolution des EDPs. On peut combiner cette méthode avec d'autres méthodes numériques, par exemple la méthode des différences finies (Sotowa *et al.* (2000)) et la méthode des volumes finis (Qamar *et Warnecke* (2008)), afin de discrétiser l'EDP. Elle étudie la variation des variables suivant des courbes des caractéristiques et réduit les EDPs en EDOs afin de simplifier la résolution.

### 2.1.2 Condition requise pour les résolutions numériques

Quand on utilise le système de dimension finie obtenu par la méthode numérique en approximant le procédé de cristallisation, on espère que le modèle du système de dimension finie a des caractéristiques suivants :

- temps de calcul réduit ; Ceci est demandé quand le contrôle en ligne est basé sur le modèle. Le temps de calcul doit être assez petit pour qu'on puisse introduire le contrôle calculé du modèle au système contrôlé dans un intervalle de temps limité.
- niveau suffisant de précision ; Ceci est demandé quand le contrôle est basé sur le modèle. Quand le modèle n'approxime pas assez précisément le système contrôlé, le contrôle en boucle ouverte calculé du modèle ne peut pas commander le système à l'objectif désiré. Dans certains cas, cette incertitude peut être compensée par le retour d'état.
- adaptation à la conception de contrôle ; le modèle du système de dimension finie doit avoir des structures et des caractéristiques adéquats par rapport au système contrôlé.

## 2.2 Les méthodes numériques

### 2.2.1 Méthode des moments

La méthode des moments est une technique de réduction de modèle. Cette méthode est pratiquée efficacement quand la croissance est taille-indépendante et quand

on ne s'intéresse pas l'évolution de la DTC. Dans ce cas, nous pouvons trouver un système dynamique composé des moments et des variables qui sont indépendants de la variable spatiale  $x$ .

Les moments du système sont définis par des intégrations suivantes dans un cadre du procédé de cristallisation :

$$\mu_i(t) = \int_0^\infty x^i n(x,t) dx, \quad i = 0, 1, 2 \dots \quad (2.1)$$

Les quatre premiers moments ont leur signification physique :

- $\mu_0$  : le nombre total de cristaux par unité de volume
- $\mu_1$  : la largeur totale de cristaux par unité de volume
- $\mu_2$  : le facteur de la surface totale de cristaux par unité de volume
- $\mu_3$  : le facteur du volume total de cristaux par unité de volume

On a des caractéristiques des tailles de cristaux basé sur les moments qui caractérisent les répartitions des tailles de cristaux (voir [KLEIN \*et al.\* \(1994\)](#) et [Bakir \(2006\)](#)) :

- taille moyenne en nombre :

$$Ln_{moy}(t) = \frac{\mu_1(t)}{\mu_0(t)} \quad (2.2)$$

- coefficient de variance de la taille moyenne en nombre :

$$CV_{Ln}(t) = \sqrt{\frac{\mu_0(t)\mu_2(t)}{\mu_1^2(t)} - 1} \quad (2.3)$$

- taille moyenne en masse :

$$Lm_{moy}(t) = \frac{\mu_4(t)}{\mu_3(t)} \quad (2.4)$$

- coefficient de variance de la taille moyenne en masse :

$$CV_{Lm}(t) = \sqrt{\frac{\mu_3(t)\mu_5(t)}{\mu_4^2(t)} - 1} \quad (2.5)$$

Dans le cas de la croissance taille-indépendante, on obtient un système réduit en dimension finie. En effet, la dérivée du moment par rapport au temps s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{d\mu_i(t)}{dt} = \int_0^\infty x^i \frac{\partial n(x,t)}{\partial t} dx \quad (2.6)$$

Quand  $i = 0$ , selon Eq. (2.6) et Eq. (1.18) nous avons :

$$\frac{d\mu_0(t)}{dt} = R_n(t) \quad (2.7)$$

Pour  $i > 0$ , avec le bilan de population Eq. (1.2), nous avons :

$$\frac{d\mu_i(t)}{dt} = - \int_0^\infty x^i \frac{\partial(n(x,t)G(t))}{\partial x} dx \quad (2.8)$$

Par l'intégration par parties, nous obtenons :

$$\frac{d\mu_i(t)}{dt} = - [x^i n(x,t)G(t)]|_0^\infty + i \int_0^\infty x^{i-1} n(x,t)G(t) dx \quad (2.9)$$

Selon la condition frontière Eq. (1.21) et Eq. (1.22) et la définition du moment Eq. (2.1), nous obtenons la relation suivante :

$$\frac{d\mu_i(t)}{dt} = iG(t)\mu_{i-1}(t) \quad (2.10)$$

D'après Eq. (1.6) et Eq. (2.1), nous avons une relation entre la concentration du solide  $C_s(t)$  et le moment d'ordre trois  $\mu_3(t)$  :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t) \quad (2.11)$$

Dans cette équation, on peut calculer  $C_s(t)$  par  $\mu_3(t)$ . Ainsi nous obtenons un système fermé composé des équations des moments d'ordre 0 – 3 et des équations du bilan d'énergie Eq. (1.7) et du bilan de matière Eq. (1.8) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\mu_3(t)}{dt} = 3G(t)\mu_2(t) \\ \frac{d\mu_2(t)}{dt} = 2G(t)\mu_1(t) \\ \frac{d\mu_1(t)}{dt} = G(t)\mu_0(t) \\ \frac{d\mu_0(t)}{dt} = R_n(t) \\ \sum_{i=1}^3 Cp_i n_i(t) \frac{dT_{cr}(t)}{dt} = -\Delta H_c V_T \dot{C}_s(t) - UA(T_{cr}(t) - T_{de}(t)) \end{array} \right. \quad (2.12)$$

avec :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t) \quad (2.13)$$

$$C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \quad (2.14)$$

Puisque  $C_s(t)$  est mesurable et proportionnel à  $\mu_3(t)$ , on peut considérer que la sortie est  $\mu_3(t)$ . Ce système étant complet, nous pouvons calculer l'évolution des variables d'état  $\mu_i(t)$ ,  $C_s(t)$ ,  $C(t)$  et  $T_{cr}(t)$  qui sont contrôlées par la température de la double-enveloppe  $T_{de}(t)$ .

La solution numérique est rapide car le système est réduit à quelques EDOs. Aussi la solution numérique vient directement de la transformation du modèle de base, et il n'y a pas d'approximation pendant la transformation, la résolution numérique est donc précise. De plus, les moments d'ordre 0 – 3 contiennent des caractéristiques de la DTC. Si on s'intéresse seulement à améliorer ces caractéristiques, on peut contrôler le système en ligne en utilisant des méthodes d'optimisation avec ce modèle réduit.

L'inconvénient est que nous ne pouvons pas avoir l'évolution de la DTC  $n(x, t)$  à partir de ce modèle, car on ne possède que les moments d'ordre 0 – 3 sont des intégrations de la DTC par rapport à  $x$ .

## 2.2.2 Méthode des Différences Finies (MDF)

La Méthode des Différences Finies (MDF) est une méthode parmi les méthodes de résolutions couramment utilisées dans le domaine de l'analyse numérique à la recherche d'une solution pour les EDPs. C'est la méthode la plus facile à réaliser, puisqu'elle repose sur deux notions : la discrétisation des opérateurs de dérivation/différentiation (assez intuitive) d'une part, et la convergence du schéma numérique ainsi obtenu d'autre part. Elle consiste à approximer les termes de dérivées au moyen des développements de Taylor limités en utilisant la définition de la dérivée.

Cette méthode est basée sur une approximation des dérivées d'une fonction, et suivant un maillage prédéfini de l'espace de variable indépendante. Ce maillage peut être à pas de discrétisation fixe ou variable selon les cas, et le schéma de discrétisation peut être fixe ou mouvant suivant la variation de la fonction.

L'idée de base de la méthode consiste à :

- réduire le domaine de résolution de l'équation différentielle à un domaine borné ;
- définir une grille (ou maillage) finie des points de ce domaine ;
- approcher les dérivées qui figurent dans l'équation à l'aide d'un développement de Taylor autour des points de la grille.

Pour obtenir un modèle adapté pour le contrôle, on discrétise seulement la taille de cristaux avec un pas constant  $\Delta x$  et les points discrétisés sont définis par l'en-

semble  $X$  :

$$X = \{x_0, x_1, \dots, x_N\}$$

avec  $x_i \in X$ ,  $x_i - x_{i-1} = \Delta x$ .

Le développement de Tylor de la DTC discrétisée  $n(x_{i-1}, t)$  s'écrit sous la forme :

$$n(x_{i-1}, t) = n(x_i - \Delta x, t) = n(x_i, t) - \Delta x \left. \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \right|_{x=x_i} + O(\Delta x) \quad (2.15)$$

Avec Eq. (2.15), on approxime la dérivé partielle de la DTC par rapport à  $x$  au point  $x_i$  en utilisant le schéma de différences finies à gauche :

$$\left. \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \right|_{x=x_i} = \frac{n(x_i, t) - n(x_{i-1}, t) + O(\Delta x)}{\Delta x} \quad (2.16)$$

On peut écrire le bilan de population au point discrétisé  $x_i$  par :

$$\frac{dn(x_i, t)}{dt} = -G(t) \frac{n(x_i, t) - n(x_{i-1}, t) + O(\Delta x)}{\Delta x} \approx G(t) \frac{n(x_{i-1}, t) - n(x_i, t)}{\Delta x} \quad (2.17)$$

La taille discrétisée  $x_0$  est la taille minimale, c'est-à-dire  $x_0 = X_{min}$ , et la DTC à ce point discrétisé  $x_0$  est calculée à travers la condition frontière selon l'expression :

$$n(x_0, t) = \frac{R_n(t)}{G(t)} \quad (2.18)$$

Si on considère  $n(x_0, t)$  comme l'entrée du système, alors le bilan de population s'écrit sous forme des EDOs :

$$\frac{d\tilde{n}(t)}{dt} = \frac{G(t)}{\Delta x} A \tilde{n}(t) + B \frac{R_n(t)}{\Delta x} \quad (2.19)$$

avec :

$$\tilde{n}(t) = \begin{bmatrix} n(x_1, t) \\ n(x_2, t) \\ \vdots \\ n(x_{N-1}, t) \\ n(x_N, t) \end{bmatrix}, \quad A = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ 1 & -1 & 0 & \ddots & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & \ddots & 1 & -1 & 0 \\ 0 & \cdots & 0 & 1 & -1 \end{bmatrix}, \quad B = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Dans cette discrétisation on approxime aussi le calcul de la concentration du solide, on peut calculer approximativement la concentration du solide par la méthode du trapèze :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty x^3 n(x, t) dx \approx \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} [x_i^3 n(x_i, t) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t)] \quad (2.20)$$

Ainsi le système en dimension finie discrétisé par la MDF est exprimé par :

$$\begin{cases} \frac{d\tilde{n}(t)}{dt} = \frac{G(t)}{\Delta x} A\tilde{n}(t) + B \frac{R_n(t)}{\Delta x} \\ \sum_{i=1}^3 C p_i n_i(t) \dot{T}_{cr}(t) = -\Delta H_c V_T \dot{C}_s(t) - UA(T_{cr}(t) - T_{de}(t)) \end{cases} \quad (2.21)$$

avec :

$$\begin{cases} C_s(t) = \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} [x_i^3 n(x_i, t) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t)] \\ C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \\ n(x_0, t) = \frac{R_n(t)}{G(t)} \end{cases} \quad (2.22)$$

Un des avantages majeurs de la MDF est sa simplicité. Par exemple, on peut rendre la taille de maille aussi petite que l'on veut pour satisfaire à la précision exigée. Ainsi, nous pouvons trouver facilement les propriétés du modèle. Et la structure du modèle possède une partie de linéarité qui est intéressante pour la conception de contrôle.

Néanmoins, il existe des inconvénients non négligeables : la précision de cette méthode dépend du pas de discrétisation  $\Delta x$ , on a besoin d'un maillage très fin pour aboutir à une solution précise, alors que cela augmente le nombre d'équation à résoudre et demande un temps de calcul important. Il est donc difficile de pouvoir contrôler le système en temps réel avec ce modèle discrétisé. Des oscillations dues à la stabilité du schéma apparaissent tout au début de la simulation, ce qui rend le résultat numérique difficile à exploiter.

### 2.2.3 Méthode des Caractéristiques (MDC)

La Méthode des Caractéristiques (MDC) est une technique permettant de résoudre les EDPs. Cette méthode étudie la variation des variables suivant les courbes des caractéristiques. Dans certains cas simple (par exemple le cas simple de l'EDP linéaire d'ordre un), on peut trouver la résolution purement analytique des EDPs avec la MDC. Dans les cas plus complexes, on peut utiliser cette méthode comme une méthode numérique pour trouver une résolution numérique des EDPs. Ici nous combinons la MDC avec la MDF afin de trouver un modèle raisonnable en dimension finie. Nous distinguons deux cas : le cas de la croissance taille-indépendante et celui de la croissance taille-dépendante.

### 2.2.3.1 Cas de la croissance taille-indépendante

Dans le cas de la croissance taille-indépendante, Eq. (1.2) peut s'écrire sous forme :

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial(n(x, t))}{\partial x} = 0 \quad (2.23)$$

Puisque le taux de croissance est indépendant de la taille  $x$ .

A partir du taux de croissance, la courbe caractéristique de l'EDP est définie par :

$$\frac{dx}{dt} = G(t) \quad (2.24)$$

La dérivation totale de  $n(x, t)$  par rapport à  $t$  suivant la courbe caractéristique est donnée par :

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \frac{dx}{dt} \quad (2.25)$$

La courbe caractéristique satisfaisant Eq. (2.24), Eq. (2.23) et Eq. (2.25) permettent d'écrire :

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} G(t) = 0 \quad (2.26)$$

Ainsi l'EBP est transformée en deux EDOs suivantes :

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = G(t) \\ \frac{dn(x, t)}{dt} = 0 \end{cases} \quad (2.27)$$

$G(t)$  est indépendant de  $x$ . Donc, les vitesses tangentielles de deux courbes caractéristiques issues de deux points différents  $(x_1, t_0)$  et  $(x_2, t_0)$  sont égales quelque soit le moment  $t_1$ , c'est-à-dire que les courbes caractéristiques sont parallèles suivant la direction de  $x$  sur le plan- $xt$ .

Dans cette condition, nous décidons que la variable  $x$  est discrétisée avec un pas régulier  $\Delta x$ . Nous rappelons ici que l'ensemble des points discrétisés est défini par :

$$X = \{x_0, x_1, x_2, \dots, x_N\}, \quad x_i - x_{i-1} = \Delta x, \quad x_i \in X$$

$x_N = X_{max}$  est la taille maximale des cristaux,  $x_0 = X_{min}$  est la taille minimale des cristaux et  $\Delta x$  est le pas de discrétisation entre  $x_0$  et  $x_N$ . Ici, d'après l'hypothèse (voir la section 1.2.1),  $X_{min} = 0$  et  $X_{min}$  doit être suffisamment grande.

Nous pouvons trouver un instant  $t_{j+1}$  issue de la valeur initiale  $t_j$  tel que à l'instant  $t_{j+1}$  :

$$\Delta x = \int_{t_j}^{t_{j+1}} G(\tau) d\tau \quad (2.28)$$

Sur le plan- $xt$ , les courbes caractéristiques, qui partent des points discrétisés  $x_i$  à l'instant  $t_j$ , arrivent à  $x_{i+1}$  à l'instant  $t_{j+1}$  quelque soit  $i = 1, 2, \dots$

Suivant les courbes caractéristiques, la variation de la DTC est nulle, on a :

$$n(x_i, t_j) = n(x_{i+1}, t_{j+1}) \quad (2.29)$$

Alors la résolution du problème Eq. (2.27) revient à trouver le pas du temps  $\Delta t_j$  pour l'instant  $t_j$ , comme illustré par la figure 2.1, les flèches rouges sont des droites tangentes des courbes caractéristiques.

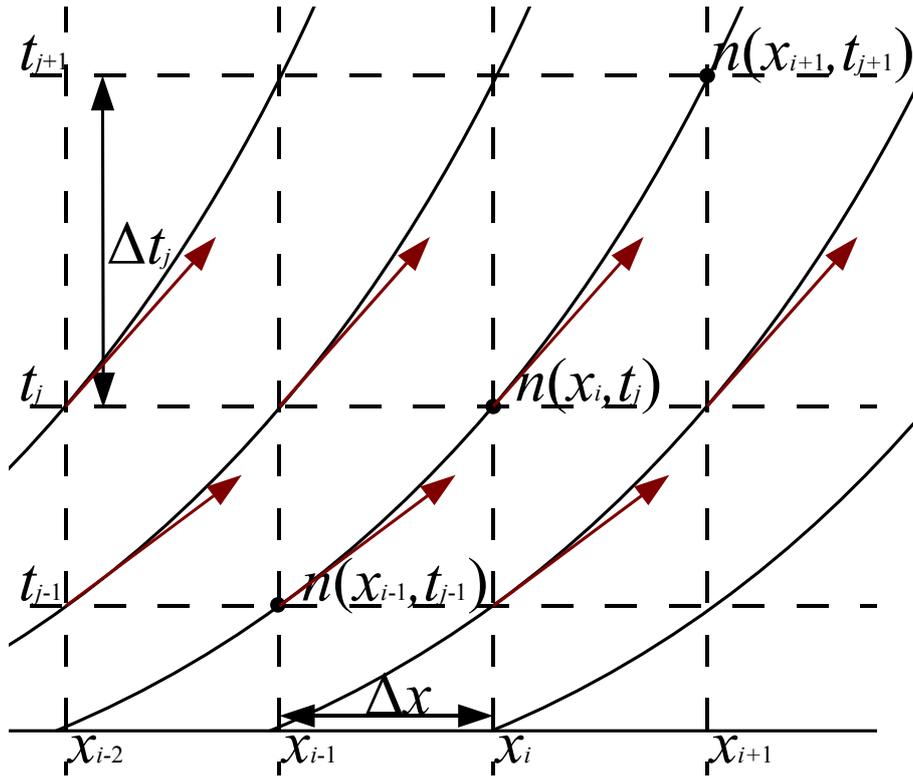


FIGURE 2.1 – Schéma de la méthode des caractéristiques dans le plan  $xt$

Connaissant le taux de croissance  $G(t)$ , on intègre Eq. (2.24) de la manière suivante :

$$t_j = t_{j-1} + \int_{(j-1)\Delta x}^{j\Delta x} \frac{1}{G(t(\xi))} d\xi \quad (2.30)$$

Ici, nous pouvons utiliser un algorithme d'intégration du type Runge-Kutta pour résoudre numériquement l'équation intégrale Eq. (2.30).

Selon la figure 2.1 et Eq. (2.27), nous avons :

$$\left\{ \begin{array}{l} n(x_0, t_j) = \frac{R_n(t_j)}{G(t_j)} \\ n(x_1, t_j) = n(x_0, t_{j-1}) \\ \vdots \\ n(x_i, t_j) = n(x_{i-1}, t_{j-1}) \\ \vdots \\ n(x_N, t_j) = n(x_{N-1}, t_{j-1}), \forall j = 1, 2, \dots \end{array} \right. \quad (2.31)$$

On pose :

$$\tilde{n}(t_j) = \begin{bmatrix} n(x_0, t_j) \\ n(x_1, t_j) \\ \vdots \\ n(x_N, t_j) \end{bmatrix}, \quad A = \begin{bmatrix} 0 & \dots & \dots & \dots & 0 \\ 1 & \ddots & & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \dots & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad B = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Alors le bilan de population discrétisé s'écrit sous forme d'une équation de récurrence :

$$\tilde{n}(t_j) = A\tilde{n}(t_{j-1}) + B\frac{R_n(t_j)}{G(t_j)} \quad (2.32)$$

où l'instant  $t_j$  est calculé par Eq. (2.30).

On peut calculer approximativement la concentration du solide :

$$C_s(t_j) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty x^3 n(x, t_j) dx \approx \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} [x_i^3 n(x_i, t_j) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t_j)] \quad (2.33)$$

En combinant avec le bilan de matière et le bilan d'énergie, nous pouvons calculer les temps discrétisés par Eq. (2.30).

Sachant que le taux de croissance  $G(t)$  est toujours positif selon les hypothèses, nous pouvons introduire le système des moments en faisant un changement de temps afin de calculer les temps discrétisés, alors le modèle discrétisé du système s'écrit

sous forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dt(\tau)}{d\tau} = \frac{1}{G(t(\tau))} \\ \frac{d\mu_3(t(\tau))}{d\tau} = 3\mu_2(t(\tau)) \\ \frac{d\mu_2(t(\tau))}{d\tau} = 2\mu_1(t(\tau)) \\ \frac{d\mu_1(t(\tau))}{d\tau} = \mu_0(t(\tau)) \\ \frac{d\mu_0(t(\tau))}{d\tau} = \frac{R_n(t(\tau))}{G(t(\tau))} \\ \sum_{i=1}^3 Cp_i n_i(t(\tau)) \frac{dT_{cr}(t(\tau))}{d\tau} = -\Delta H_c V_T \frac{dC_s(t(\tau))}{dx} - \frac{UA(T_{cr}(t(\tau)) - T_{de}(t(\tau)))}{G(t(\tau))} \end{array} \right. \quad (2.34)$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_s(t(\tau)) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t(\tau)) \\ C(t(\tau)) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t(\tau))}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t(\tau))} \end{array} \right. \quad (2.35)$$

Connaissant les valeurs initiales des variables d'état, on peut calculer leurs valeurs à  $t_j$  en résolvant les ODEs dans le modèle avec les conditions suivantes :

$$t(\tau = 0) = t_0 \quad (2.36)$$

$$t(\tau = x_j) = t_j \quad (2.37)$$

La variation de la DTC discrétisé suivant la courbe caractéristique n'est pas une approximation numérique, mais plutôt une autre représentation du modèle. Cela signifie que le modèle discrétisé représente exactement la DTC à chaque taille discrétisée sans erreur numérique.

### 2.2.3.2 Cas de la croissance taille-dépendante

Dans le cas de la croissance taille-dépendante, nous étudions le modèle du taux de croissance présenté dans la section 1.2.5.2.

l'EBP Eq. (1.2) s'écrit :

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + G(x, t) \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} + n(x, t) \frac{\partial G(x, t)}{\partial x} = 0 \quad (2.38)$$

La dérivation totale de  $n(x, t)$  par rapport à  $t$  est exprimée par :

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \frac{dx}{dt} \quad (2.39)$$

La courbe caractéristique défini dans le plan- $xt$  satisfait la relation :

$$\frac{dx}{dt} = G(x, t) \quad (2.40)$$

Selon Eq. (2.39) et Eq. (2.40), la variation de  $n(x, t)$  par rapport à  $t$  suivant la courbe caractéristique est exprimée par :

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + G(x, t) \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} = -n(x, t) \frac{\partial G(x, t)}{\partial x} \quad (2.41)$$

Ainsi la variation de  $n(x, t)$  suivant des courbes caractéristiques est réduite à deux EDOs :

$$\frac{dx}{dt} = G(x, t) \quad (2.42)$$

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = -n(x, t) \frac{\partial G(x, t)}{\partial x} \quad (2.43)$$

Dans le cas où le taux de croissance est le produit de deux fonctions indépendantes selon Eq. (1.14), Eq. (2.43) se réécrit sous une forme encore plus simple :

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = -n(x, t) G_t(t) \frac{dG_l(x)}{dx} = -\frac{n(x, t)}{G_l(x)} \frac{dG_l(x)}{dt} \quad (2.44)$$

ou encore :

$$\frac{d(n(x, t)G_l(x))}{dt} = 0 \quad (2.45)$$

Afin de discrétiser le modèle, nous introduisons une nouvelle variable  $l$  avec la définition :

$$\frac{dx}{dl} = G_l(x(l)) \quad (2.46)$$

$$x(l = 0) = 0 \quad (2.47)$$

Eq. (2.42) et Eq. (2.45) sont reformulées par :

$$\frac{dl}{dt} = G_t(t) \quad (2.48)$$

$$\frac{dx}{dl} = G_l(x) \quad (2.49)$$

$$\frac{d(n(x, t)G_l(x))}{dt} = 0 \quad (2.50)$$

Le taux de croissance  $G_t(t)$  est indépendant de  $l$ , d'après Eq. (2.48) les courbes caractéristiques sont parallèles suivant la direction de  $l$  sur le plan- $lt$ . La nouvelle

variable  $l$  est discrétisé par le pas constant  $\Delta l$ , et la taille de cristaux discrétisé est calculé analytiquement ou numériquement par Eq. (2.49).

Nous supposons que Eq. (2.46) peut être calculé explicitement, et la solution  $x = f(l)$ , le modèle discrétisé est exprimé par :

$$n(x_i, t_j)G_l(x_i) = n(x_{i-1}, t_{j-1})G_l(x_{i-1}) \quad (2.51)$$

$$x_i = f(l_i), \quad i = 1, 2, \dots, N \quad (2.52)$$

$$n(x_0, t_j) = \frac{R_n(t_j)}{G(0, t_j)} \quad (2.53)$$

$$t_j = t_{j-1} + \int_{(j-1)\Delta l}^{j\Delta l} \frac{1}{G_t(t(\xi))} d\xi \quad (2.54)$$

où  $l_i \in L$ ,  $L = [l_1, l_2, \dots, l_N]^T$ ,  $l_i - l_{i-1} = \Delta l$ .

$C_s$  défini par Eq. (1.6) est approximé par la DTC discrétisée :

$$C_s(t_j) = \frac{K_v \rho_s}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} [(x_i^3 n(x_i, t_j) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t_j))(x_{i+1} - x_i)] \quad (2.55)$$

## 2.3 Simulations numériques en boucle ouverte

### 2.3.1 Exemple du cas 1-D

Nous allons d'abord simuler un procédé de cristallisation par refroidissement en batch et sans ensemencements afin d'illustrer l'efficacité de la MDC proposée d'une part, et d'autre part de mieux comprendre la dynamique du procédé. La température du cristalliseur a été diminuée de  $33K$  pendant une heure à travers une double-enveloppe de refroidissement. En effet la température du cristalliseur à  $321K$  est refroidie linéairement jusqu'à  $288K$  pendant une heure. La concentration initiale  $C(t)$  est supposée d'être à l'état saturé pour la température initiale. Les paramètres utilisés dans la simulation sont donnés dans le tableau 2.1.

Paramètre	Unité	Valeur
$a_{sat}$	$mol \cdot m^{-3}$	$7.492 \times 10^6$
$R$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	8.314
$\Delta H_f$	$J \cdot mol^{-1}$	32424.6
$V_T$	$m^3$	$0.3 \times 10^{-3}$
$M_s$	$Kg \cdot mol^{-1}$	$146.14 \times 10^{-3}$
$\rho_s$	$Kg \cdot m^{-3}$	1360
$K_v$	<i>sans dimension</i>	$\pi/6$
$Cp_1$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$Cp_2$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	372
$Cp_3$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$Cp_{de}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$\Delta H_c$	$J \cdot mol^{-1}$	$-48 \times 10^3$
$U$	$J \cdot m^{-2} \cdot K^{-1} \cdot s^{-1}$	$1 \times 10^3$
$A$	$m^2$	0.022
$a_{n_1}$	$[nb] \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$	$1.5 \times 10^{12}$
$b_{n_1}$	<i>sans dimension</i>	1.063
$K_{n_2}$	$\frac{[nb] \cdot m^{3(I_{n_2} + J_{n_2} - 1)} \cdot mol^{-(I_{n_2} + J_{n_2})}}{s}$	$1.44 \times 10^3$
$I_{n_2}$	<i>sans dimension</i>	1.968
$J_{n_2}$	<i>sans dimension</i>	1
$J$	<i>sans dimension</i>	2.00
$K_c$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$1.57 \times 10^{-2}$
$K_d$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$

TABLEAU 2.1 – Paramètres pour le modèle 1-D

Les conditions initiales sont fixées comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} C(0) = 39.64 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3} \\ C_s(0) = 0 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3} \\ T_{cr}(0) = 321K \\ T_{de}(0) = 321K \\ \mu_0(0) = 0 \\ \mu_1(0) = 0 \\ \mu_2(0) = 0 \\ \mu_3(0) = 0 \end{array} \right. \quad (2.56)$$

### 2.3.1.1 Méthode des moments

Dans un premier temps nous voulons étudier la dynamique du système en simulant les moments d'ordre 0 - 3 à partir des EDOs Eqs. (2.12). La figure 2.2 montre l'évolution des moments, la figure 2.3 et la figure 2.4 représentent l'évolution de du taux de nucléation et celle du taux de croissance, respectivement. La figure 2.5 illustre l'évolution de la concentration du soluté  $C$  en fonction de la température du cristalliseur  $T_{cr}$ .

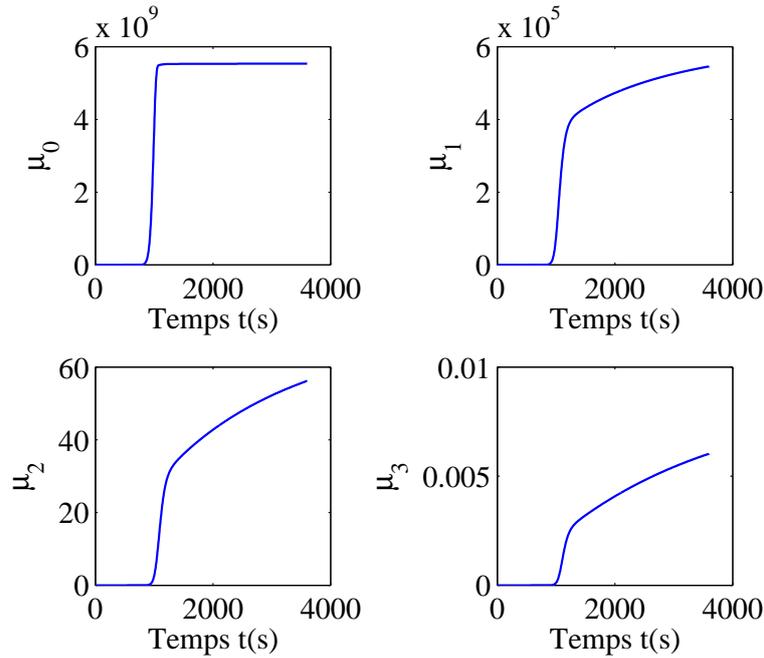


FIGURE 2.2 – L'évolution des moments

### 2.3.1.2 Comparaison des résultats de simulation par la MDC et la MDF

On considère d'abord un cas spécifique pour lequel on peut avoir la solution exacte du système des moments d'ordre 0 – 3. Nous allons comparer la MDC et la MDF basées sur la solution exacte afin de choisir la meilleur méthode.

Pour comparer les méthodes, nous faisons les hypothèse suivantes :

- la sursaturation est constante :  $\Delta C = C - C_{sat}$
- la nucléation primaire est négligeable
- le coefficient de nucléation secondaire  $J_{n_2} = 1$ .

Selon ces hypothèses et Eq. (1.11), le taux de croissance  $G$  est constant, le système des moments Eq. (2.12) devient :

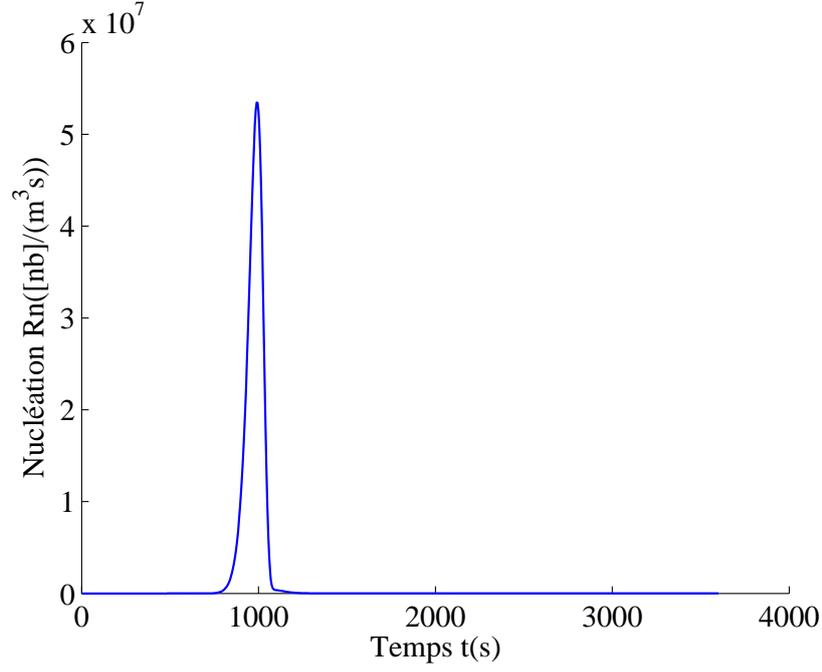


FIGURE 2.3 – L'évolution de la nucléation

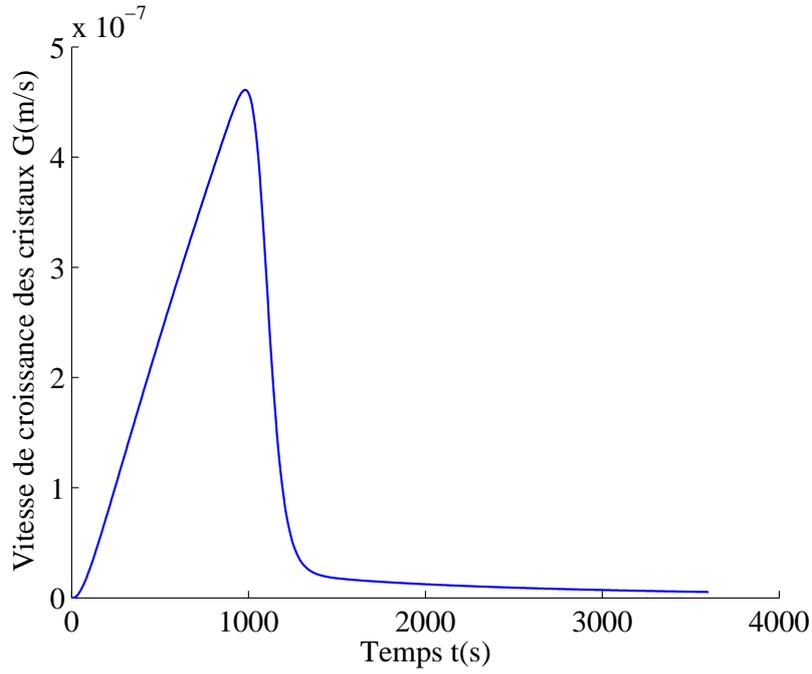


FIGURE 2.4 – L'évolution de la croissance

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\mu_3(t)}{dt} = 3G\mu_2(t) \\ \frac{d\mu_2(t)}{dt} = 2G\mu_1(t) \\ \frac{d\mu_1(t)}{dt} = G\mu_0(t) \\ \frac{d\mu_0(t)}{dt} = K_{n_2} \Delta C^{I_{n_2}} \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t) \end{array} \right. \quad (2.57)$$

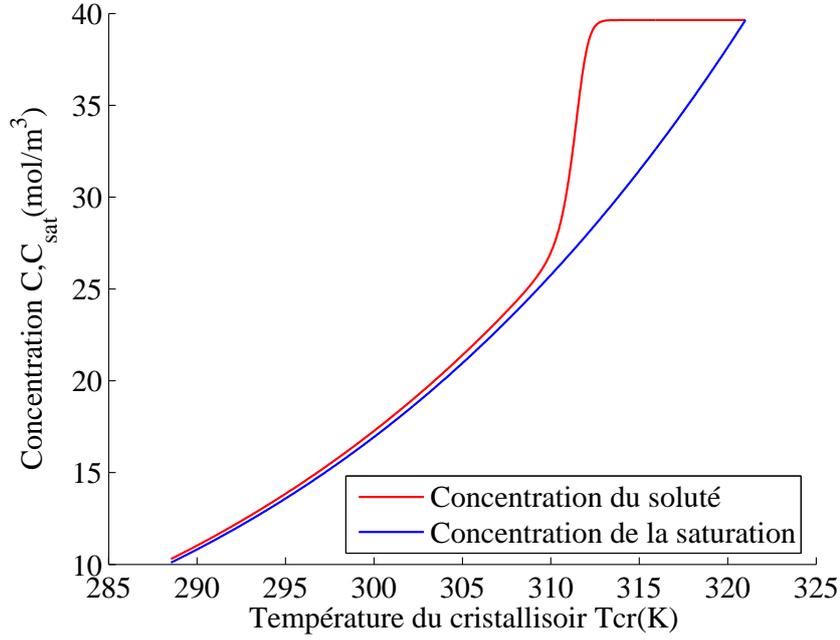


FIGURE 2.5 – L'évolution des concentration

avec la condition initiale :

$$\begin{cases} \mu_3(0) = a \\ \mu_2(0) = b \\ \mu_1(0) = c \\ \mu_0(0) = d \end{cases} \quad (2.58)$$

Nous avons une équation différentielle linéaire d'ordre 4 pour  $\mu_3(t)$  d'après Eq. (2.57).

$$\frac{d^4 \mu_3(t)}{dt^4} = K^4 \mu_3(t) \quad (2.59)$$

avec :

$$k = \left[ \frac{K_v \rho_s}{M_s} 6G^3 K_{n_2} \Delta C^{I_{n_2}} \right]^{1/4} \quad (2.60)$$

Nous pouvons trouver la solution exacte de  $\mu_3$  à partir du Eq. (2.59) :

$$\begin{aligned} \mu_3(t) = & \frac{ak^2 - 6G^2c}{2k^2} \cos kt + \frac{3Gbk^2 - 6G^3d}{2k^3} \sin kt \\ & + \frac{ak^3 - 3Gbk^2 + 6G^2ck - 6G^3d}{4k^3} e^{-kt} \\ & + \frac{ak^3 + 3Gbk^2 + 6G^2ck + 6G^3d}{4k^3} e^{kt} \end{aligned} \quad (2.61)$$

Dans ce cas, la DTC dans Eq. (2.23) peut s'écrire :

$$n(x, t) = \begin{cases} n_0(x - Gt), & x \geq Gt \\ \frac{K_{n_2} \Delta C^{I_{n_2}} K_v \rho_s \mu_3 (t - \frac{x}{G})}{M_s G}, & x < Gt \end{cases} \quad (2.62)$$

Ici, nous comparons les solutions obtenues par les méthodes numériques avec la solution exacte. Une cristallisation en batch avec l'ensemencement qui satisfait les hypothèses a été simulée durant une heure. La sursaturation  $\Delta C$  est supposée de  $4 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ . La distribution de l'ensemencement est illustrée par la figure 2.6.

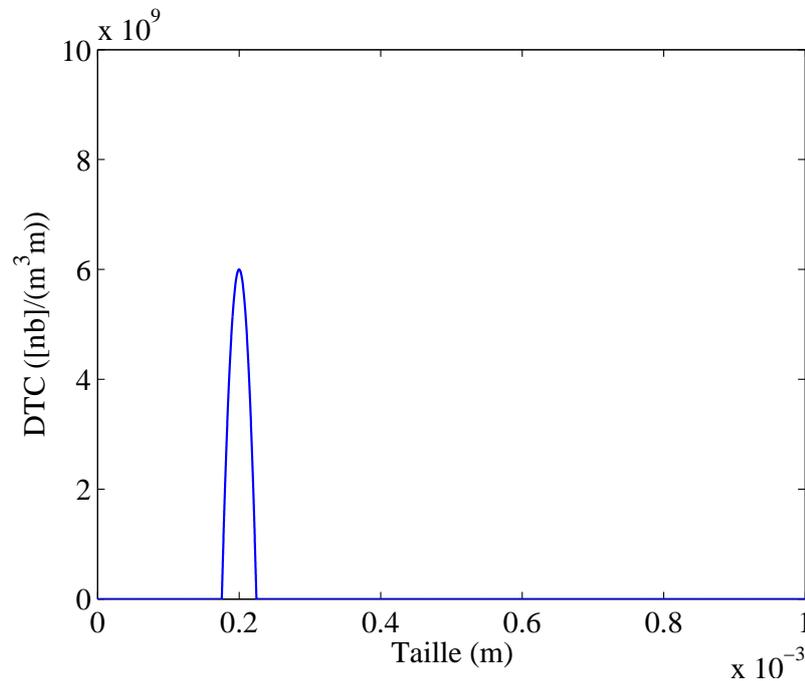


FIGURE 2.6 – La distribution de l'ensemencement des cristaux

Les valeurs initiales des moments d'ordre 0 – 3 sont calculées à partir de la distribution de l'ensemencement :

$$\begin{cases} \mu_3(0) = 1.58 \times 10^{-6} \\ \mu_2(0) = 0.008 \\ \mu_1(0) = 39.19 \\ \mu_0(0) = 1.96 \times 10^5 \end{cases} \quad (2.63)$$

La figure 2.7 et la figure 2.8 représentent la DTC à 1800s et la DTC finale respectivement, obtenues par la MDF et par la MDC. Nous pouvons constater que

la DTC exacte et celle obtenue par la MDC sont bien confondues, alors que l'erreur causée par la MDF est bien visible. Il existe une diffusion d'erreurs sur la profile de l'ensemencement.

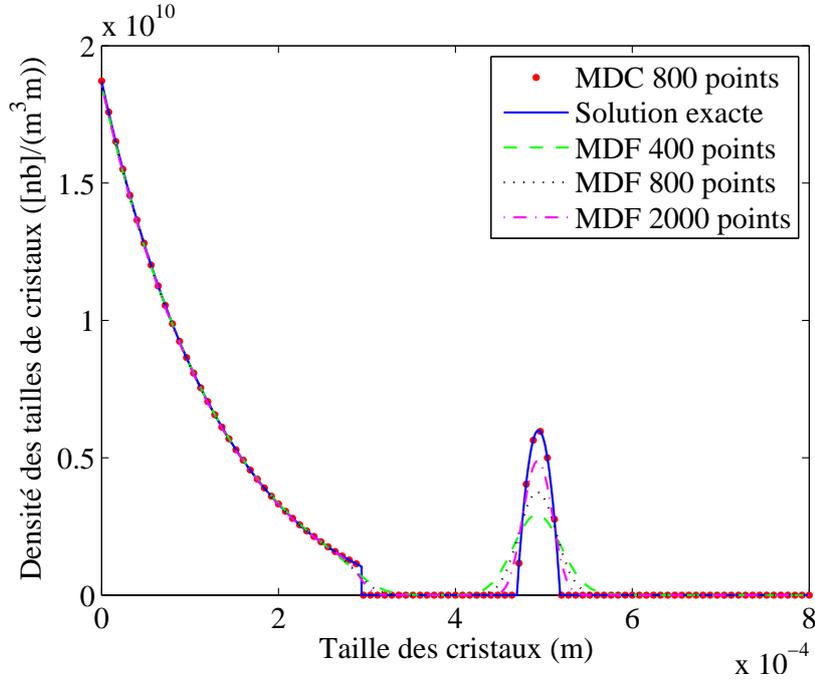


FIGURE 2.7 – Comparaison de la DTC et de la MDF à 1800s

Nous revenons sur la simulation du procédé de cristallisation par refroidissement en batch sans ensemencements. La température du cristalliseur a été diminuée de  $33K$  pendant une heure par une double-enveloppe de refroidissement. La température du cristalliseur à  $321K$  est refroidie linéairement jusqu'à  $288K$  pendant une heure.

La figure 2.9 et la figure 2.10 présentent l'évolution de la DTC par rapport au temps, simulée par la MDC et la MDF respectivement.

La figure 2.11 représente la comparaison des DTCs finales obtenues par la MDC et par la MDF. Nous pouvons observer que les DTCs finales par la MDC avec les différents maillages (400 points, 800 points) sont identiques. Concernant la simulation par la MDF, plus petit est le pas de discrétisation, plus proche le profil final obtenu est de celui par la MDC. Néanmoins le temps de calcul demandé par la MDF est considérablement plus important.

Nous trouvons une comparaison du temps de calcul entre les deux méthodes dans le tableau 2.2.

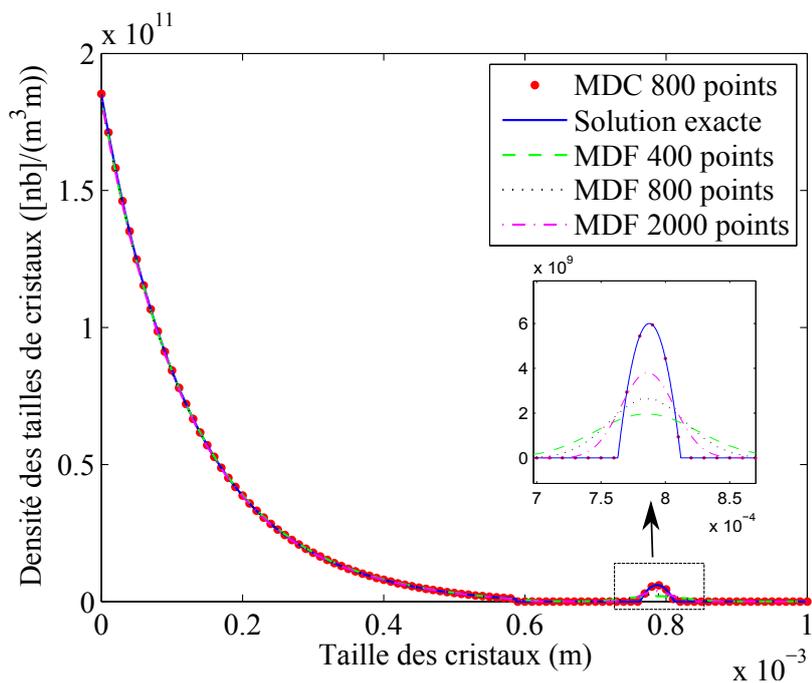


FIGURE 2.8 – Comparaison de la DTC et de la MDF à 3600s

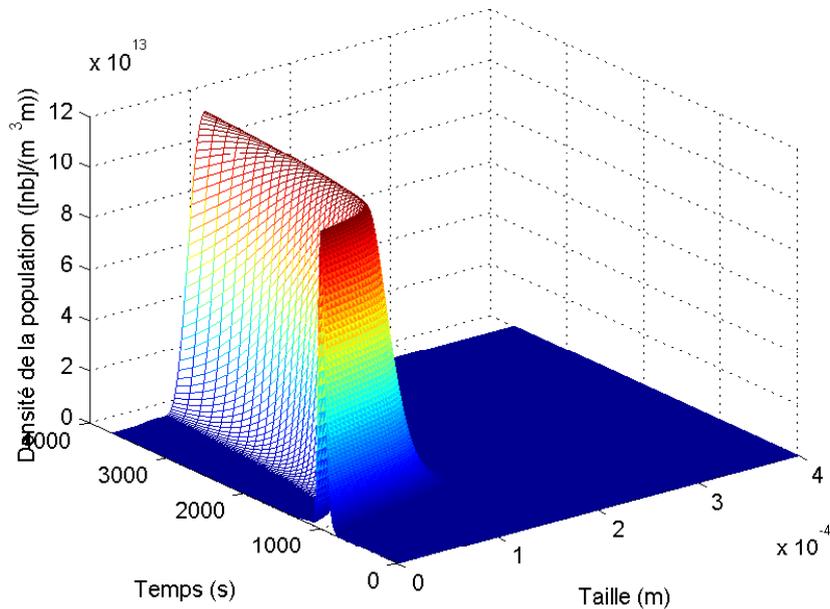


FIGURE 2.9 – L'évolution de la DTC simulée par la MDC (cas de 1-D)

Nous donnons aussi un exemple de la MDC utilisée dans le contrôle de la DTC. Nous considérons une distribution désirée, et nous utilisons la méthode d'inverse

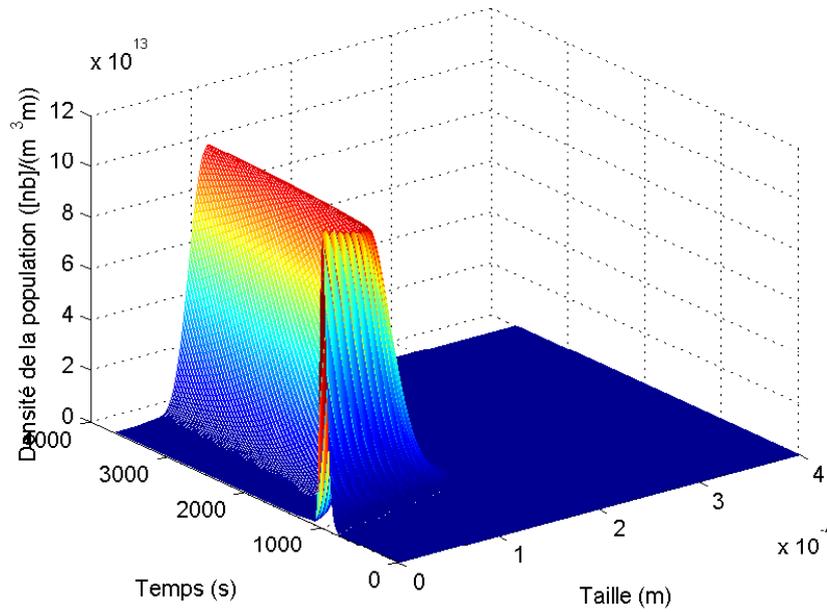


FIGURE 2.10 – L'évolution de la DTC simulée par la MDF (cas de 1-D)

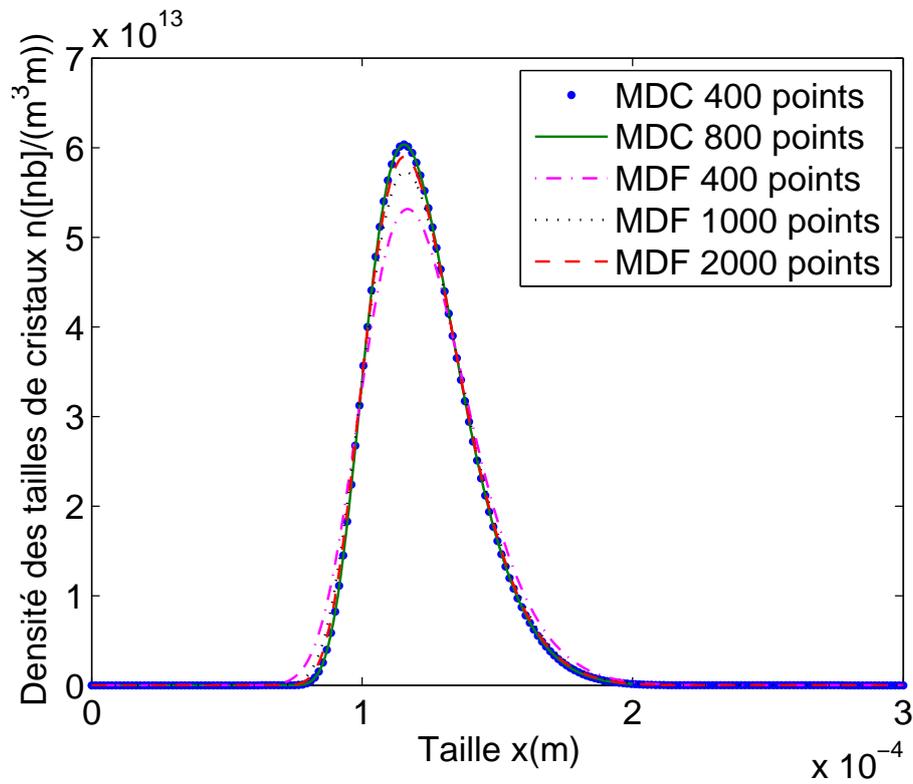


FIGURE 2.11 – Comparaison des DTCs finales (cas de 1-D)

Méthode	temps de calcul
MDC(400 points)	17s
MDC(800 points)	34s
MDF(400 points)	26s
MDF(1000 points)	120s
MDF(2000 points)	530s

TABLEAU 2.2 – Comparaison du temps de calcul

pour calculer la commande à appliquer au système. La simulation du système contrôlé est faite avec la MDC. La figure 2.12 présente la comparaison entre la distribution désirée et celle obtenue avec le contrôle calculé. Nous constatons que les deux profils coïncident bien, ce qui nous permet de confirmer que la MDC est robuste et efficace pour simuler le procédé commandé en respectant les propriétés physiques.

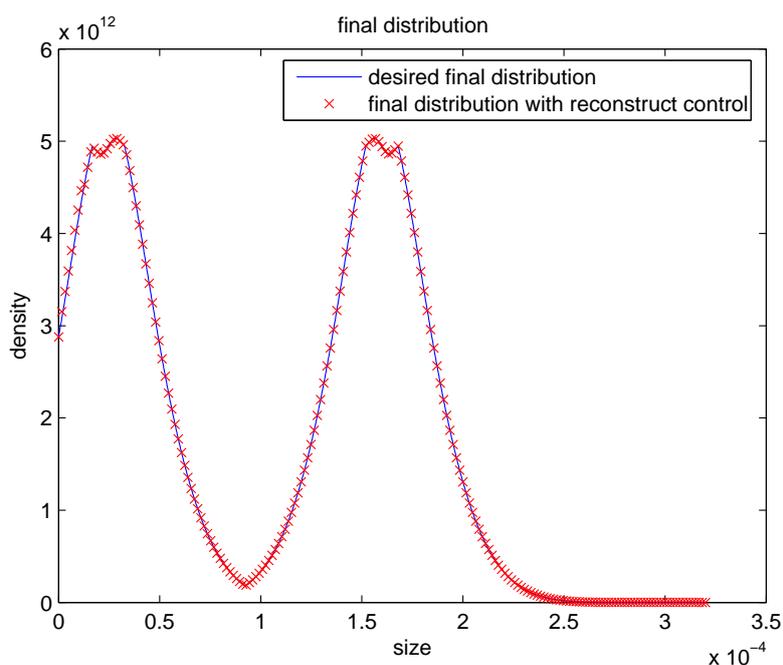


FIGURE 2.12 – La comparaison entre la distribution désirée et celle simulée par la MDC

En comparant les deux méthodes, nous avons constaté que la MDC est plus précise que la MDF. Nous pouvons obtenir de précis résultat en utilisant très peu de points discrétisés utilisant la MDC. De plus, le tableau 2.2 nous montre que la résolution numériques obtenue par la MDC est plus rapide pour pouvoir être utilisé

dans le contrôle en ligne. Par ailleurs, le modèle discret a une partie linéaire avec une structure de la matrice sur-diagonale. Nous avons choisi le modèle discrétisé par la MDC pour la suite de nos travaux.

### 2.3.2 Sensibilité des paramètres

En pratique les paramètres de nucléation sont souvent perturbés par l'environnement et des données de mesures sont aussi biaisées, nous devons donc analyser la sensibilité des paramètres. Dans un premier temps, nous pouvons étudier la sensibilité des paramètres du système en boucle ouverte par la simulation numérique.

Dans la suite nous avons simulé le procédé avec de différents paramètres. Parce que les cinétiques de nucléation et celles de croissance dépendent de la concentration du soluté et de la température du cristalliseur, il est raisonnable que le contrôle soit conçu pour suivre le courbe sur le plan  $C - T_{cr}$  illustré dans la figure 2.13.

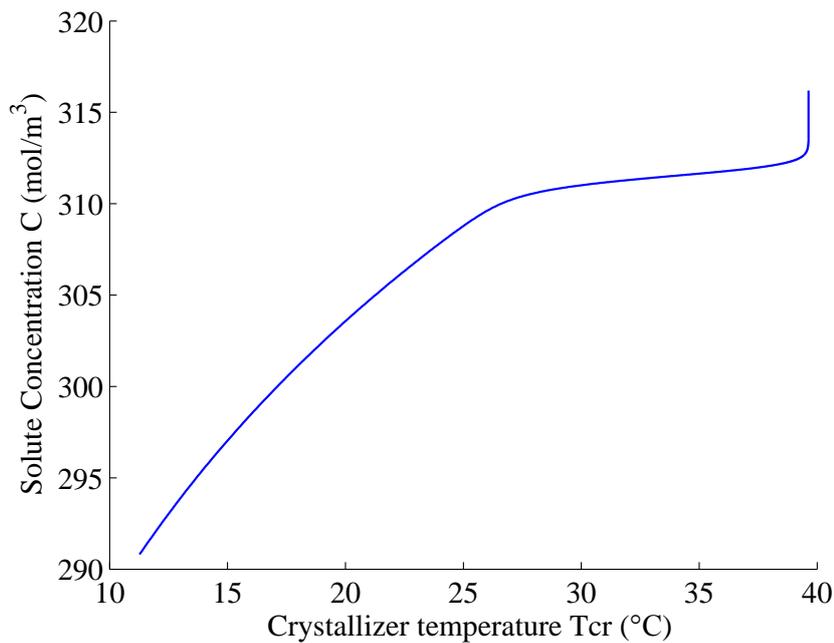


FIGURE 2.13 – La courbe du contrôle

Les paramètres nominaux sont définis par :

$$\theta_{nu} = [a_{n_1}, b_{n_1}, K_{n_2}, I_{n_2}]$$

Nous avons simulé le procédé avec ces trois jeux de paramètres :  $\theta_{nu}$ ,  $\theta_{nu} + 10\%\theta_{nu}$  et  $\theta_{nu} - 10\%\theta_{nu}$  respectivement.

L'évolution du taux de nucléation et la DTC finale sont affichées dans la figure 2.14 et la figure 2.15 respectivement pour les trois jeux de paramètres.

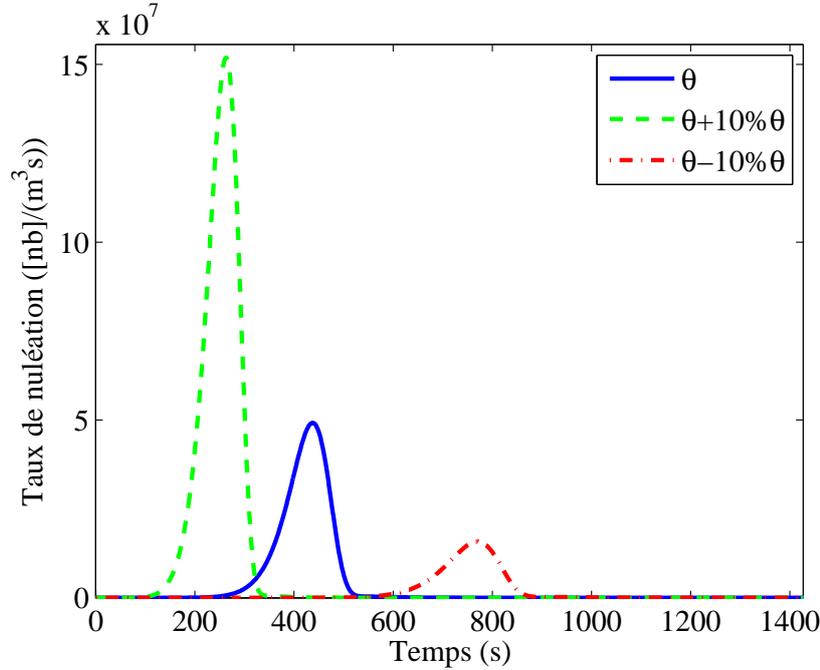


FIGURE 2.14 – L'évolution des taux de nucléation avec les trois jeux de paramètres

D'après ces figures, le taux de nucléation est très sensible à la variation des paramètres de nucléation. La variation de ces paramètres affecte aussi la DTC finale. En conclusion, la synthèse du contrôle de cristallisation doit tenir compte de la compensation de la perturbation des paramètres de nucléation.

## 2.4 Extension de MDC pour le modèle bidimensionnel

### 2.4.1 Introduction

Dans le cas du modèle avec des tailles multidimensionnelles, peu de méthodes numériques sont étudiées excepté la méthode des volumes finis. Cette méthode est largement utilisée en raison de sa présentation de la loi de conservation et de sa précision. Dans ce contexte, on peut citer plusieurs travaux : [Ma et al. \(2002\)](#) et [Gunawan et al. \(2004\)](#) ont simulé l'EBP multidimensionnelle en utilisant la méthode

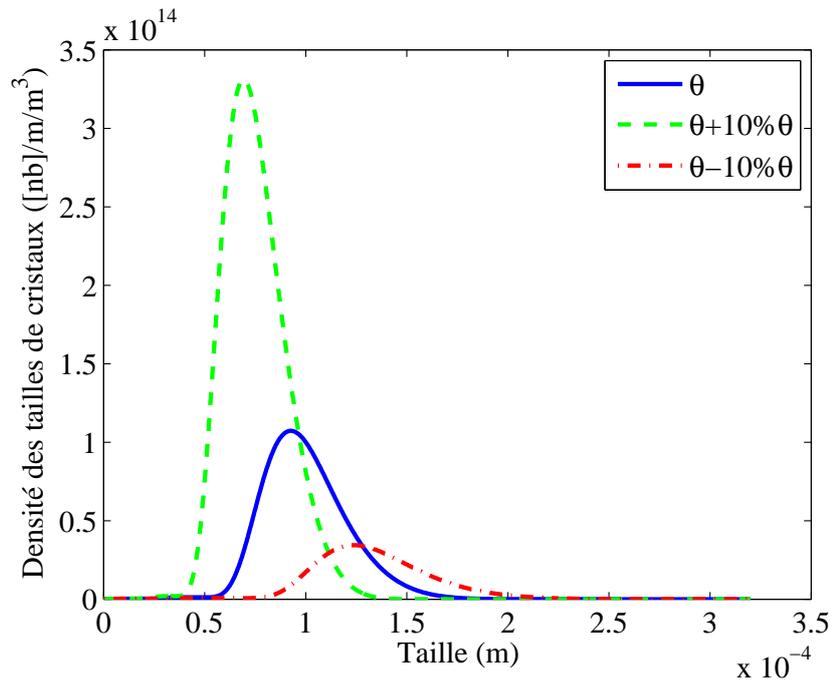


FIGURE 2.15 – La DTC finale avec les trois jeux de paramètres

des volumes fins de la haute résolution ; Puel *et al.* (2003) ont proposé un algorithme basé sur la méthode des classes dans la simulation de la cristallisation des tailles multidimensionnelles ; Briesen (2006) a proposé d'utiliser un modèle réduit pour simuler la distribution des tailles multidimensionnelles. Ici, nous nous proposons une autre méthode de simulation : la méthode des caractéristiques pour simuler le modèle bidimensionnel.

### 2.4.2 Modèle bidimensionnel (2-D)

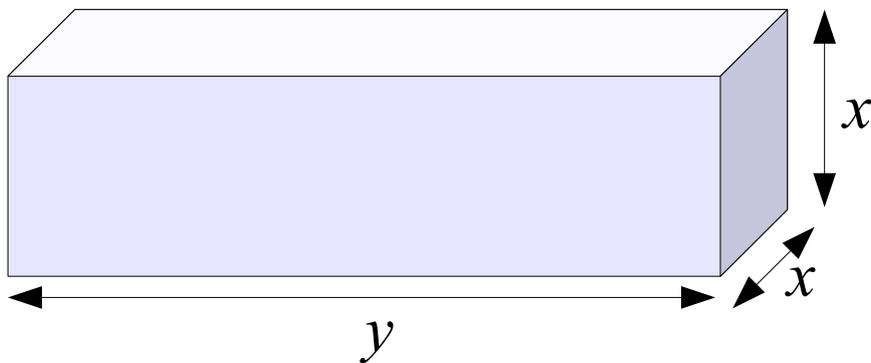


FIGURE 2.16 – Le cristal en taille bidimensionnelle

Dans le modèle 2-D, le cristal est supposé avoir la forme d'un parallélépipède rectangle, et avec deux surfaces carrées (voir la figure 2.16), dont le volume est exprimée par  $V_{cr} = x^2 \cdot y$ . Ainsi, il existe deux directions de croissance  $x$  et  $y$  avec les taux de croissance  $G_x(t)$  et  $G_y(t)$ , respectivement. Son modèle a été étudié dans [Puel \(1994\)](#), et l'EBP s'écrit :

$$\frac{\partial n(x, y, t)}{\partial t} + G_x(t) \frac{\partial n(x, y, t)}{\partial x} + G_y(t) \frac{\partial n(x, y, t)}{\partial y} = 0, \quad (2.64)$$

où  $(t) \in \mathbb{R}_+$ ,  $x \in [x_{\min}, x_{\max}]$ ,  $y \in [y_{\min}, y_{\max}]$ .

La condition initiale et la condition frontière de l'EBP que nous proposons d'étudier sont données par :

$$n(x, y, t_0) = n_0(x, y) \quad (2.65)$$

$$n(x_{\min}, y_{\min}, t) = \frac{R_n(t)}{G_y(t) \Delta l_x} \quad (2.66)$$

$$n(x \neq x_{\min}, y_{\min}, t) = 0 \quad (2.67)$$

$$n(x_{\min}, y \neq y_{\min}, t) = 0 \quad (2.68)$$

C'est-à-dire, la nucléation a lieu seulement sur la taille minimale des cristaux.

Les taux de croissance sont définis par :

$$G_x(t) = \frac{2M_s}{\rho_s} K_{c_1} \eta_1 (C(t) - C_{sat}(t))^{J_1} \quad (2.69)$$

$$G_y(t) = \frac{2M_s}{\rho_s} K_{c_2} \eta_2 (C(t) - C_{sat}(t))^{J_2} \quad (2.70)$$

La relation entre  $\eta_1$ ,  $\eta_2$ ,  $C(t)$  et  $C_{sat}(t)$  est le même que dans le cas 1-D :

$$\frac{K_{c_1}}{K_{d_1}} (C(t) - C_{sat}(t))^{J_1-1} \eta_1 + \eta_1^{\frac{1}{J_1}} - 1 = 0 \quad (2.71)$$

$$\frac{K_{c_2}}{K_{d_2}} (C(t) - C_{sat}(t))^{J_2-1} \eta_2 + \eta_2^{\frac{1}{J_2}} - 1 = 0 \quad (2.72)$$

Les cristaux ayant la forme de parallélépipède rectangle, la concentration du solide  $C_s(t)$  s'écrit :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty \int_0^\infty x^2 y \cdot n(x, y, t) dx dy \quad (2.73)$$

où  $K_v$  est égal à 1 pour les cristaux de parallélépipède rectangle.

Le modèle 1-D peut être considéré comme un cas particulier du modèle 2-D. Les autres équations, par exemple l'équation du bilan d'énergie et l'équation de la

nucléation qui sont indépendantes de la taille des cristaux, sont les même que dans le cas 1-D.

$$\sum_{i=1}^3 C_{p_i n_i}(t) \dot{T}_{cr}(t) = -\Delta H_c V_T \dot{C}_s(t) - UA(T_{cr}(t) - T_{de}(t)) \quad (2.74)$$

### 2.4.3 MDC pour le cas de tailles 2-D

La MDC est une méthode qui a démontré son efficacité pour la simulation du procédé de cristallisation dans le cas unidimensionnel. Dans le cas bidimensionnel, on suppose que le cristal présente une forme de parallélépipède rectangle et possède deux carrés et quatre faces rectangulaires. Dans ce cas, à notre connaissance l'utilisation de la MDC reste encore un challenge. Parce que le taux de croissance de deux dimensions de taille varie avec le temps, si les deux dimensions de taille sont discrétisées avec des pas réguliers, la méthode ne peut pas garantir que la courbe caractéristique traverse à tout moment discret le nœud de maille créé par le maillage rectangle. Ainsi, la solution numérique du système multidimensionnel sera étudiée en utilisant la MDC avec un maillage mouvant.

La MDC dans le cas 2-D est similaire à celle du cas 1-D. Les courbes caractéristiques sont définies par :

$$\frac{dx}{dt} = G_x(t) \quad (2.75)$$

$$\frac{dy}{dt} = G_y(t). \quad (2.76)$$

A partir d'Eq. (2.64), la variation de  $n$  par rapport à  $t$  suivant la courbe caractéristique s'écrit :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \cdot \frac{dx}{dt} + \frac{\partial n}{\partial y} \cdot \frac{dy}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \cdot G_x(t) + \frac{\partial n}{\partial y} \cdot G_y(t) = 0 \quad (2.77)$$

Ainsi l'équation du bilan de population est décrite par :

$$\frac{dx}{dt} = G_x(t) \quad (2.78)$$

$$\frac{dy}{dt} = G_y(t) \quad (2.79)$$

$$\frac{dn}{dt} = 0 \quad (2.80)$$

Notons que :

$$\frac{dx}{dy} = \frac{G_x(t)}{G_y(t)}$$

Cette équation dépend du temps  $t$ . Ainsi, entre deux instants différents, le rapport des pas de discrétisation dans  $x$  et dans  $y$  varie en fonction du temps. Dans ce cas, si nous construisons un maillage rectangulaire fixe dans le plan- $xy$  en discrétisant les deux variables  $x$  et  $y$  durant le temps d'évolution, nous ne pouvons pas garantir l'existence d'une courbe caractéristique qui passe par deux nœuds arbitraires adjacents diagonaux aux deux instants consécutifs.

Revenons aux équations de courbes caractéristiques Eq. (2.78) et Eq. (2.79). Les deux équations différentielles sont indépendantes de  $x$  et  $y$ , comme dans le cas 1-D. Cela signifie que les projections des courbes caractéristiques sont parallèles suivant la direction  $x$  dans le plan- $xt$  et suivant la direction  $y$  dans le plan- $yt$ . Autrement dit toutes les courbes caractéristiques partant des points discrétisés à l'instant  $t_{k-1}$  et arrivant aux points discrétisés à l'instant  $t_k$  ont la même longueur.

Formellement, nous introduisons deux nouvelles variables  $\Delta x$  et  $\Delta y$ , fonctions de  $t$ , de façon suivante :

$$\Delta x(t_0) = 0 \tag{2.81}$$

$$\Delta x(t) = \int_{t_0}^t G_x(\tau) d\tau \tag{2.82}$$

$$\Delta y(t_0) = 0 \tag{2.83}$$

$$\Delta y(t) = \int_{t_0}^t G_y(\tau) d\tau. \tag{2.84}$$

Alors nous pouvons écrire la solution de cette EDP, par la MDC, sous la forme suivante :

$$n(x, y, t_0) = n(x + \Delta x(t), y + \Delta y(t), t) \tag{2.85}$$

$$\Delta x(t) = \int_{t_0}^t G_x(\tau) d\tau \tag{2.86}$$

$$\Delta y(t) = \int_{t_0}^t G_y(\tau) d\tau. \tag{2.87}$$

Pour obtenir la solution numérique, nous devons discrétiser les variables  $x$  et  $y$  dans le plan- $xy$ . Nous proposons que  $x$  soit discrétisé par un pas régulier constant  $\Delta x$  et que les tailles minimales et maximales de cristaux soient désignées par  $x_0$  et  $x_N$ , respectivement. En utilisant Eq. (2.85) et Eq. (2.86), la variable  $y$  est discrétisée par  $y_{j-1}(t_{k-1}), j = 1, \dots, M$ . Supposons aussi que les valeurs de  $n(x, y, t)$  sont connues à chaque nœud dans le plan- $xy$  à l'instant  $t_{k-1}$ . Étant donné  $\Delta x$  fixé, nous pouvons calculer le temps écoulé à l'aide de Eq. (2.86) et le pas déplacé des nœuds suivant

la direction de  $y$  partant de l'instant  $t_{k-1}$  à l'aide de Eq. (2.87). Ainsi le système discrétisé est gouverné par les équations de récurrence suivantes :

$$\begin{aligned} n(x_{i-1} + \Delta x, y_{j-1}(t_{k-1}) + \Delta y(t_{k-1}), t_k) &= n(x_{i-1}, y_{j-1}(t_{k-1}), t_{k-1}), & (2.88) \\ i &= 1, 2, \dots, N \\ j &= 1, 2, \dots, M \end{aligned}$$

$$\Delta y(t_{k-1}) = \int_{t_{k-1}}^{t_k} G_y(t) dt \quad (2.89)$$

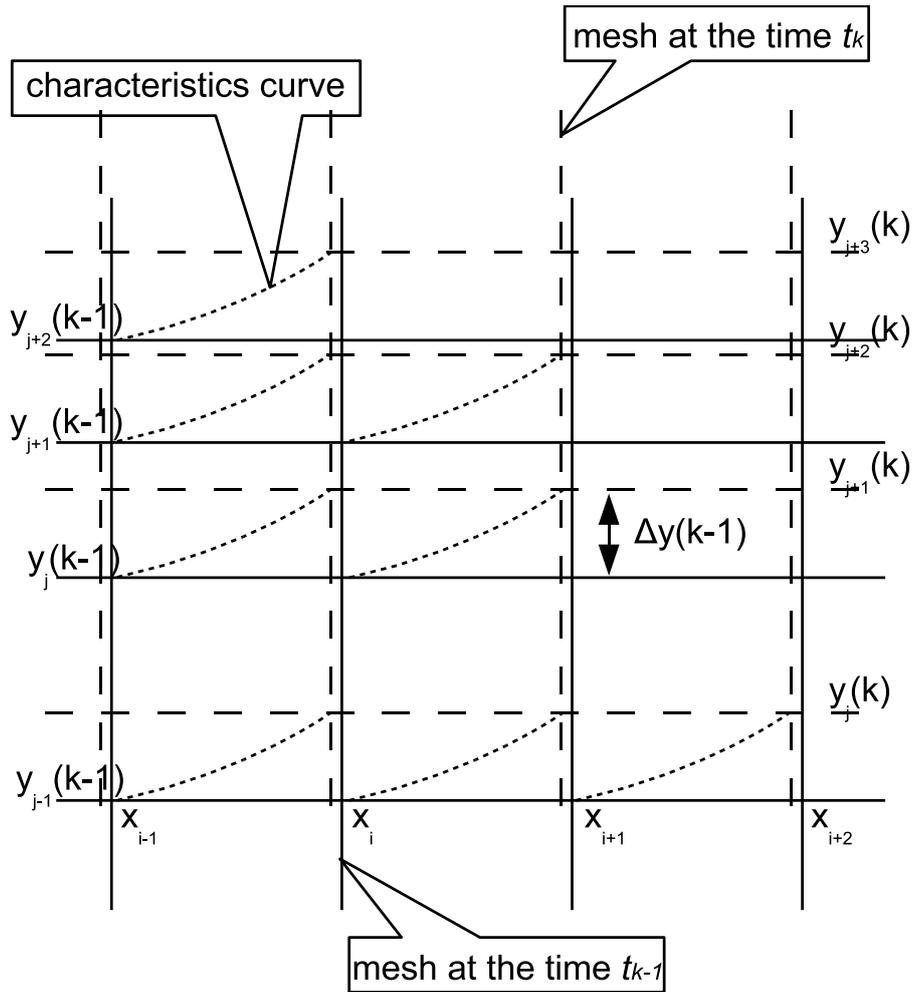
où  $t_k$  satisfait à  $\Delta x = \int_{t_{k-1}}^{t_k} G_x(\tau) d\tau$ .

Notons que  $\Delta y(t_{k-1})$  est indépendant de  $x$  et de  $y$ . Nous pouvons créer un maillage rectangulaire dans le plan- $xy$  avec le pas constant  $\Delta x$  pour  $x$ , et avec le pas  $\Delta y(t_{k-1})$  pour  $y$  à l'instant  $t_{k-1}$ , où  $\Delta y(t_{k-1}) = y_j(t_k) - y_{j-1}(t_{k-1})$ ,  $\forall j = 1, \dots, M$ . Cela garantit que la courbe caractéristique qui traverse le nœud  $(x_{j-2}, y_{j-2}(t_{k-2}))$  à l'instant  $t_{k-2}$  et le nœud  $(x_{j-1}, y_{j-1}(t_{k-1}))$  à l'instant  $t_{k-1}$  traverse aussi le nœud  $(x_j, y_j(t_k))$  dans le plan- $xy$  à l'instant  $t_k$  (voir la Fig. 2.17).

L'algorithme de calcul numérique que nous proposons est décrit comme suit :

1. Soit la densité  $n(x, y, t)$  connue à l'instant donné  $t_{k-1}$  ;
2. Donnons les tailles de cristaux discrétisées suivant  $x$ ,  $X = [x_0, x_1, \dots, x_N]$  avec le pas constant  $\Delta x$  à l'instant donné  $t_{k-1}$  ;
3. Donnons les tailles de cristaux discrétisées suivant  $y$  :  $Y(k-1) = [y_0(k-1), y_1(k-1), \dots, y_M(k-1)]$ , à l'instant donné  $t_{k-1}$  ;
4. Calculons le temps  $\Delta t_{k-1}$  passé de  $x_{i-1}$  à  $x_i$  dans le plan- $xt$  tel que  $t_k = t_{k-1} + \Delta t_{k-1}$  ;
5. Calculons le pas  $\Delta y_{k-1}$  passant de  $Y(k-1)$  à l'instant  $t_{k-1}$  vers l'instant suivant  $t_k$  dans le plan- $yt$  ;
6. Créons un nouveau maillage à l'instant  $t_k$  dans le plan- $xy$ ,  $X = [x_0, x_1, \dots, x_N]$  avec le pas  $\Delta x$ , et  $Y(k) = [y_0(k), y_0(k-1) + \Delta y_{k-1}, y_1(k-1) + \Delta y_{k-1}, \dots, y_N(k-1) + \Delta y_{k-1}]$  avec le pas  $\Delta y_{k-1}$  ;
7. Calculons la densité  $n$  à l'instant  $t_k$  en utilisant Eq. (2.88) et la condition frontière suivante

$$n(x_i \neq x_0, y_0(k), t_k) = 0, \quad n(x_0, y_j(k) \neq y_0(k), t_k) = 0,$$


 FIGURE 2.17 – Schéma de la méthode des caractéristiques dans le plan- $xy$ 

$$n(x_0, y_0(k), t_k) = \frac{R_n(t_k)}{G_y(t_k) \Delta l_x}.$$

Puisque le soluté dans la solution est d'une quantité finie, les cristaux ne peuvent pas s'accroître vers l'infini dans un intervalle de temps fini. Par conséquent on peut choisir des valeurs suffisamment grandes pour  $x_N$  et  $y_M$  de façon à recouvrir le support de la fonction densité  $n(x, y, t)$  dans le maillage.

#### 2.4.4 Exemple du cas 2-D

Dans le cas 2-D que nous considérons, nous avons simulé un procédé de cristallisation par refroidissement en batch avec l'ensemencement. La température du cristallisateur à  $321K$  est refroidie jusqu'à  $288K$  par une double-enveloppe de refroidissement. Les paramètres sont données dans le tableau 2.3 et dans le tableau 2.1.

Paramètre	Unité	Value
$J_1$	<i>sans dimension</i>	2.00
$J_2$	<i>sans dimension</i>	1.58
$K_{c_1}$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$1.57 \times 10^{-2}$
$K_{c_2}$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$7.18 \times 10^{-5}$
$K_{d_1}$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$
$K_{d_2}$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$

TABLEAU 2.3 – Paramètres pour le modèle 2-D

La figure 2.18 et la figure 2.19 représentent la DTC à 895s et la DTC finale à 7003s. Pour le maillage de  $400 \times 400$  points, le temps de calcul est de 127s avec un PC personnel. Dans ces figure, nous pouvons constatons le déplacement de la distribution d'ensemencement et la nucléation à la taille minimale.

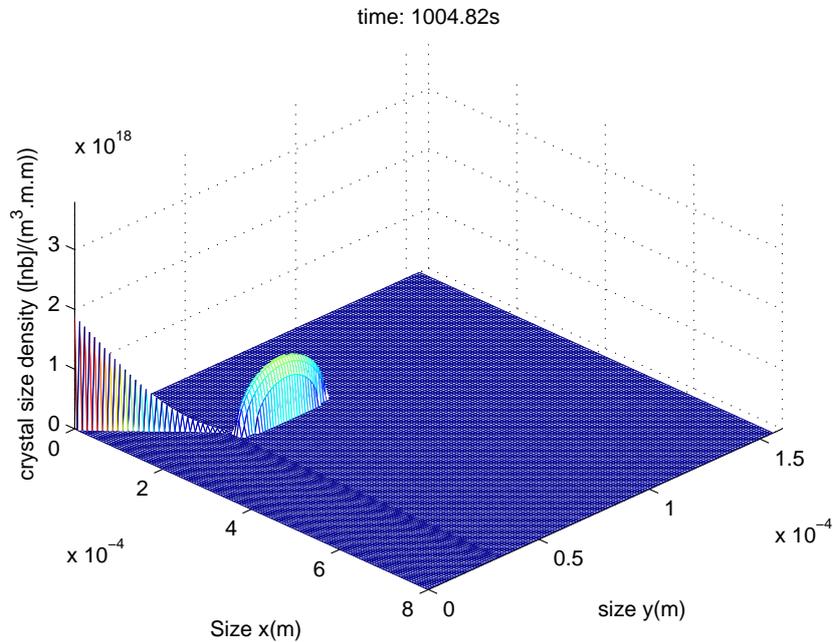


FIGURE 2.18 – La DTC simulée par la MDC à t=895s (cas de 2-D)

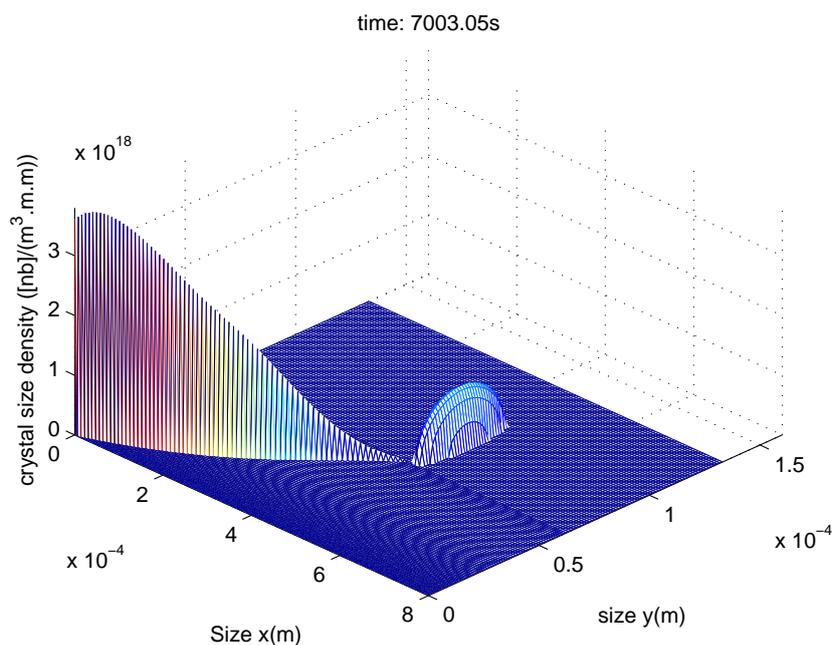


FIGURE 2.19 – La DTC finale simulée par la MDC (cas de 2-D)

## 2.5 Conclusions

La contribution de cette étude est de proposer une méthode numérique précise et non coûteuse afin de simuler le procédé de cristallisation. L'étude a été orientée vers le cas de formation de cristaux multidimensionnels. La méthode des caractéristiques avec le pas régulier a été introduite pour simuler le procédé de cristallisation dans le cas 1-D. Ensuite, la méthode a été étendue au cas de la taille des cristaux bidimensionnels en utilisant un maillage mouvant. L'approche proposée permet de simuler avec précision la dynamique du procédé. Nous avons obtenu de bonnes performances en temps de calcul : le temps de la simulation pour un modèle 2-D durant deux heures compte 127 secondes avec un maillage de  $400 \times 400$  points. Cette vitesse de calcul est suffisamment rapide pour une utilisation en temps réel dans l'objectif de concevoir des observateurs d'état et d'étudier les lois de contrôle, pour pouvoir commander la DTC finale.



# Chapitre 3

## Commandabilité du procédé de cristallisation en batch

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>58</b>
<b>3.2</b>	<b>Commandabilité du système discrétisé</b>	<b>58</b>
3.2.1	Notion fondamentale	58
3.2.2	Commandabilité du procédé de cristallisation en batch	60
3.2.3	Atteignabilité d'une DTC désirée	61
<b>3.3</b>	<b>Commandabilité du système basé sur l'EDP</b>	<b>67</b>
3.3.1	Commandabilité du système	67
3.3.2	Atteignabilité du système	68
<b>3.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>70</b>

---

## 3.1 Introduction

Quand nous concevons des schémas de contrôle pour un système, nous étudions d'abord la Commandabilité de ce système. L'analyse de la commandabilité peut intégrer les contraintes nécessaires du contrôle, et elle peut nous aider à proposer le contrôle adapté. Bien que beaucoup de méthodes de contrôle soient développées pour le procédé de cristallisation, des études sur la commandabilité du procédé sont rarissimes.

[Semino et Ray \(1995\)](#) ont étudié la commandabilité d'une classe de systèmes du bilan de population. Trois modèles distincts ont été analysés : un modèle dynamique de population humaine, le procédé de cristallisation et le procédé de polymérisation. En particulier ils ont montré la commandabilité d'un cristalliseur continu contrôlé par la concentration du soluté à l'entrée sans contrainte.

[Kalbasenka et al. \(2005\)](#) ont étudié la commandabilité d'un cristalliseur (feed-batch Draft-Tube crystallizer) avec l'évaporation du solvant. Une solution semi-analytique d'un modèle du bilan de population simplifié a été trouvée en utilisant la méthode des caractéristiques. La solution a révélé une forte dépendance sur les conditions initiales. À un stade ultérieur du procédé, la DTC peut être contrôlée dans une zone limitée, si on influence le terme de la nucléation de cristal en variant la fréquence de la turbine.

Dans notre travail, nous étudions le cristalliseur en batch avec le refroidissement, la commande est la température du cristalliseur. Nous allons étudier la commandabilité du modèle discrétisé dans deux cas : le cas de la croissance taille-indépendante ([Zhang et Xu \(2011\)](#)) et le cas de la croissance taille-dépendante. Puis, nous allons étudier la commandabilité à base du modèle décrit par l'EDP. A partir de cette étude, nous pouvons trouver géométriquement le domaine de la commandabilité du procédé. Ceci nous aide à construire la commande (ou le contrôle) permettant d'atteindre la DTC désirée.

## 3.2 Commandabilité du système discrétisé

### 3.2.1 Notion fondamentale

L'atteignabilité et la commandabilité sont des notions fondamentales dans la théorie du contrôle, il s'agit de la possibilité de conduire le système d'un état vers un autre état désiré avec la commande appropriée ([Coron \(2007\)](#)).

Soit un système de contrôle décrit par :

$$\dot{x} = f(x, u) \tag{3.1}$$

où  $x \in \mathbb{R}^n$  et  $u \in \mathbb{R}^m$  sont la variable d'état et la commande d'entrée, respectivement.

On définit l'atteignabilité et la commandabilité du système par la définition suivante :

**Définition 3.1** *Pour un système décrit sous forme Eq. (3.1), l'état  $x_1$  est atteignable partant de l'état  $x_0$ , s'il existe un temps fini  $T$  et une commande  $u(t) : [0, T] \rightarrow \mathbb{R}^m$ , tel que  $x(x_0, u, T) = x_1$ , où  $x(x_0, u, T)$  désigne l'état à l'instant  $T$  du système Eq. (3.1) partant de la condition initiale  $x_0$  et avec le contrôle  $u$  sur  $[0, T]$ .*

**Définition 3.2** *Un système décrit par Eq. (3.1) est commandable à l'état  $x_0$  s'il existe un voisinage  $V$  de  $x_0$ , tel que l'état  $x_1, \forall x_1 \in V$ , est atteignable de l'état  $x_0$ .*

Pour un système linéaire, la commandabilité du système est une propriété structurelle.

Considérons un système linéaire décrit par :

$$\dot{x}(t) = Ax(t) + Bu(t) \tag{3.2}$$

ou un système linéaire discret décrit par :

$$x(k+1) = Ax(k) + Bu(k) \tag{3.3}$$

avec  $A \in \mathbb{R}^n \times \mathbb{R}^n$ ,  $B \in \mathbb{R}^n \times \mathbb{R}^m$ . La commandabilité du système Eq. (3.2) ou Eq. (3.3) est déterminée par le critère de Kalman :

**Théorème 3.1 (Critère de Kalman)** *Le système Eq. (3.2) ou Eq. (3.3) est commandable si et seulement si :*

$$\text{rang}(M_C) = \left[ BAB \cdots A^{n-1}B \right] = n \tag{3.4}$$

La matrice  $M_C$  est appelée la matrice de commandabilité.

### 3.2.2 Commandabilité du procédé de cristallisation en batch

Nous étudions d'abord le modèle discrétisé présenté dans la section 2.2.3.1 pour la commandabilité du système. Pour simplifier l'étude, nous considérons que la température du cristalliseur  $T_{cr}$  est la commande du système, et la croissance  $G(t)$  et la nucléation  $R_n(t)$  dépendent de la concentration du solide  $C_s(t)$  et de la température du cristalliseur  $T_{cr}(t)$  selon Eq. (1.12), Eq. (1.10) Eq. (1.11), Eq. (1.7) et Eq. (1.1). Le modèle discrétisé peut s'écrire :

$$\begin{cases} \tilde{n}(t_j) = A\tilde{n}(t_{j-1}) + B \frac{R_n(C_s(t_j), T_{cr}(t_j))}{G(C_s(t_j), T_{cr}(t_j))} \\ C_s(t_j) = \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} (x_i^3 n(x_i, t_j) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t_j)) \end{cases} \quad (3.5)$$

avec :

$$\tilde{n}(t_j) = \begin{bmatrix} n(x_0, t_j) \\ n(x_1, t_j) \\ \vdots \\ n(x_N, t_j) \end{bmatrix}, \quad A = \begin{bmatrix} 0 & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\ 1 & \ddots & & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad B = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Ce modèle est un modèle discret similaire à Eq. (3.3). Pour étudier la commandabilité nous réécrivons le modèle sous la forme suivante :

$$\begin{cases} \tilde{n}'_x(t_j) = A' \tilde{n}'_x(t_{j-1}) + B' \frac{R_n(C_s(t_{j-1}), T_{cr}(t_{j-1}))}{G(C_s(t_{j-1}), T_{cr}(t_{j-1}))} \\ n(x_0, t_j) = \frac{R_n(C_s(t_j), T_{cr}(t_j))}{G(C_s(t_j), T_{cr}(t_j))} \\ C_s(t_{j-1}) = \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} (x_i^3 n(x_i, t_{j-1}) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t_{j-1})) \end{cases} \quad (3.6)$$

avec :

$$\tilde{n}'(t_j) = \begin{bmatrix} n(x_1, t_j) \\ n(x_2, t_j) \\ \vdots \\ n(x_N, t_j) \end{bmatrix}, \quad A = \begin{bmatrix} 0 & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\ 1 & \ddots & & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad B = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Dans ce modèle, la commande d'entrée  $T_{cr}$  affecte la partie  $\frac{R_n}{G}$ . Si nous pouvons évoluer cette partie avec  $T_{cr}$ , alors  $\frac{R_n}{G}$  jouerait le rôle de la commande  $u$  dans

Eq. (3.3). Ainsi nous obtenons un système linéaire discret, et nous pouvons appliquer le critère de Kalman pour déterminer la commandabilité du système.

Selon Eq. (3.4), la matrice  $M_C$  du système est une matrice diagonale. Nous concluons que le système est commandable si  $\frac{R_n}{G}$  joue le rôle de la commande  $u$ .

Il est évident qu'on ne peut pas considérer la partie  $\frac{R_n}{G}$  comme une commande sans contrainte. Par exemple elle ne peut pas prendre la valeur négative. En plus, en pratique la commande d'entrée  $T_{cr}$  est limitée dans un intervalle en raison de la sécurité, ceci aussi limite la commandabilité du système. Donc il faut chercher une autre approche directe pour étudier la zone atteignable du système.

### 3.2.3 Atteignabilité d'une DTC désirée

Dans cette section, nous allons résoudre deux problèmes :

- Etant donné une DTC désirée, comment savoir si cette DTC est atteignable ?
- Si cette DTC est atteignable, comment peut-on trouver la commande afin de conduire le procédé à la DTC désirée ?

Nous allons distinguer deux cas d'étude : la croissance taille-indépendante et la croissance taille-dépendante.

La définition de l'atteignabilité du procédé de la cristallisation en batch est donnée par :

**Définition 3.3** Une DTC  $n_d(x_i)$ ,  $\forall x_i \in X$  est atteignable, si on peut trouver une séquence de commande  $T_{cr}(t_j)$ ,  $j = 1, 2, \dots, K$ , tel que  $n(x_i, t_K) = n_d(x_i)$ ,  $\forall x_i \in X$  est satisfait.

#### 3.2.3.1 Cas de la croissance taille-indépendante

Dans le cas de la croissance taille-indépendante, nous itérons Eq. (3.5),

$$n(x_i, t_j) = n(x_{i-1}, t_{j-1}) = n(x_{i-2}, t_{j-2}) = \dots$$

Nous obtenons une autre représentation du modèle par suivant :

$$n(x_i, t_j) = \begin{cases} n(0, t_{j-i}) = \frac{R_n(t_{j-i})}{G(t_{j-i})}, & i < j \\ n(x_{i-j}, 0) = n_0(x_{i-j}), & i \geq j \end{cases} \quad (3.7)$$

pour  $i = 0, 1, \dots, N$  et  $j = 0, 1, \dots, K$ .

D'après cette représentation, nous constatons que la solution du modèle est séparée en deux parties : une partie est déterminée par la condition initiale et il est évident que nous ne pouvons pas contrôler cette partie avec la commande  $T_{cr}$ . L'autre partie est déterminée par la condition frontière, où le taux de nucléation et le taux de croissance sont reliés avec  $T_{cr}$ . C'est à dire que nous pouvons affecter cette partie par la commande d'entrée  $T_{cr}$ .

Ainsi, quand nous construisons la DTC désirée, elle doit contenir une partie guidée par la condition initiale, et nous écrivons la DTC désirée dans deux parties :

$$n_d(x_i) = \begin{cases} n_c(x_i), & i < K \\ n_0(x_{i-K}), & i \geq K \end{cases} \quad (3.8)$$

Selon l'expression de la DTC désirée, le problème consiste à trouver une séquence de commande d'entrée  $T_{cr}(t_j), j = 1, 2, \dots, K$ , tel que l'équation suivante soit satisfaite :

$$n(x_i, t_K) = \frac{R_n(t_{K-i})}{G(t_{K-i})} = n_c(x_i), \quad \forall i = 0, 1, \dots, K-1 \quad (3.9)$$

Nous constatons que l'état atteignable à l'instant  $t_K$  est relié aux variables d'état du système à  $t_{K-i}$ . Selon Eq. (1.12), Eq. (1.10) et Eq. (1.11),  $R_n(t_{K-i})$  et  $G(t_{K-i})$  dans Eq. (3.9) dépendent des variables  $C(t_{K-i}), T_{cr}(t_{K-i})$  et  $C_s(t_{K-i})$ .

Selon Eq. (3.7) la DTC à  $t_{K-i}$  est décrite par :

$$n(X, t_{K-i}) = \begin{bmatrix} n(x_0, t_{K-i}) \\ n(x_1, t_{K-i}) \\ \vdots \\ n(x_{K-i-1}, t_{K-i}) \\ n(x_{K-i}, t_{K-i}) \\ \vdots \\ n(x_{N-1}, t_{K-i}) \\ n(x_N, t_{K-i}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{R_n(t_{K-i})}{G(t_{K-i})} \\ \frac{R_n(t_{K-i-1})}{G(t_{K-i-1})} \\ \vdots \\ \frac{R_n(t_1)}{G(t_1)} \\ n_0(x_0) \\ \vdots \\ n_0(x_{N-(K-i)-1}) \\ n_0(x_{N-(K-i)}) \end{bmatrix} \quad (3.10)$$

La DTC à  $t_{K-i}$  est reliée avec  $R_n(t_{K-i}), G(t_{K-i})$  et avec les variables d'état aux instants antérieurs.

Nous supposons que pour tous les instants antérieurs à  $t_{K-i}$ , Eq. (3.9) est satisfaite, nous avons une équation entre la DTC et la DTC désirée :

$$n(x_j, t_{K-i-1}) = \begin{cases} n_c(x_{(K-i-1)-j}), & j < (K-i-1) \\ n_0(x_{j-(K-i-1)}), & j \geq (K-i-1) \end{cases} \quad (3.11)$$

Selon Eq. (2.23) et Eq. (3.8), nous obtenons la DTC désirée à  $t_{K-i}$  exprimée par :

$$n_d(X, t_{K-i}) = \begin{bmatrix} n_d(x_0, t_{K-i}) \\ n_d(x_1, t_{K-i}) \\ \vdots \\ n_d(x_{K-i-1}, t_{K-i}) \\ n_d(x_{K-i}, t_{K-i}) \\ \vdots \\ n_d(x_{N-1}, t_{K-i}) \\ n_d(x_N, t_{K-i}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} n_c(x_i) \\ n_c(x_{i+1}) \\ \vdots \\ n_c(x_{K-1}) \\ n_0(x_0) \\ \vdots \\ n_0(x_{N-(K-i)-1}) \\ n_0(x_{N-(K-i)}) \end{bmatrix} \quad (3.12)$$

Notons que, s'il existe une commande  $T_{cr}(t_{K-i})$  satisfaisant  $n(X, t_{K-i}) = n_d(X, t_{K-i})$ , alors  $C_s(t_{K-i})$  est calculée par Eq. (2.33) et Eq. (3.12) :

$$\begin{aligned} C_s(t_{K-i}) &= C_s^d(t_{K-i}) \\ &= \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \left\{ \sum_{j=0}^{K-i-2} [x_j^3 n_c(x_{j+i}) + x_{j+1}^3 n_c(x_{j+i+1})] \right. \\ &\quad + x_{K-i-1}^3 n_c(x_{K-1}) + x_{K-i}^3 n_0(x_0) \\ &\quad \left. + \sum_{j=K-i}^{N-1} [x_j^3 n_0(x_{j-K+i}) + x_{j+1}^3 n_0(x_{j-K+i+1})] \right\} \end{aligned} \quad (3.13)$$

où  $C_s^d(t_{K-i})$  est la concentration du solide désirée à  $t_{K-i}$  calculée à partir de la DTC désirée.

La variable  $C(t_{K-i})$  est calculée par Eq. (1.7) :

$$C(t_{K-i}) = C_d(t_{K-i}) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s^d(t_{K-i})}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s^d(t_{K-i})} \quad (3.14)$$

où  $C_d(t_{K-i})$  est la concentration du soluté désirée à  $t_{K-i}$  calculée par la DTC désirée.

La variable de commande  $T_{cr}(t_{K-i})$  est la seule variable inconnue dans Eq. (3.9). Nous devons vérifier si Eq. (3.9) admet une solution de  $T_{cr}(t_{K-i})$ . Ainsi le problème d'atteignabilité devient le problème d'existence de solution : si  $\forall i < K$ , Eq. (3.9) a une solution de  $T_{cr}^d(t_{K-i})$ , alors la DTC désirée est atteignable. Sinon, la DTC désirée ne sera pas atteignable. Nous résumons le résultat par la proposition suivante (Zhang *et al.* (2010b)) :

**Proposition 3.1** Une DTC désirée définie par Eq. (3.8) est atteignable si pour chaque  $i = 0, 1, \dots, K-1$ , l'équation non-linéaire algébrique possède une solution

de  $T_{cr}(t_{K-i})$  :

$$\frac{R_n(t_{K-i})}{G(t_{K-i})} = n_c(x_i) \quad (3.15)$$

avec :

$$\begin{aligned} C_{sat}(t_{K-i}) &= a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t_{K-i})}\right) \\ R_n(t_{K-i}) &= a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C_d(t_{K-i})}{C_{sat}(t_{K-i})}\right)}\right) \\ &\quad + K_{n_2} (C_d(t_{K-i}) - C_{sat}(t_{K-i}))^{I_{n_2}} C_s^d(t_{K-i})^{J_{n_2}} \\ G(t_{K-i}) &= \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C_d(t_{K-i}) - C_{sat}(t_{K-i}))^{J_2} \end{aligned}$$

où  $C_s^d(t_{K-i})$  et  $C_d(t_{K-i})$  sont définis par Eq. (3.13) et Eq. (3.14) respectivement.

Nous remarquons que si nous pouvons trouver une séquence de contrôle  $T_{cr}(t_j)$ ,  $j = 1, 2, \dots, K$  tel que la DTC désirée soit atteignable, alors nous pouvons calculer le taux de croissance  $G(t)$  à chaque instant  $t_j$ , puisque  $G(t)$  dépend seulement  $T_{cr}(t)$  et  $C_s(t)$  qui sont connues pour une DTC désirée. Dans ce Cas, nous pouvons calculer approximativement le temps total du processus par :

$$T \approx \Delta x \sum_{j=0}^K (G(t_j))^{-1} \quad (3.16)$$

### 3.2.3.2 Cas de la croissance taille-dépendante

Dans le cas de la croissance taille-dépendante, nous utilisons le modèle discrétisé présenté dans la section 2.2.3.2 :

$$\begin{cases} n(x_i, t_j) G_l(x_i) = n(x_{i-1}, t_{j-1}) G_l(x_{i-1}) \\ x_i = f(l_i), \quad i = 1, 2, \dots, N \\ n(x_0, t_j) = \frac{R_n(t_j)}{G(x_0, t_j)} \\ t_j = t_{j-1} + \int_{(j-1)\Delta l}^{j\Delta l} \frac{1}{G_t(t(\xi))} d\xi \end{cases} \quad (3.17)$$

Nous obtenons une autre représentation du modèle en itérant Eq. (3.17) :

$$n(x_i, t_j) = \begin{cases} \frac{R_n(t_{j-i})}{G_l(x_i) G_t(t_{j-i})}, & i < j \\ \frac{n_0(x_{i-j}) G_l(x_{i-j})}{G_l(x_i)}, & i \geq j \end{cases} \quad (3.18)$$

for  $i = 0, 1, \dots, N$  et  $j = 0, 1, \dots, K$ .

D'après la représentation Eq. (3.18), la solution du modèle est distinguée par deux parties. Une est déterminée par la condition initiale et la taille  $x$ . Cette partie ne peut pas être contrôlée par  $T_{cr}$ . L'autre est déterminée par la condition frontière, où le taux de nucléation et le taux de croissance dépendent de  $T_{cr}$ . Pour une DTC à  $t_K$ , il doit contenir deux parties, la partie contrôlable et la partie initiale :

$$n_d(x_i) = \begin{cases} n_c(x_i), & i < K \\ n_0(x_i) = \frac{n_0(x_{i-K})G_l(x_{i-K})}{G_l(x_i)}, & i \geq K \end{cases} \quad (3.19)$$

Pour  $i = 0, 1, \dots, N$ ,  $n_c(x_i)$  est la partie contrôlable par la commande d'entrée  $T_{cr}$ , et  $n_0(x_i)$  est la partie initiale déterminée par la condition initiale.

D'après la définition de la DTC désirée, le problème d'atteignabilité est de trouver une séquence de commande  $T_{cr}(t_j), j = 1, 2, \dots, K$ , tel que,  $\forall m \in \{0, 1, \dots, K-1\}$  :

$$n(x_m, t_K) = \frac{R_n(t_{K-m})}{G_l(x_m)G_t(t_{K-m})} = n_c(x_m). \quad (3.20)$$

Eq. (3.20) est reliée avec les variables d'état du système à l'instant  $t_{K-m}$ ,  $R_n(t_{K-m})$  et  $G_t(t_{K-m})$  dans Eq. (3.20) sont des fonctions des variables  $C(t_{K-m})$ ,  $T_{cr}(t_{K-m})$  et  $C_s(t_{K-m})$ . D'après Eq. (2.55), le calcul de  $C_s(t_{K-m})$  dépend de la DTC à  $t_{K-m}$ .

Selon Eq. (3.18) la partie contrôlable de la DTC à  $t_{K-m}$  est décrite par :

$$\begin{bmatrix} n(x_0, t_{K-m}) \\ n(x_1, t_{K-m}) \\ \vdots \\ n(x_{K-m-1}, t_{K-m}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{R_n(t_{K-m})}{G_l(x_0)G_t(t_{K-m})} \\ \frac{R_n(t_{K-m-1})}{G_l(x_1)G_t(t_{K-m-1})} \\ \vdots \\ \frac{R_n(t_1)}{G_l(x_{K-m-1})G_t(t_1)} \end{bmatrix} \quad (3.21)$$

La partie contrôlable à  $t_{K-m}$  est reliée avec  $R_n(t_{K-m})$ ,  $G_t(t_{K-m})$  et aussi avec les états des instants précédents.

Selon Eq. (3.17), la variation de la DTC suivant la courbe caractéristique est indépendant du temps  $t$ . Considérant la DTC désirée  $n_d(x_i)$  à  $t_K$  comme condition initiale, par Eq. (3.18) et suivant la courbe caractéristique, nous trouvons la DTC désirée  $n_d(x_i)$  à  $t_{K-m}$ , notée par  $n_d(x_i, t_{K-m})$  :

$$\begin{bmatrix} n_d(x_0, t_{K-m}) \\ n_d(x_1, t_{K-m}) \\ \vdots \\ n_d(x_{K-m-1}, t_{K-m}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{n_c(x_m)G_l(x_m)}{G_l(x_0)} \\ \frac{n_c(x_{m+1})G_l(x_{m+1})}{G_l(x_1)} \\ \vdots \\ \frac{n_c(x_{K-1})G_l(x_{K-1})}{G_l(x_{K-m-1})} \end{bmatrix} \quad (3.22)$$

Si  $n(x_i, t_{K-m-1}) = n_d(x_i, t_{K-m-1}), \forall x_i \in X$ , alors il est facile de montrer que  $n(x_j, t_{K-m}) = n_d(x_j, t_{K-m}), j = 1, 2, \dots, N$ .

S'il existe  $T_{cr}(t_{K-m})$  qui satisfait  $n(X, t_{K-m}) = n_d(X, t_{K-m})$ , alors nous avons aussi :

$$C_s(t_{K-m}) = C_s^d(t_{K-m}) \quad (3.23)$$

Ici  $C_s^d(t_{K-m})$  est la concentration du solide désirée à  $t_{K-m}$ , qui est calculée à partir de la DTC désirée à  $t_{K-m}$  avec Eq. (2.55), Eq. (3.19) et Eq. (3.22) :

$$\begin{aligned} C_s^d(t_{K-m}) = & \frac{K_v \rho_s}{2M_s} \left\{ \sum_{j=0}^{K-m-2} \left[ \frac{x_j^3 n_c(x_{j+m}) G_l(x_{j+m})}{G_l(x_j)} \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{x_{j+1}^3 n_c(x_{j+m+1}) G_l(x_{j+m+1})}{G_l(x_{j+1})} \right] (x_{j+1} - x_j) \right. \\ & \left. + \left[ \frac{x_{K-m-1}^3 n_c(x_{K-1}) G_l(x_{K-1})}{G_l(x_{K-m-1})} + \frac{x_{K-m}^3 n_0(x_0) G_l(x_0)}{G_l(x - K - m)} \right] (x_{K-m} - x_{K-m-1}) \right. \\ & \left. + \sum_{j=K-m}^{N-1} \left[ \frac{x_j^3 n_0(x_{j-K+m}) G_l(x_{j-K+m})}{G_l(x_j)} \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{x_{j+1}^3 n_0(x_{j-K+m+1}) G_l(x_{j-K+m+1})}{G_l(x_{j+1})} \right] (x_{j+1} - x_j) \right\} \quad (3.24) \end{aligned}$$

La concentration du soluté désirée à  $t_{K-m}$   $C_d(t_{K-m})$  est calculée avec Eq. (1.7) et Eq. (2.55) :

$$C_d(t_{K-m}) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s^d(t_{K-m})}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s^d(t_{K-m})}. \quad (3.25)$$

La variable  $T_{cr}(t_{K-m})$  est la seule variable inconnue dans Eq. (3.20). Nous devons vérifier si Eq. (3.20) possède une solution de  $T_{cr}(t_{K-m})$ . Ainsi, le problème d'atteignabilité est équivalent au problème de l'existence de solution : si  $\forall m < K$ , Eq. (3.20) possède une solution de  $T_{cr}^d(t_{K-m})$ , alors la DTC désirée est atteignable (Zhang *et al.* (2011)).

**Proposition 3.2** Une DTC désirée définie par Eq. (3.19) est atteignable si pour chaque  $m = 0, 1, \dots, K - 1$ , l'équation non-linéaire algébrique a la solution de  $T_{cr}(t_{K-m})$  :

$$\frac{R_n(t_{K-m})}{G_l(x_m)G_t(t_{K-m})} = n_c(x_m) \quad (3.26)$$

avec :

$$\begin{aligned}
 R_n(t_{K-m}) &= a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C_d(t_{K-m})}{C_{sat}(t_{K-m})}\right)}\right) \\
 &\quad + K_{n_2}(C_d(t_{K-m}) - C_{sat}(t_{K-m}))^{I_{n_2}} C_s^d(t_{K-m})^{J_{n_2}} \\
 G_l(x_m) &= (1 + ax_m)^b \\
 G_t(t_{K-m}) &= K_g(C_d(t_{K-m}) - C_{sat}(t_{K-m}))^J \\
 C_{sat}(t_{K-m}) &= a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t_{K-m})}\right)
 \end{aligned}$$

où  $C_s^d(t_{K-m})$  et  $C_d(t_{K-m})$  sont définies par Eq. (3.24) et (3.25) respectivement.

### 3.3 Commandabilité du système basé sur l'EDP

#### 3.3.1 Commandabilité du système

Nous revenons à étudier la commandabilité du système basé sur l'EDP. Considérons le modèle de la cristallisation suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial(n(x,t))}{\partial x} = 0 \\ n(0,t) = \frac{R_n(t)}{G(t)} \end{cases} \quad (3.27)$$

C'est une PDE quasi-linéaire. Beaucoup d'efforts ont été investis pour le problème de la commandabilité d'une PDE quasi-linéaire. [Li et Rao \(2003\)](#) ont étudié la commandabilité exacte aux frontières d'un type d'EDP hyperbolique quasi-linéaire avec les conditions frontières non-linéaire en utilisant l'existence et l'unicité de la  $C^1$  solution semi-globale. Pour notre système décrit par Eq. (3.27), nous pouvons utiliser la MDC pour étudier la commandabilité du système.

La MDC est non seulement une méthode de discrétisation mais aussi une méthode de la résolution des EDPs. Par conséquent la commandabilité du système basé sur l'EDP doit être semblable à celle basé sur modèle discrétisé. Avec la MDC, nous obtenons deux EDOs suivantes :

$$\frac{dn(x,t)}{dt} = 0 \quad (3.28)$$

$$\frac{dx}{dt} = G(t) \quad (3.29)$$

Avec Eq. (3.29) et Eq. (3.28), la solution s'écrit :

$$n(x,t) = \begin{cases} n_0(x - \int_0^t G(\tau) d\tau), & x \geq \int_0^t G(\tau) d\tau \\ \frac{R_n(t-t_1)}{G(t-t_1)}, & x < \int_0^t G(\tau) d\tau \end{cases} \quad (3.30)$$

où  $t_1$  satisfait l'équation  $x = \int_{t_1}^t G(\tau) d\tau$ .

La partie  $\frac{R_n(t-t_1)}{G(t-t_1)}$  est influencée par la commande d'entrée  $T_{cr}$ . Nous devons remarquer que la commandabilité n'est possible que si :

$$X_{max} < \int_0^T G(\tau) d\tau \quad (3.31)$$

où  $T$  est le temps fini du procédé.

Autrement dit il faut dépasser une certaine durée de temps pour avoir la commandabilité.  $G(t)$  dépend de la sursaturation  $C(t) - C_{sat}(t)$ . Sous l'hypothèse (voir la section 1.2.1) que  $C(t) - C_{sat}(t) > 0$ , il existe toujours un temps fini  $T$  tel que la condition ci-dessus est satisfaite.

### 3.3.2 Atteignabilité du système

Le système (3.27) est commandable en supposant que  $\frac{R_n(t-t_1)}{G(t-t_1)}$  est la commande du système, mais il n'est pas évident que  $\frac{R_n(t-t_1)}{G(t-t_1)}$  puisse prendre n'importe quelle valeur. Nous devons donc étudier directement l'atteignabilité du modèle décrit par l'EDP.

Le problème d'atteignabilité est rappelé comme suit :

**Définition 3.4** Une DTC désirée  $n_d(x)$  est atteignable pour le modèle, s'il existe une commande  $T_{cr}(t)$  et un temps fini  $T$  tel que  $n(x, T) = n_d(x)$  est satisfaite.

La solution (3.30) ci-dessus ressemble à ce que nous avons discuté dans le modèle discrétisé. Nous étudions ici l'atteignabilité de la partie où  $x < \int_0^t G(\tau) d\tau$

S'il existe une commande  $T_{cr}(t)$  tel que  $n(x, T) = n_d(x)$ , où  $T$  est le temps terminal du procédé, alors pour un point quelconque  $(x_l, n(x_l, T))$ ,  $x_l \in \mathbb{R}_+$  dans la DTC, nous avons une commande  $T_{cr}(t)$  tels que :

$$\begin{aligned} n(x_l, T) &= n(0, T - t_l) \\ &= \frac{R_n(T - t_l)}{G(T - t_l)} \\ &= n_d(x_l) \end{aligned} \quad (3.32)$$

où  $t_l$  satisfait l'équation  $x_l = \int_{t_l}^T G(\tau) d\tau$ .

Nous savons que les courbes caractéristiques sont parallèles suivant la direction de  $x$  dans le  $xt$ -plan, et que la variation de  $n(x, t)$  suivant des courbes est nulle,

donc nous pouvons considérer que la DTC se déplace parallèlement suivant les axes  $x$  dans le plan- $x$   $n(\cdot, t)$  en fonction du temps  $t$ . S'il existe une commande  $T_{cr}(t)$  tel que  $n(x, T) = n_d(x)$ , nous pouvons inverser le modèle désiré en déplaçant le DTC à instant  $T - t_l$  comme illustré dans la figure 3.1 et la figure 3.2.

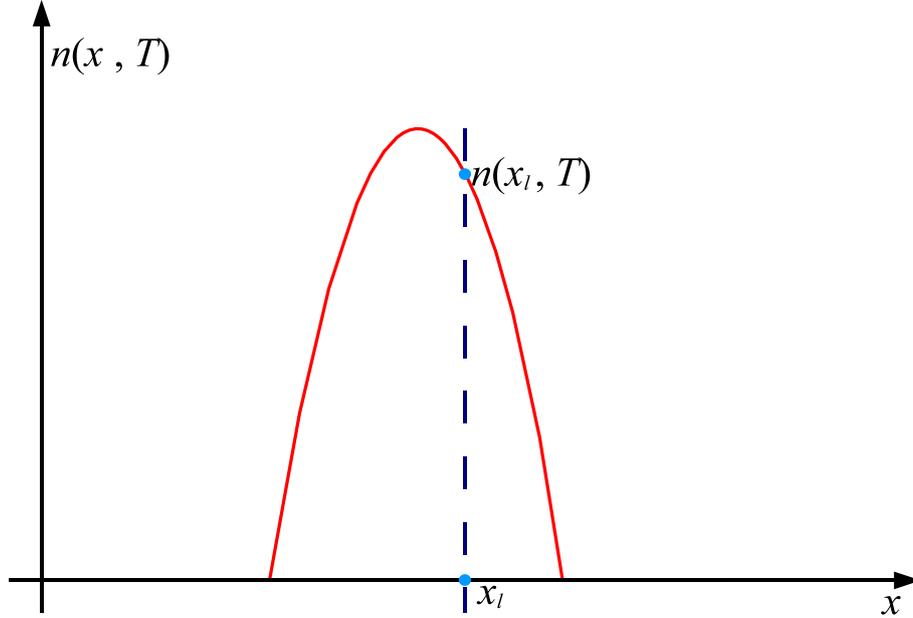


FIGURE 3.1 – La DTC désirée

Puisque la concentration du soluté  $C(T - t_l)$  est une fonction de  $C_s(T - t_l)$ , et que la concentration du solide  $C_s(T - t_l)$  est calculé par intégration de la DTC désirée à  $T - t_l$  avec Eq. (1.6) :

$$\begin{aligned} C_s(T - t_l) &= C_s^d(T - t_l) \\ &= \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_{x_l}^{\infty} (x - x_l)^3 n_d(x - x_l) dx \end{aligned} \quad (3.33)$$

La température du cristalliseur  $T_{cr}(T - t_l)$  est la seule variable inconnue dans Eq. (1.6). Ainsi le problème d'atteignabilité se traduit par l'existence de la solution.

**Proposition 3.3** *La DTC désirée est atteignable si  $\forall x_l < \int_0^T G(\tau) d\tau$ ,  $\exists T_{cr}(t) \in$*

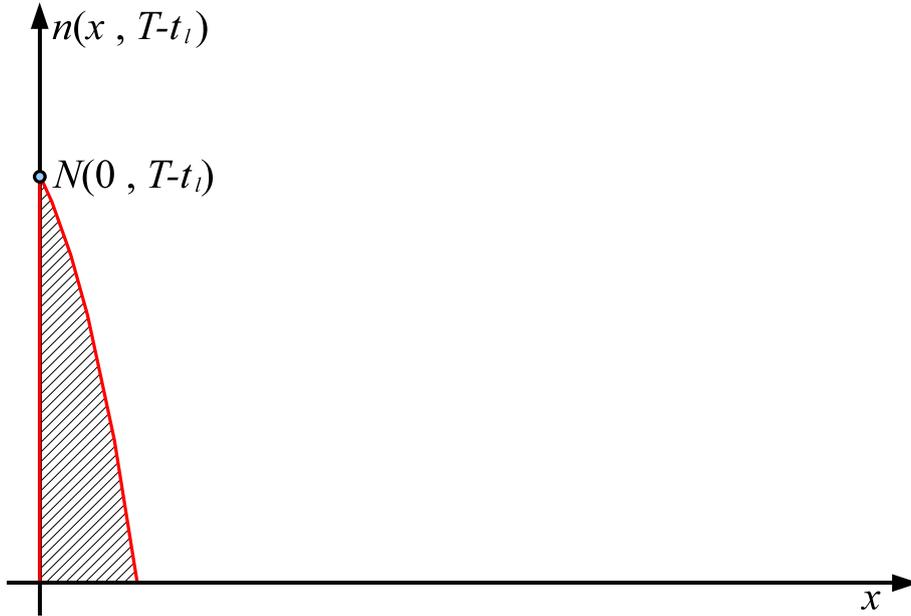


FIGURE 3.2 – La DTC désirée à  $T - t_l$

$\mathbb{R}_+$  tel que l'équation suivante soit satisfaite :

$$\begin{aligned} n(x_l, T) &= \frac{R_n(T - t_l)}{G(T - t_l)} \\ &= \frac{R_n(\int_{x_l}^{\infty} (l - x_l)^3 n_d(l - x_l) dl, T_{cr}(T - t_l))}{G(\int_{x_l}^{\infty} (l - x_l)^3 n_d(l - x_l) dl, T_{cr}(T - t_l))} \\ &= n_d(x_l) \end{aligned}$$

où  $t_l$  satisfait l'équation  $x_l = \int_{t_l}^T G(\tau) d\tau$ .

### 3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la commandabilité du système à partir de son modèle discrétisé et du modèle décrit par l'EDP, les résultats obtenus de ces deux approches sont concordants. Si on considère la condition frontière comme une variable de contrôle, alors le système est complètement contrôlable. Or, la réalité du procédé est différente de cette situation considérée, puisqu'il y a des contraintes sur le contrôle de température et que la condition frontière ne peut pas prendre de valeur arbitraire. C'est la raison pour laquelle nous nous sommes proposé d'étudier l'atteignabilité du système en prenant la température du cristalliseur comme le seul contrôle. Nous avons effectué l'étude de l'atteignabilité basée sur la modèle discrétisé

et sur le modèle EDP. Les résultats s'avèrent aussi concordants. Étant donné un profil de la DTC, nous avons proposé les critères algébriques permettant de déterminer si le profil est atteignable ou non. Dans le cas où le profil désiré est atteignable, nous avons calculé le temps  $T$  et le contrôle qui conduit le système au profil désiré à l'instant  $T$ .



# Chapitre 4

## Commande en boucle fermée du procédé de cristallisation en batch

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>74</b>
<b>4.2</b>	<b>État de l'art sur le contrôle du procédé de cristallisation</b>	<b>74</b>
<b>4.3</b>	<b>Contrôle de la distribution des tailles de cristaux</b>	<b>75</b>
4.3.1	Le modèle du procédé de cristallisation retenu	75
4.3.2	Problématique de la commande	77
4.3.3	Commande par Feedback avec le modèle idéal	78
4.3.4	Poursuite des trajectoires des états	79
4.3.5	Commande par Feedback avec les paramètres de nucléation incertains	81
<b>4.4</b>	<b>Observateur du procédé de cristallisation</b>	<b>83</b>
4.4.1	Introduction	83
4.4.2	Un observateur pour le modèle des moments	85
<b>4.5</b>	<b>Simulations et discussions</b>	<b>87</b>
4.5.1	Simulation du modèle nominal	89
4.5.2	Simulation de l'observateur du système	91
4.5.3	Simulation du modèle perturbé	91
<b>4.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>94</b>

---

## 4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons étudier la commande d'un cristalliseur de refroidissement en batch par le contrôle de la température. D'après l'étude de l'atteignabilité d'une DTC désirée nous construirons une trajectoire à poursuivre pour atteindre l'objectif défini. La conception du contrôle pour le procédé de cristallisation est basée sur le contrôle donné par l'étude de l'atteignabilité. Lorsque le modèle admet des paramètres incertains, un correcteur est introduit pour compenser les incertitudes des paramètres. Une approche alternative est de se servir d'un observateur pour estimer les moments d'ordre 0 – 3, et ensuite, d'utiliser ces moments estimés dans la compensation des incertitudes des paramètres.

## 4.2 État de l'art sur le contrôle du procédé de cristallisation

Ces dernières années, de nombreux problèmes de contrôle ont été étudiés pour le procédé de cristallisation en batch ([Braatz \(2002\)](#) et [Fujiwara \*et al.\* \(2005\)](#)). Parmi ces problèmes, deux directions principales ont été étudiées : la première est basée sur l'analyse de la robustesse, qui traite principalement de l'impact de des paramètres du modèle incertains et des perturbations ([Ma et Braatz \(2001\)](#) et [Nagy et Braatz \(2003b\)](#)) ; la deuxième étudie et optimise certaines propriétés de cristallisation telles que la taille moyenne des cristaux, le ratio de la masse de cristal nucléées et de la masse des ensemencements etc. ([Choong et Smith \(2004\)](#), [Chung \*et al.\* \(1999\)](#), [Hu \*et al.\* \(2005\)](#) et [Zhang et Rohani \(2003\)](#)). Ces deux directions peuvent aussi être combinées ensemble pour résoudre le problème de l'optimisation avec le modèle incertain ([Nagy et Braatz \(2003a\)](#) et [Nagy \(2009\)](#)).

Dans [Ma et Braatz \(2001\)](#), l'auteur a proposé de quantifier l'impact des incertitudes des paramètres sur la performance du contrôle. Cette information peut être utilisée pour savoir si d'autres expériences sont nécessaires pour obtenir l'estimation des paramètres d'une grande précision, ou de définir la performance visée par le contrôle de niveau inférieur qui mettent en œuvre des boucles de contrôle de la trajectoire. L'approche est évaluée par l'application de la croissance multidimensionnelle des cristaux utilisés dans les applications non linéaire, où les paramètres nominaux et les incertitudes sont quantifiés à partir des données expérimentales. La robustesse des estimations est garantie avec l'effort de calcul raisonnable.

Choong et Smith (2004) a proposé l'optimisation de la cristallisation en batch avec refroidissement en utilisant un nouveau algorithme d'optimisation. Les auteurs ont étudié l'optimisation de deux types de cristallisation à base de l'acide citrique à partir de l'eau en utilisant différents taux de nucléation secondaire dans les deux cas, non ensemencée et ensemencé. Ensuite, les auteurs ont utilisé deux fonctions objectives séparément : la maximisation de la masse moyenne la taille des cristaux et la minimisation du coefficient de variance de la taille moyenne à base de masse.

$$\max_{T_{cr}(t)} Lm_{moy}(t) = \frac{\mu_4(t)}{\mu_3(t)} \quad (4.1)$$

$$\min_{T_{cr}(t)} CV_{Lm}(t) = \sqrt{\frac{\mu_3(t)\mu_5(t)}{\mu_4^2(t)} - 1} \quad (4.2)$$

Les variables dans l'optimisation étaient la masse des semences, la taille des semences, le temps de batch, et le profil de refroidissement. Les auteurs ont fixé les limites sur la masse des semences et la taille des semences. La principale conclusion de l'optimisation de la cristallisation ensemencée en batch était que l'ensemencement permet une certaine souplesse vis à vis du temps de batch nécessaire pour parvenir à une taille des cristaux prescrits.

## 4.3 Contrôle de la distribution des tailles de cristaux

### 4.3.1 Le modèle du procédé de cristallisation retenu

Dans nos travaux, nous devons contrôler le système vers une DTC désirée. Le modèle du procédé considéré est issu de trois bilans présentés dans la section 1.2 : le bilan de population, le bilan de matière et le bilan d'énergie. Le modèle complet

est décrit par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial(n(x,t))}{\partial x} = 0 \\ n(0,t) = \frac{R_n(t)}{G(t)} \\ \sum_{i=1}^3 C p_i n_i(t) \frac{dT_{cr}(t)}{dt} = -\Delta H_c V_T \frac{dC_s(t)}{dt} - UA(T_{cr}(t(x)) - T_{de}(t)) \\ C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^{x_{max}} x^3 n(x,t) dx \\ C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \\ R_n(t) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) + K_{n_2} (C(t) - C_{sat}(t))^{I_{n_2}} C_s(t)^{J_{n_2}} \\ G(t) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C(t) - C_{sat}(t))^J \\ C_{sat}(t) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t)}\right) \end{array} \right. \quad (4.3)$$

Pour faciliter le contrôle, nous avons discrétisé l'équation du bilan de population avec les différentes méthodes dans le chapitre 2 et choisi la MDC comme notre méthode principale de la discrétisation. Le modèle de contrôle est gouverné par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{n}(t_j) = A\tilde{n}(t_{j-1}) + B \frac{R_n(t_j)}{G(t_j)} \\ C_s(t_j) = \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} [x_i^3 \tilde{n}(x_i, t_j) + x_{i+1}^3 \tilde{n}(x_{i+1}, t_j)] \\ C(t_j) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t_j)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t_j)} \\ R_n(t_j) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t_j)}{C_{sat}(t_j)}\right)}\right) + K_{n_2} (C(t_j) - C_{sat}(t_j))^{I_{n_2}} C_s(t_j)^{J_{n_2}} \\ G(t_j) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C(t_j) - C_{sat}(t_j))^J \\ C_{sat}(t_j) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t_j)}\right) \end{array} \right. \quad (4.4)$$

avec :

$$\tilde{n}(t_j) = \begin{bmatrix} n(x_0, t_j) \\ n(x_1, t_j) \\ \vdots \\ n(x_N, t_j) \end{bmatrix}, \quad A = \begin{bmatrix} 0 & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\ 1 & \ddots & & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad B = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Dans notre étude il s'agit du modèle des moments d'ordre 0 – 3 présenté dans la section 2.2.1 :

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \frac{d\mu_3(t)}{dt} = 3G(t)\mu_2(t) \\
 \frac{d\mu_2(t)}{dt} = 2G(t)\mu_1(t) \\
 \frac{d\mu_1(t)}{dt} = G(t)\mu_0(t) \\
 \frac{d\mu_0(t)}{dt} = R_n(t) \\
 C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t) \\
 C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \\
 \sum_{i=1}^3 C p_i n_i(t) \frac{dT_{cr}(t)}{dt} = -\Delta H_c V_T \frac{dC_s(t)}{dt} - UA(T_{cr}(t) - T_{de}(t)) \\
 R_n(t) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) + K_{n_2} (C(t) - C_{sat}(t))^{I_{n_2}} C_s(t)^{J_{n_2}} \\
 G(t) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C(t) - C_{sat}(t))^J \\
 C_{sat}(t) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t)}\right)
 \end{array} \right. \quad (4.5)$$

Dans notre modèle, la variable de commande est la température de la double-enveloppe  $T_{de}(t)$ . Les variables mesurées sont la concentration du soluté  $C(t)$  et la température du cristalliseur  $T_{cr}(t)$ .

### 4.3.2 Problématique de la commande

Comme nous l'avons dit dans le chapitre 1, le cristal est caractérisé par la DTC. Ainsi, notre objectif de commande est de contrôler l'évolution de la DTC du procédé de cristallisation par la température de la double-enveloppe.

Normalement, les paramètres de cristallisation sont obtenus par des méthodes d'identification à partir des données expérimentales dans la condition d'un environnement idéal. Mais pour la cinétique de nucléation, ses paramètres sont sensibles à l'environnement, et il est difficile de mesurer le nombre des semences, donc les paramètres sont souvent perturbés. La trajectoire de la température désirée  $T_{cr}(t)$  calculée à partir du modèle et la DTC désirée est sensible aux paramètres de la nucléation. La perturbation des paramètres peut provoquer une erreur importante (voir la figure 2.15). Par conséquent, nous avons besoin de chercher à compenser ces

erreurs.

### 4.3.3 Commande par Feedback avec le modèle idéal

Dans cette section, nous discutons le problème de la commande dans les conditions idéales. Nous supposons que l'environnement soit stable, que la mesure soit exacte et que les paramètres soient tous connus.

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié l'atteignabilité d'une DTC désirée. Étant donné une DTC désirée  $n_d(x)$ , si elle est atteignable, nous pouvons trouver une séquence de commande de température désirée  $T_{cr}^d(t_{K-i})$ ,  $i = 0, 1, \dots, K$  avec la formule suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{R_n(t_{K-i})}{G(t_{K-i})} = n_c(x_i) \\ R_n(t_{K-i}) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C_d(t_{K-i})}{C_{sat}(t_{K-i})}\right)}\right) \\ \quad + K_{n_2} (C_d(t_{K-i}) - C_{sat}(t_{K-i}))^{I_{n_2}} C_s^d(t_{K-i})^{J_{n_2}} \\ G(t_{K-i}) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C_d(t_{K-i}) - C_{sat}(t_{K-i}))^J \\ C_{sat}(t_{K-i}) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}^d(t_{K-i})}\right) \end{array} \right. \quad (4.6)$$

où  $N_c(x_i)$  est la partie de la DTC désirée qui ne comprend pas la distribution d'ensemencement.

Bien que nous ayons calculé le contrôle désiré  $T_{cr}^d$  à tout instant  $t_{K-i}$ , nous ne savons toujours pas le moment exact auquel il faut l'appliquer. Bien que l'instant soit défini par Eq. (4.4), il est difficile de résoudre cette équation explicitement. D'autre part, à partir des équations des moments d'ordre 0 – 3, nous constatons que, sur la sursaturation, les moments sont monotones et croissantes, et que le moment  $\mu_3$  est proportionnel à la concentration du solide  $C_s$ . Cela signifie que  $C_s$  est aussi monotone et croissante. Par Eq. (1.7), la variable  $C(t)$  décroît de façon monotone avec le temps  $t$ . Par conséquent, la concentration du soluté désirée  $C_d(t_{K-i})$  calculée par Eq. (3.14) diminue aussi avec le temps  $t$ . Dans ce cas, nous pouvons remplacer le rôle de l'instant  $t_{K-i}$  par celui de  $C_d(t_{K-i})$ , puisqu'il existe une bijection entre  $t_{K-i}$  et  $C_d(t_{K-i})$ .

Ainsi nous obtenons un algorithme de commande :

1. créer une table de référence entre la sortie désirée  $C_d$  et le contrôle désiré  $T_{cr}^d$  en utilisant l'analyse d'atteignabilité (Eq. (4.6)) hors ligne.
2. mesurer la variable d'état  $C$  en ligne.

3. trouver le contrôle désiré  $T_{cr}^d$  correspondant dans le tableau de référence comme le montre la figure 4.1.
4. adapter cette commande au système du procédé.
5. terminer le procédé si la variable mesurée  $C$  est plus petite que  $C_d$  du tableau.

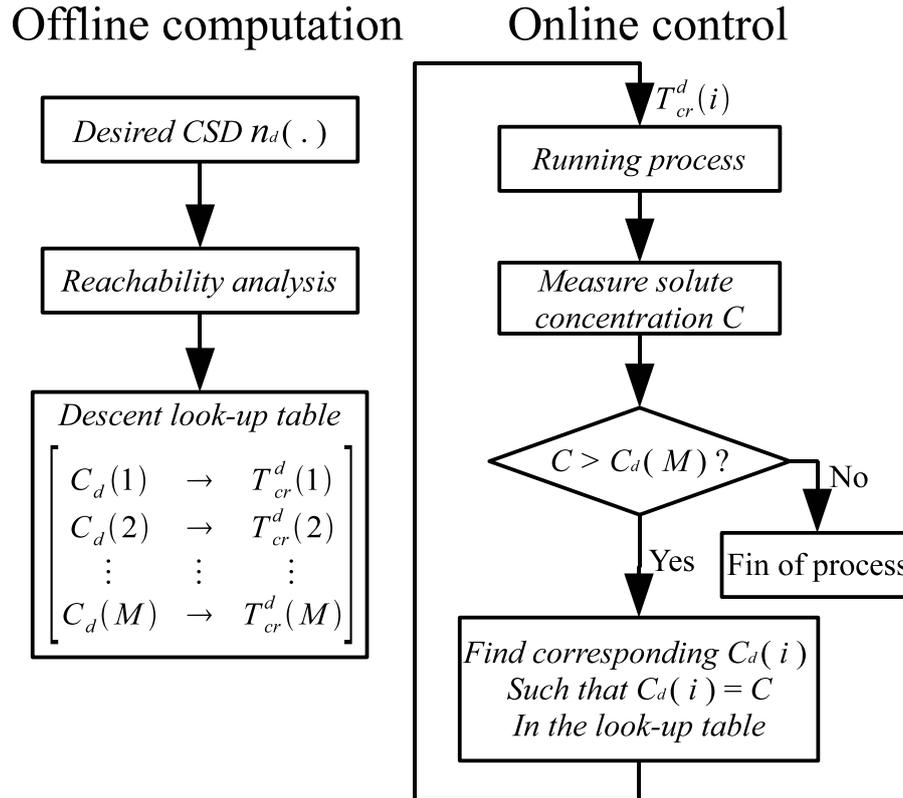


FIGURE 4.1 – Simple feedback control scheme

On remarque que le tableau est construit hors ligne et que le temps de consultation du tableau est court. Nous pouvons adapter la commande au procédé rapidement, ainsi le temps de retard est négligeable.

#### 4.3.4 Poursuite des trajectoires des états

Dans la section précédente, nous avons trouvé une trajectoire des états à poursuivre sur le plan  $T_{cr} - C$ . En pratique la température du cristalliseur  $T_{cr}(t)$  est contrôlée par la température de la double-enveloppe par l'équation du bilan d'énergie, beaucoup de méthode de contrôle peuvent réaliser cette poursuite de la trajectoire désirée, par exemple, le régulateur PID, le contrôle prédictive, ...etc. Ici, nous

choisissons la méthode la plus courante pour réaliser notre objectif : le régulateur PI.

$$T_{de}(t) = T_{cr}^d(t) + K_p(T_{cr}^d(t) - T_{cr}(t)) + K_i \int_0^t (T_{cr}^d(\tau) - T_{cr}(\tau))d\tau \quad (4.7)$$

où  $K_p$  et  $K_i$  sont les paramètres du régulateur PI.

Puisque le système en boucle fermée par le régulateur PI ne dépend pas de la DTC  $n(x, t)$ , nous utilisons le modèle des moments pour décrire la méthode de contrôle :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\mu_3(t)}{dt} = 3G(t)\mu_2(t) \\ \frac{d\mu_2(t)}{dt} = 2G(t)\mu_1(t) \\ \frac{d\mu_1(t)}{dt} = G(t)\mu_0(t) \\ \frac{d\mu_0(t)}{dt} = R_n(t) \\ C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t) \\ C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \\ \sum_{i=1}^3 C p_i n_i(t) \dot{T}_{cr}(t) = -\Delta H_c V_T \dot{C}_s(t) - UA[-(K_p + 1)(T_{cr}^d(t) - T_{cr}(t)) - K_i \int_0^t (T_{cr}^d(\tau) - T_{cr}(\tau))d\tau] \end{array} \right. \quad (4.8)$$

Les paramètres  $K_p$  et  $K_i$  sont déterminés tels que le système est stable, précis et rapide. Le schéma du contrôle est illustré dans la figure 4.2

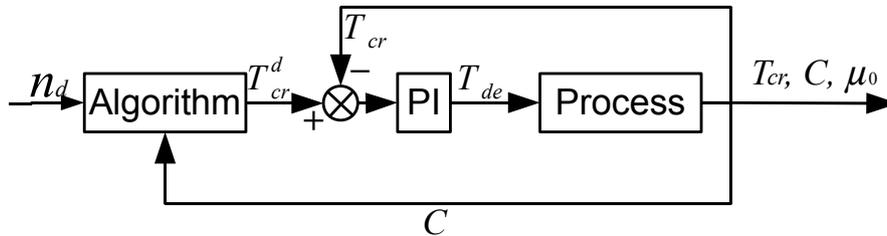


FIGURE 4.2 – Schéma du contrôle PI

### 4.3.5 Commande par Feedback avec les paramètres de nucléation incertains

Pour étudier la robustesse de la loi du contrôle vis-à-vis des paramètres incertains, nous supposons que les paramètres nominaux  $a_{n_1}$ ,  $b_{n_1}$ ,  $K_{n_2}$  et  $I_{n_2}$  subissent une perturbation de l'incertitude des paramètres  $\Delta a_{n_1}$ ,  $\Delta b_{n_1}$ ,  $\Delta K_{n_2}$  et  $\Delta I_{n_2}$  :

$$R'_{n_1}(t) = (a_{n_1} + \Delta a_{n_1}) \exp\left(\frac{b_{n_1} + \Delta b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) \quad (4.9)$$

$$R'_{n_2}(t) = (K_{n_2} + \Delta K_{n_2})(C(t) - C_{sat}(t))^{(I_{n_2} + \Delta I_{n_2})} C_s(t)^{J_{n_2}} \quad (4.10)$$

Dans ce cas le modèle perturbé du bilan de population est décrit par :

$$\frac{\partial n'(x, t)}{\partial t} + G(C(t), T'_{cr}(t)) \frac{\partial n'(x, t)}{\partial x} = 0 \quad (4.11)$$

$$n(0, t) = \frac{R'_n(C(t), T'_{cr}(t))}{G(C(t), T'_{cr}(t))} \quad (4.12)$$

$$R'_n(C(t), T'_{cr}(t)) = R'_{n_1}(C(t), T'_{cr}(t)) + R'_{n_2}(C(t), T'_{cr}(t)) \quad (4.13)$$

où  $G(C(t), T'_{cr}(t))$  et  $R'_n(C(t), T'_{cr}(t))$  sont des fonctions de  $C(t)$  et  $T'_{cr}(t)$ .

Le modèle nominal avec la commande désirée  $T_{cr}^d(t)$  est décrit par :

$$\frac{\partial n_d(x, t)}{\partial t} + G(C_d(t), T_{cr}^d(t)) \frac{\partial n_d(x, t)}{\partial x} = 0 \quad (4.14)$$

$$n_d(0, t) = \frac{R_n(C_d(t), T_{cr}^d(t))}{G(C_d(t), T_{cr}^d(t))} \quad (4.15)$$

$$R_n(C_d(t), T_{cr}^d(t)) = R_{n_1}(C_d(t), T_{cr}^d(t)) + R_{n_2}(C_d(t), T_{cr}^d(t)) \quad (4.16)$$

où  $G(C_d(t), T_{cr}^d(t))$  et  $R_n(C_d(t), T_{cr}^d(t))$  sont des fonctions de  $C_d(t)$  et  $T_{cr}^d(t)$ .

La simulation en boucle ouverte avec de différents paramètres dans la section 2.3.2 montre que la DTC finale est sensible aux paramètres de nucléation. Le contrôle désiré  $T_{cr}^d(t)$  étant calculé par le modèle nominal, nous ne pouvons pas conduire le système perturbé à la DTC désirée avec le contrôle de température conçu. Par conséquent, l'objectif de contrôle est de concevoir un correcteur de telle sorte qu'à  $t'_K$  :

$$\min_{T'_{cr}(t)} \left\| n'(x, t'_K) - n_d(x, t_K) \right\|^2 \quad (4.17)$$

Nous notons que le temps final  $t'_K$  du modèle perturbé pourrait être différent de  $t_K$  du modèle nominal. C'est-à-dire que la différence entre deux DTC au même

instant  $t$ ,  $n'(x, t) - n_d(x, t)$ , ne peut pas être utilisée comme l'état de retour pour compenser les erreurs. De plus la DTC  $n'(x, t)$  n'est pas mesurable et il est aussi difficile à l'estimer.

Notre conception du contrôle est basée sur la MDC. Nous faisons un changement de variable pour les deux bilans de population en définissant une nouvelle variable de temps  $\tau$  :

$$\frac{d\tau}{dt} = G(t) \quad (4.18)$$

Alors les deux bilans sont décrits par la nouvelle variable  $\tau$ , pour le modèle avec la nucléation perturbé

$$\frac{\partial n'(x, \tau)}{\partial \tau} + \frac{\partial n'(x, \tau)}{\partial x} = 0 \quad (4.19)$$

$$n(0, \tau) = \frac{R'_n(C(\tau), T'_{cr}(\tau))}{G(C(\tau), T'_{cr}(\tau))} \quad (4.20)$$

et pour le modèle nominal par l'EDP

$$\frac{\partial n_d(x, \tau)}{\partial \tau} + \frac{\partial n_d(x, \tau)}{\partial x} = 0 \quad (4.21)$$

$$n_d(0, \tau) = \frac{R_n(C_d(\tau), T_{cr}^d(\tau))}{G(C_d(\tau), T_{cr}^d(\tau))} \quad (4.22)$$

Les deux équations sont linéaires, Eq. (4.17) s'écrit sous forme :

$$\min_{T'_{cr}(\tau)} \left\| n'(0, \tau - x) - n_d(0, \tau - x) \right\|^2, \quad \tau > x \quad (4.23)$$

Ainsi la variable de retour :

$$e = n_d(0, \tau) - n'(0, \tau) \quad (4.24)$$

La variable  $n'(0, \tau)$  n'est pas mesurable. D'autre part sa intégration est  $\mu_0$  selon Eq. (4.5) et Eq. (4.18) :

$$\frac{d\mu_0(t)}{dt} = R_n(t) \Rightarrow \frac{d\mu_0(\tau)}{d\tau} = \frac{R_n(\tau)}{G(\tau)} = n(0, \tau) \quad (4.25)$$

Le moment d'ordre zéro désiré  $\mu_0^d(t_i)$  peut être calculé à partir de la DTC désirée  $n_d(x)$  en utilisant Eq. (3.13), Eq. (3.19) et Eq. (3.22) :

$$\mu_0^d(t_{K-i}) = \frac{1}{2} \sum_{j=0}^{N-1} (n_d(x_j, t_{K-i}) + n_d(x_{j+1}, t_{K-i}))(x_{j+1} - x_j) \quad (4.26)$$

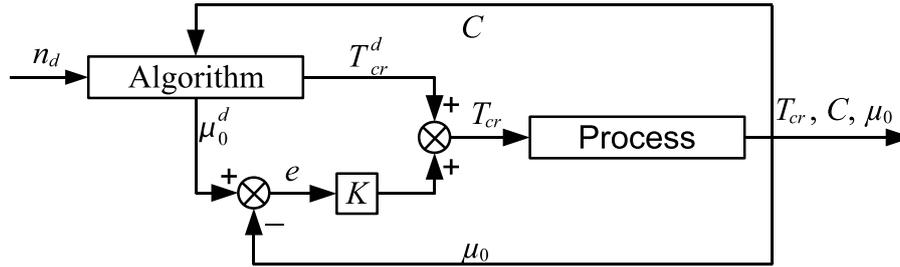


FIGURE 4.3 – Schéma de contrôle

Par conséquent, le contrôle intégral est utilisé pour corriger la perturbation. Le système de contrôle correspondant est illustré dans la figure 4.3. Nous construisons une table de référence  $\mu_0^d$  vs.  $C_d$  qui servira la loi de feedback pour le système en boucle fermée, on mesure le moment d'ordre 0  $\mu_0$  qui est le nombre total de cristaux, et le compare avec  $\mu_0^d$  désiré qui est déterminé par la mesure de la concentration du soluté  $C$ . La différence entre  $\mu_0^d$  et  $\mu_0$  est retourné à l'entrée du procédé afin de réguler le système autour de la trajectoire désirée.

## 4.4 Observateur du procédé de cristallisation

### 4.4.1 Introduction

Il est souvent difficile d'obtenir toutes les informations nécessaires du procédé par des mesures des variables du procédé. Les techniques de mesure peuvent être peu fiables, imprécises, coûteux ou tout simplement indisponibles pour un procédé donné. Théoriquement, une simulation en temps réel avec un modèle mathématique du système peut être utilisée pour obtenir des estimations des variables du procédé non mesurées. Cependant, la qualité de ces estimations est insuffisante en raison des incertitudes des paramètres initiaux utilisés dans le modèle de procédé et des erreurs de mesure. La conception d'un capteur logiciel offre une solution qui améliore la qualité de l'estimation en utilisant un modèle de procédé ainsi que les mesures disponibles. Un tel capteur est souvent appelé un observateur ou d'un estimateur.

Un observateur (voir la figure 4.4) est un moyen de mesure "informatique" qui permet de retrouver tous les états d'un système industriel en disposant du minimum d'informations sur ces états (mesure de la sortie). Ce minimum d'information est obtenu à l'aide des capteurs. Un observateur est un système dynamique constitué d'une copie du modèle et d'un terme de correction permettant de faire converger l'estimation vers l'état réel du système. Il permet donc d'optimiser le nombre de

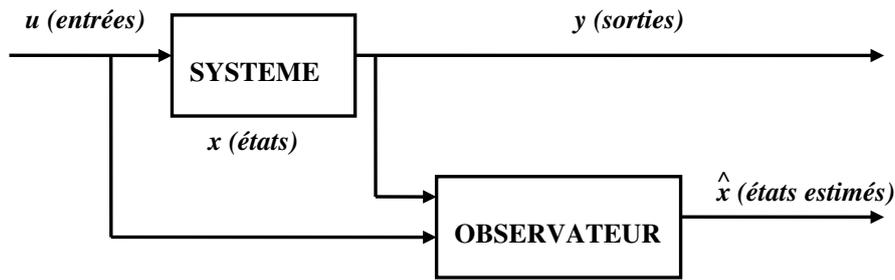


FIGURE 4.4 – Schéma de principe d'un observateur

capteurs dans une application industrielle.

Durant les dernières décennies beaucoup de travaux en automatique ont été menés sur la conception d'observateurs. Il y a plusieurs méthodes d'estimation des paramètres du modèle et des variables d'état. Les approches d'estimation peuvent être choisies selon les modèles sur lesquels l'estimation est basée, telles les approches linéaires et les approches non-linéaires etc.

Dans les approches linéaires, l'observateur de Luenberger (Luenberger (1971)) et le filtre de Kalman (Kalman et Bucy (1961)) sont discriminés selon des contextes déterministes ou stochastiques, respectivement.

Dans les approches non-linéaires, il est plus difficile de donner une théorie générale. Cependant il existe quelques développements concernant la synthèse des observateurs (Krener et Isidori (1983) et Gauthier et Kupka (1997)). Parmi les techniques les plus classiques, nous pouvons citer le filtre de Kalman étendu et ses variantes, l'observateur de Luenberger étendu et l'observateur à grand gain (Gauthier et al. (1992) et Besançon (2007)).

Les mesures qui sont utilisées pour l'estimation de l'état peuvent avoir des erreurs à cause de l'imperfection des méthodes de mesure et des dispositifs. Par conséquent, les données mesurées du procédé sont corrompues par le bruit et ont des valeurs qui violent les lois de conservation. Afin d'obtenir des estimations précises de ces variables mesurées, dans un premier temps les données sont filtrées pour résoudre les incohérences entre les mesures et les équations du bilan. Le problème de l'estimation des états n'est pas fondamentalement différent du problème du filtrage des données, puisque le but des deux techniques est d'obtenir des informations précises et cohérentes à partir des mesures bruitées à l'aide d'un modèle du procédé. Ainsi nous supposons que les données mesurées sont filtrées et assez précises.

#### 4.4.2 Un observateur pour le modèle des moments

Il est bien connu que le système linéaire décrit par l'équation différentielle suivante :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = Ax(t) + Bu(t) \\ y = Cx(t) \end{cases} \quad (4.27)$$

est observable si et seulement si la matrice d'observabilité de Kalman est de rang maximal, c'est à dire,

$$\text{rank} \begin{bmatrix} C \\ CA \\ \vdots \\ CA^{n-1} \end{bmatrix} = n \quad (4.28)$$

où  $n$  est la dimension du système.

Dans le schéma de commande, l'asservissement nécessite la connaissance du moment d'ordre zéro  $\mu_0$ , et nous avons supposé qu'il était mesurable. Toutefois, en pratique, cette mesure est coûteuse et souvent biaisée par des erreurs importantes. D'un autre côté, nous pouvons mesurer, avec plus de précision, la concentration du soluté  $C$ . Ainsi nous proposons d'estimer l'état  $\mu_0$  à partir de la mesure de la concentration du soluté  $C(t)$  (Uccheddu *et al.* (2011)).

Le système des moments d'ordre 0 – 3 est déjà présenté dans la section 2.2.1, qui constitue un système fermé décrit par :

$$\begin{cases} \frac{d\mu_3(t)}{dt} = 3G(t)\mu_2(t) \\ \frac{d\mu_2(t)}{dt} = 2G(t)\mu_1(t) \\ \frac{d\mu_1(t)}{dt} = G(t)\mu_0(t) \\ \frac{d\mu_0(t)}{dt} = \frac{R_n(t)}{G(t)} \end{cases} \quad (4.29)$$

Selon Eq. (1.7), Eq. (1.6) et Eq. (2.1), on a la relation algébrique entre  $C(t)$  et  $\mu_3(t)$  :

$$C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - \frac{K_v \rho_s}{M_s} \mu_3(t)}{1 - K_v \mu_3(t)} \quad (4.30)$$

Lorsque  $C(t)$  est mesurable, on considère que  $\mu_3(t)$  est également mesurable par Eq. (4.30).

Ici, nous introduisons une nouvelle variable  $\tau$  définie par :

$$\frac{d\tau}{dt} = G(t) \quad (4.31)$$

$$\tau(t = 0) = 0 \quad (4.32)$$

Nous avons supposé que le procédé évolue sous la condition sursaturée  $C(t) > C_{sat}(t)$ , tel que le taux de croissance  $G(t)$  est positif pour tout  $t > 0$ . Par conséquent,  $\tau$  augmente de façon monotone avec  $t$ . De plus  $G(t)$  est la fonction de la variable mesurée  $\mu_3(t)$  et de la variable d'entrée  $T_{cr}(t)$ , c'est-à-dire que  $G(t)$  est déterministe. Nous pouvons appliquer la transformation du temps Eq. (4.31) dans le système des moments fermé (4.29) sachant que la transformation du temps est inversible.

Ce nouveau système paramétré par le nouveau temps  $\tau$  s'écrit :

$$\begin{bmatrix} \frac{d\mu_3(\tau)}{d\tau} \\ \frac{d\mu_2(\tau)}{d\tau} \\ \frac{d\mu_1(\tau)}{d\tau} \\ \frac{d\mu_0(\tau)}{d\tau} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mu_3(\tau) \\ \mu_2(\tau) \\ \mu_1(\tau) \\ \mu_0(\tau) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ \frac{R_n(\tau)}{G(\tau)} \end{bmatrix} \quad (4.33)$$

avec la sortie :

$$y(\tau) = \mu_3(\tau) \quad (4.34)$$

D'après Eq. (1.12), Eq. (1.10) et Eq. (1.11), le taux de nucléation  $R_n(\tau)$  et le taux de croissance  $G(\tau)$  dépendent de la sortie  $\mu_3(\tau)$  et de l'entrée  $T_{cr}(\tau)$ .

Nous considérons ici les paramètres de la nucléation qui sont incertains, alors le modèle se réécrit :

$$\frac{d\mu(\tau)}{d\tau} = A_\mu \mu(\tau) + B_\mu g(y(\tau), T_{cr}(\tau)) + E_\mu w(\tau) \quad (4.35)$$

$$y(\tau) = C_\mu \mu(\tau) \quad (4.36)$$

$$A_\mu = \begin{bmatrix} 0 & 3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, B_\mu = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}, E_\mu = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}$$

$$C_\mu = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

avec

$$\begin{aligned} \mu(\tau) &= [\mu_3(\tau), \mu_2(\tau), \mu_1(\tau), \mu_0(\tau)]^T \\ g(y(\tau), T_{cr}(\tau)) &= \frac{R_n(y(\tau), T_{cr}(\tau))}{G(y(\tau), T_{cr}(\tau))} \\ w(\tau) &= \frac{R'_n(y(\tau), T_{cr}(\tau))}{G(y(\tau), T_{cr}(\tau))} - \frac{R_n(y(\tau), T_{cr}(\tau))}{G(y(\tau), T_{cr}(\tau))} \end{aligned}$$

C'est un système non-linéaire avec une partie non-linéaire qui dépend de la sortie et de l'entrée ainsi que d'une partie linéaire. D'après Eq. (4.35), il est facile de démontrer que la partie linéaire du système est observable (la paire  $(A, C)$  est observable d'après le critère de Kalman). Un système sous cette forme admet un observateur à grand gain.

L'objectif de l'observateur est d'estimer rapidement les variables d'état et d'éliminer les perturbations  $w(\tau)$  causées par les paramètres incertains. Afin d'atteindre cet objectif, un observateur à grand gain est conçu comme suit :

$$\frac{d\hat{\mu}(\tau)}{d\tau} = A_{\mu}\hat{\mu}(\tau) + B_{\mu}g(y(\tau), T_{cr}(\tau)) - \Lambda K_{\mu}(y(\tau) - C_{\mu}\hat{\mu}(\tau)) \quad (4.37)$$

avec la matrice diagonale :

$$\Lambda = \begin{bmatrix} \lambda & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda^3 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \lambda^4 \end{bmatrix}$$

le gain de l'observateur :

$$K_{\mu} = \begin{bmatrix} k_1 & k_2 & k_3 & k_4 \end{bmatrix}^T$$

où  $\lambda$  est une constante positive suffisamment grande, et  $K_{\mu}$  est choisi telle que  $A_{\mu} + K_{\mu}C_{\mu}$  est stable.

En utilisant Eq. (4.31), l'observateur du système (4.29) s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d\hat{\mu}(t)}{dt} = & G(y(t), T_{cr}(t))A_{\mu}\hat{\mu}(t) + G(y(t), T_{cr}(t))B_{\mu}g(y(t), T_{cr}(t)) \\ & - G(y(t), T_{cr}(t))\Lambda K_{\mu}(y(t) - C_{\mu}\hat{\mu}(t)) \end{aligned} \quad (4.38)$$

En intégrant l'observateur, nous pouvons obtenir un nouveau système de contrôle montre la figure 4.5.

## 4.5 Simulations et discussions

Pour étudier le contrôle du procédé en boucle fermée, un simple modèle de refroidissement de cristallisation en batch sans ensemencement est simulé. La température

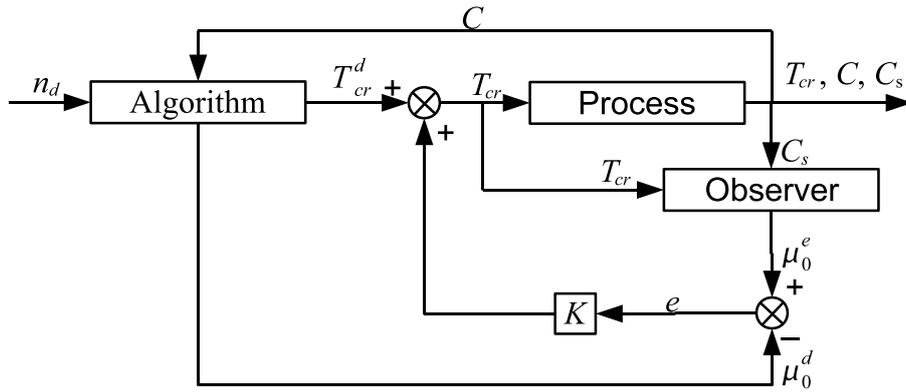


FIGURE 4.5 – Le schéma du contrôle par retour d'état avec l'observateur

du réacteur est réduite, à partir de 321K par une double-enveloppe de refroidissement. Nous utilisons un correcteur PI pour asservir la température du cristalliseur  $T_{cr}$ . La valeur initiale de la concentration du soluté  $C(t)$  est supposée d'être à l'état saturé à la température initiale. Les paramètres utilisés dans la simulation sont donnés dans le tableau 4.1. La DTC désirée est tracée dans la figure 4.6.

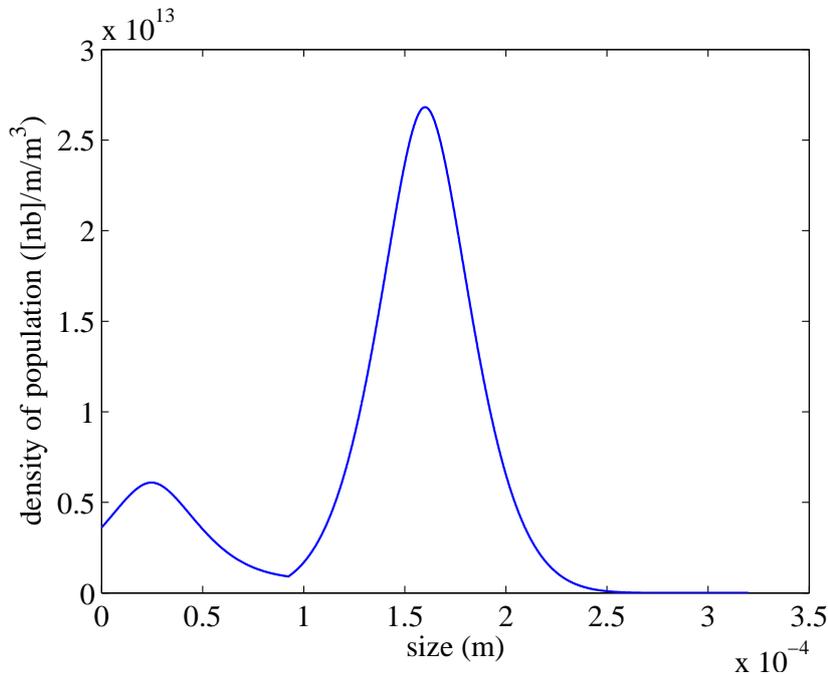


FIGURE 4.6 – DTC Désiré

TABLEAU 4.1 – Paramètres du modèle simulé

Parameter	Unit	Value
$M_s$	$Kg \cdot mol^{-1}$	$146.14 \times 10^{-3}$
$\rho_s$	$Kg \cdot m^{-3}$	1360
$V_T$	$m^3$	$0.3 \times 10^{-3}$
$J$	dimensionless	2.00
$K_c$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$1.57 \times 10^{-2}$
$K_d$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$
$K_v$	sans dimension	$\pi/6$
$a_{n_1}$	$[nb] \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$	$1.5 \times 10^{12}$
$b_{n_1}$	sans dimension	1.063
$K_{n_2}$	$\frac{[nb] \cdot m^{3(I_{n_2} + J_{n_2} - 1)}}{s \cdot mol^{(I_{n_2} + J_{n_2})}}$	$1.44 \times 10^3$
$I_{n_2}$	sans dimension	1.968
$J_{n_2}$	sans dimension	1
$a_{sat}$	$mol \cdot m^{-3}$	$7.492 \times 10^{-6}$
$R$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	8.314
$\Delta H_f$	$J \cdot mol^{-1}$	32424.6
$\Delta H_C$	$J \cdot mol^{-1}$	-48000
$C_{p_1}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$C_{p_2}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	372
$C_{p_3}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$U$	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$	1000
$A$	$m^2$	$2.2 \times 10^{-2}$

#### 4.5.1 Simulation du modèle nominal

D'abord, nous supposons que les paramètres de nucléation sont exacts. Nous obtenons la table de référence entre la concentration du soluté désirée  $C_d$  et la température de cristallisation désirée  $T_{cr}^d$  par la proposition (3.15). La variation de  $T_{cr}^d$  en fonction de  $C_d$  est illustrée dans la figure 4.7.

En utilisant un feedback simple, nous obtenons la DTC finale comparée à la DTC désirée dans la figure 4.8. Nous observons que les deux profils est proches les uns des autres. Nous calculons l'erreur relative entre la DTC désiré et la DTC finale avec la formule suivante :

$$Err = \frac{\|n(x, T) - n_d(x)\|}{\|n_d(x)\|} \quad (4.39)$$

et nous obtenons que, dans ce cas là, l'erreur relative est de 1,3%. Ceci montre la

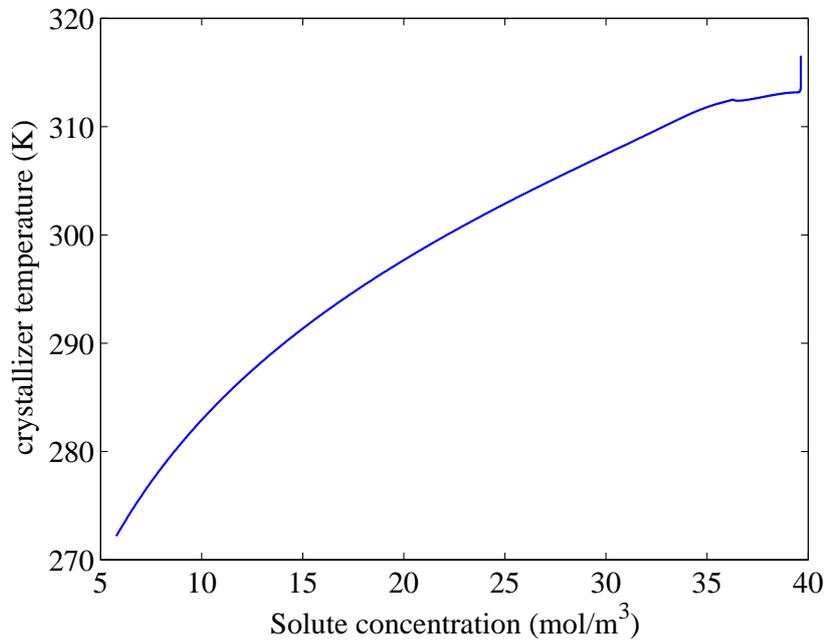


FIGURE 4.7 – Température du cristalliseur désirée

faisabilité de l'approche que nous avons proposée.

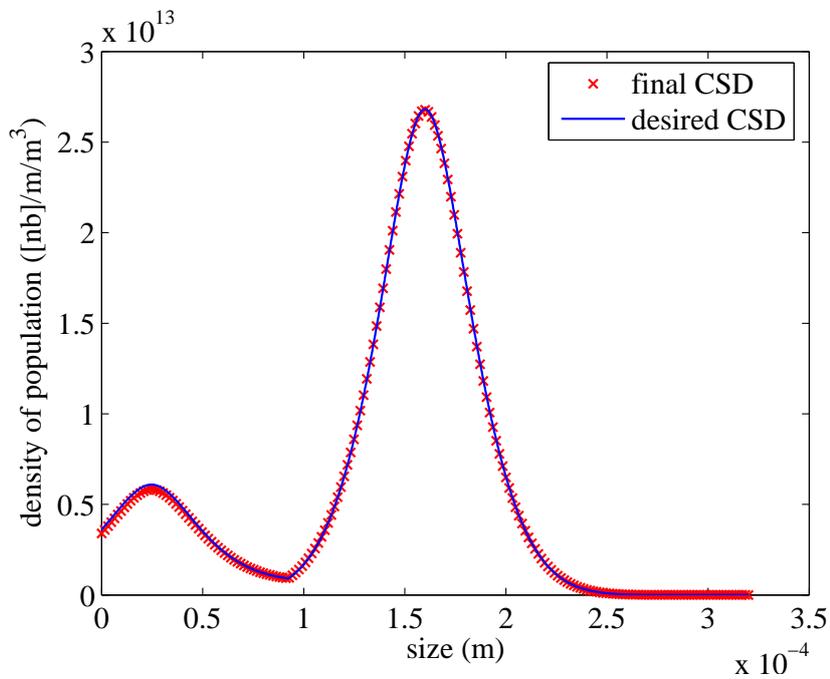


FIGURE 4.8 – La DTC finale avec le modèle nominal

### 4.5.2 Simulation de l'observateur du système

Afin de compenser les erreurs du système perturbé, il faut que les états estimés approchent assez rapidement l'état réel. Ici, Nous simulons deux modèles du système : le modèle réel et le modèle estimé. Prenons le pire cas avec 50% de l'erreur sur les valeurs des paramètres. Les évolutions des moments sont affichées dans les figures 4.9-4.12.

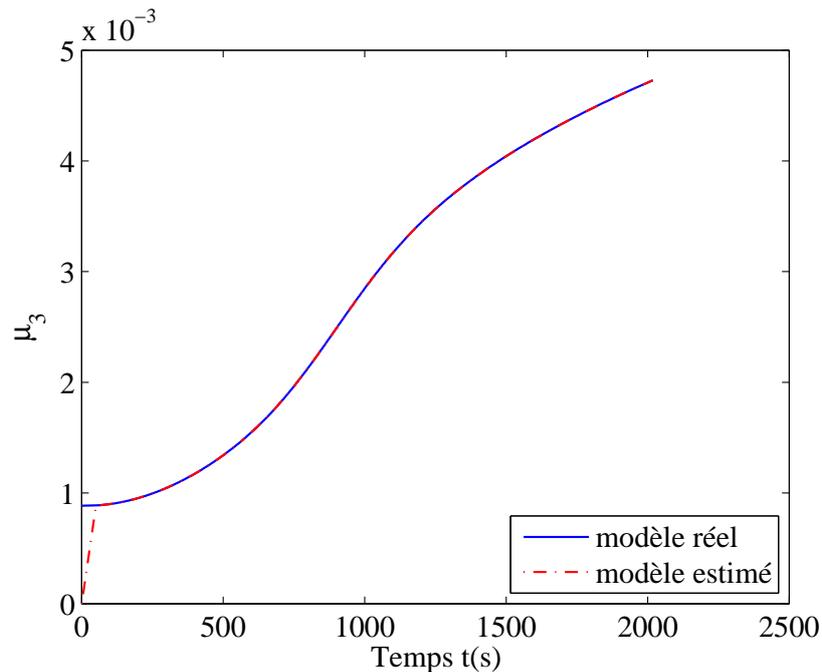


FIGURE 4.9 – L'estimation du moment d'ordre 3

Dans cette figure, nous constatons que les moments estimés approchent rapidement les moments réels. Ceci signifie que cet observateur possède des performances satisfaisantes, et nous pouvons utiliser les moments estimés pour la compensation du système perturbé.

### 4.5.3 Simulation du modèle perturbé

Dans le cas où les paramètres de nucléation sont perturbés par des erreurs, nous utilisons le contrôle désiré indiqué dans la figure 4.7 pour asservir le système. Nous supposons le cas avec 20% de l'erreur sur les valeurs des paramètres. La simulation est illustrée dans la figure 4.13 où l'erreur relative est de 85,6%. Nous observons que la DTC finale est très sensible aux paramètres de nucléation, et que l'objectif est loin d'être atteint, puisque les deux profils sont totalement distincts.

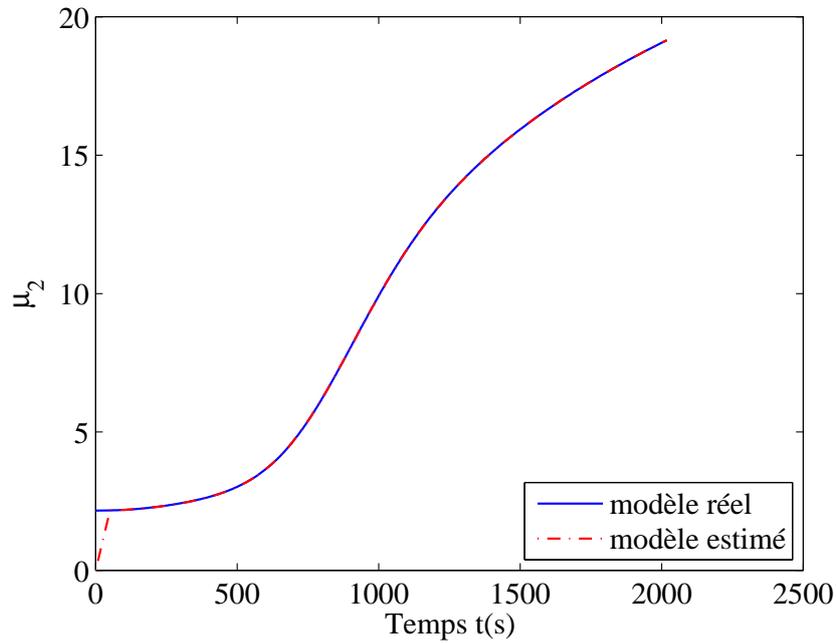


FIGURE 4.10 – L'estimation du moment d'ordre 2

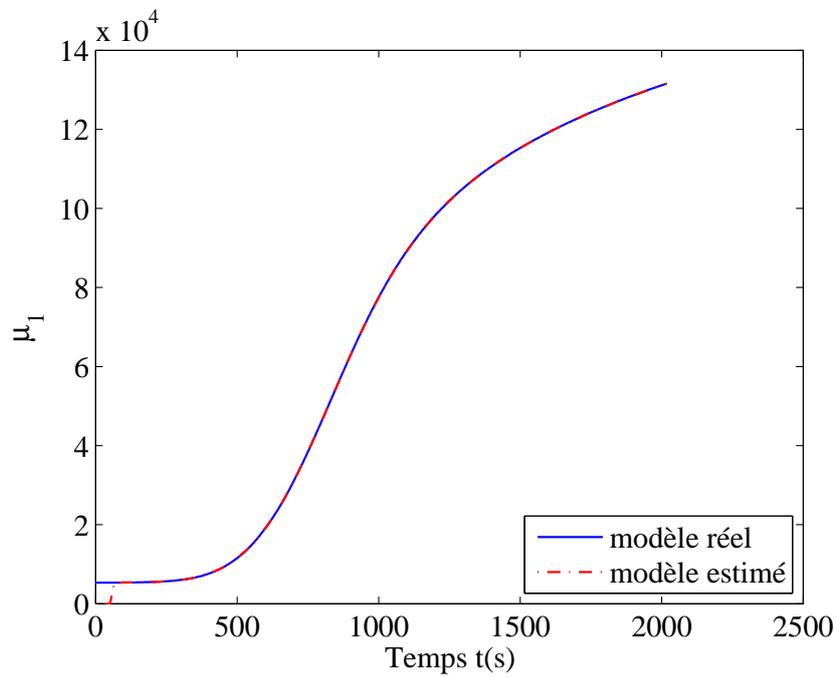


FIGURE 4.11 – L'estimation du moment d'ordre 1

Ensuite, nous appliquons le schéma de correction par la mesure de  $\mu_0$ , comme illustré dans la figure 4.3, avec le gain de correction  $K = -5 \times 10^{-6}$ . Le contrôle

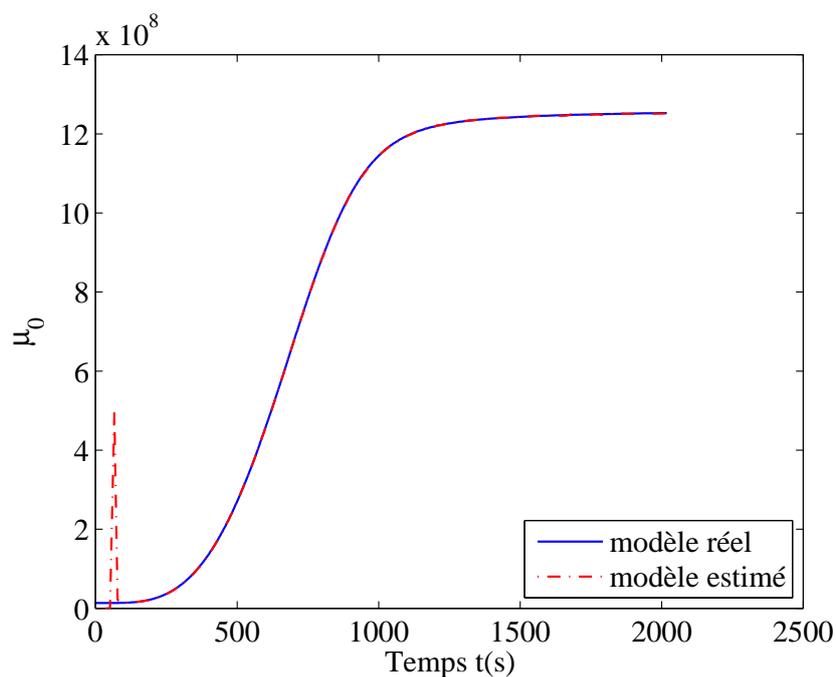


FIGURE 4.12 – L'estimation du moment d'ordre 0

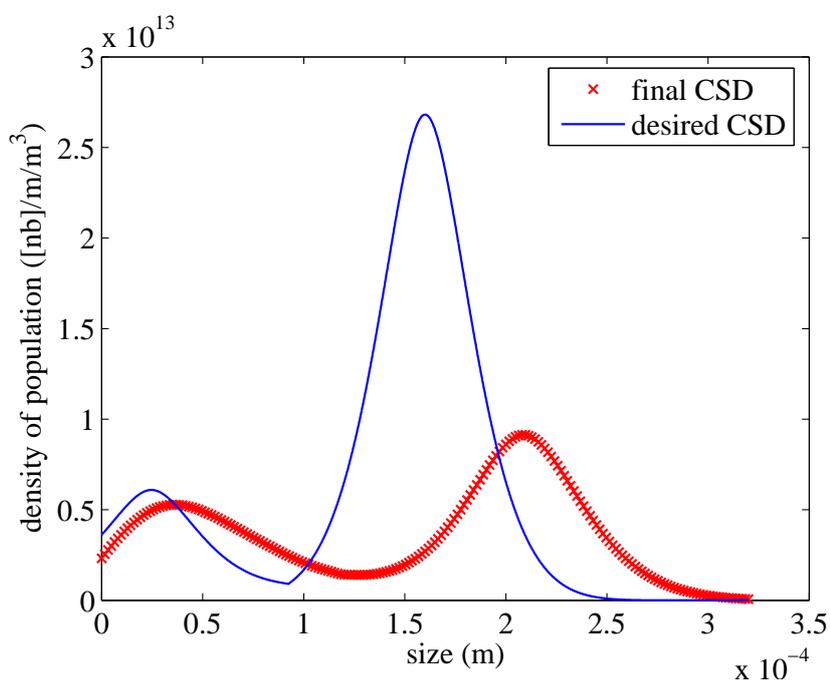


FIGURE 4.13 – La DTC finale avec le modèle perturbé

désiré est le même que celui représenté dans la figure 4.7, et la DTC finale est tracée dans la figure 4.14. Nous voyons dans cette figure que le correcteur a compensé

efficacement les erreurs causées par la variation des paramètres de nucléation, et l'erreur relative est de 0,88% comme illustré dans la figure 4.14. La température du cristalliseur corrigée par  $\mu_0$  est illustré dans la figure 4.15.

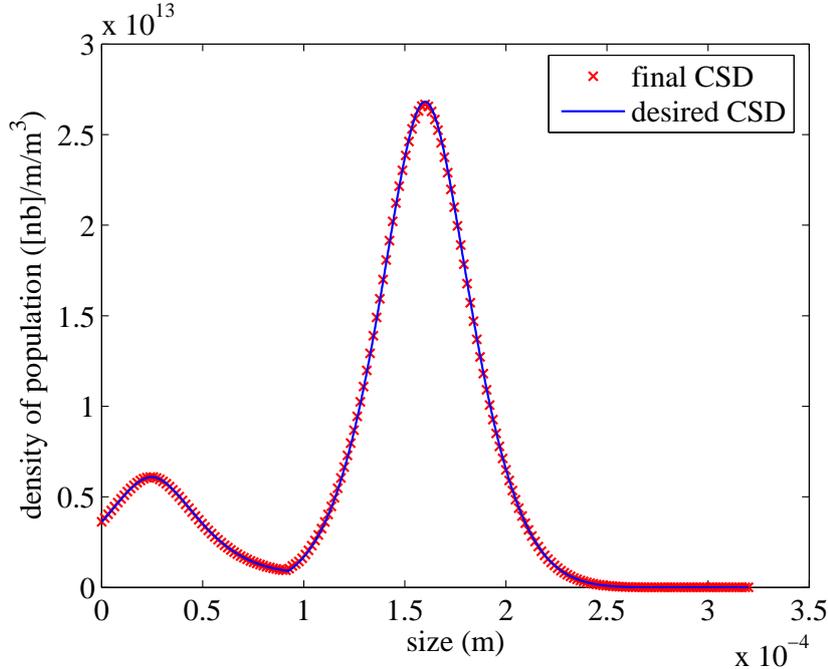


FIGURE 4.14 – La DTC finale avec les paramètres de nucléation perturbés et avec la correction par  $\mu_0$  mesuré

Supposons que  $\mu_0$  n'est pas mesurable. Nous proposons de reconstituer  $\mu_0$  par un observateur décrit par Eq. (4.38) à partir de la mesure de  $C(t)$ . Nous utilisons le schéma de correction par  $\mu_0$  estimé, comme illustré dans la figure 4.5 avec le gain de correction  $K = -5 \times 10^{-6}$ . Le contrôle désiré est le même que celui utilisé précédemment, et la DTC finale est présentée dans la figure 4.16. Dans cette figure, nous observons que le correcteur en utilisant le retour de l'état  $\mu_0$  estimé par l'observateur compense efficacement les erreurs causées par la perturbation des paramètres de nucléation, et l'erreur relative est de 1,47%

## 4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons conçu un contrôle en boucle fermée pour atteindre la DTC désirée à partir de l'étude du problème de l'atteignabilité. Pour compenser l'incertitude des paramètres du modèle, nous avons ajouté un autre contrôle par retour d'état afin d'assurer la poursuite du profil désiré en présence de l'incertitude

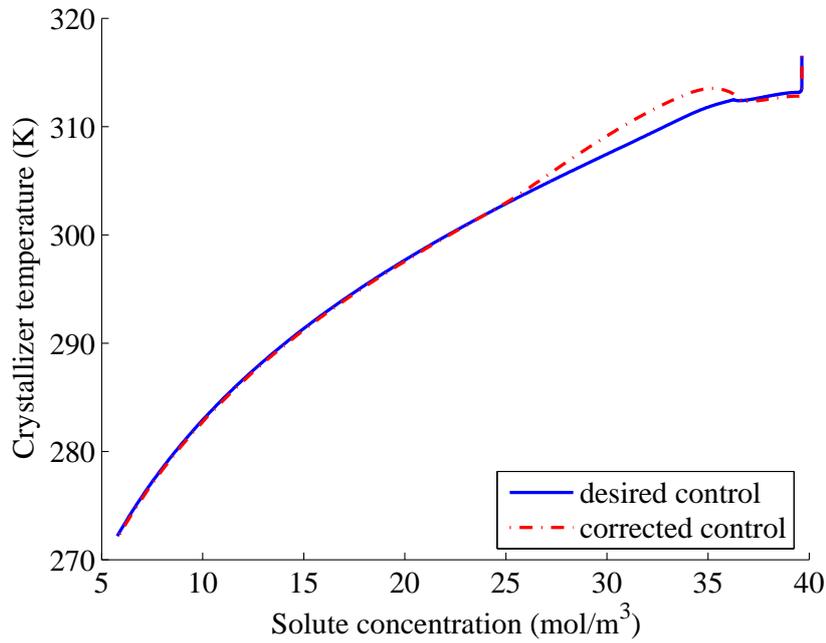


FIGURE 4.15 – La température du cristalliseur avec la correction par  $\mu_0$  mesuré

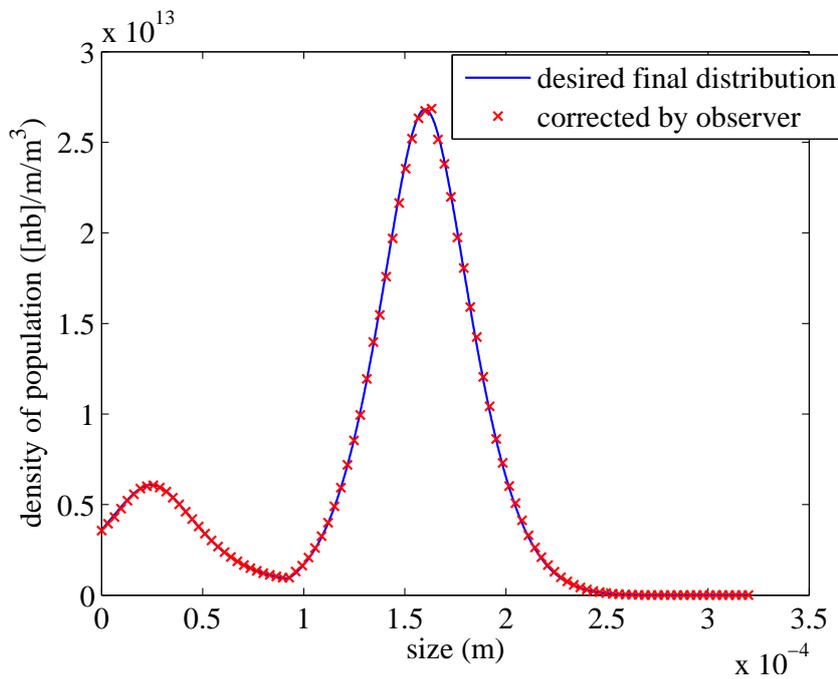


FIGURE 4.16 – La DTC finale avec les paramètres de nucléation perturbés et avec la correction par  $\mu_0$  estimé

des paramètres. Comme certaines variables d'état nécessaires dans la conception

du contrôleur sont difficilement mesurables, nous avons construit un observateur qui nous permet d'avoir en ligne l'estimation de ces variables d'état. Ensuite, nous avons appliqué ces variables d'état estimées dans la loi du contrôle désiré et nous avons démontré, par simulations, que ce schéma de commande permet d'atteindre la DTC désirée.

# Chapitre 5

## Conclusion générale

L'objectif principal de ce travail de recherche est de contrôler l'évolution de la distribution des tailles de cristaux dans un procédé de cristallisation en batch.

Pour mener à bien ce projet, nous avons commencé par introduire les principes de base du procédé de cristallisation. Nous avons étudié le modèle mathématique de la cristallisation en batch par refroidissement ainsi que les différentes cinétiques liées aux mécanismes de cristallisation. Le modèle a été obtenu à partir du bilan de population, et il est décrit par une EDP. Ce modèle est complété par les bilans de matières et d'énergie qui sont décrits par des EDOs, et les mécanismes de nucléation exprimés par des équations non-linéaires algébriques.

Les problèmes d'optimisation et de contrôle sont difficiles à résoudre à partir du modèle de dimension infinie. Nous avons été amenés à chercher une résolution numérique du bilan de population et à proposer un algorithme rapide et précis pour le simuler. Trois méthodes numériques ont été étudiées : la méthode des moments, la méthode des différences finies et la méthode des caractéristiques. Nous avons comparé les résultats de simulation des deux méthodes de discrétisation basés sur l'équation du bilan de population. Le modèle discrétisé par la MDC a été retenu et serait utilisé pour la suite de nos travaux. La MDC a été étendue au cas de la taille des cristaux bidimensionnels en utilisant un maillage mouvant. L'approche proposée permet de simuler avec précision la dynamique du procédé. Nous avons obtenu de bonnes performances du terme du temps de calcul.

Ensuite, nous avons étudié le problème de la commandabilité du système à partir de son modèle discrétisé par MDC et puis à partir du modèle décrit par l'EDP. Les résultats obtenus par les deux apports sont concordants. Si on considère la condition frontière comme une variable de contrôle, alors le système est complètement contrô-

lable. Or, la réalité du procédé est différente de cela, puisqu'il y a des contraintes sur le contrôle de la température et que la condition aux frontières ne peut pas prendre de valeur arbitraire. C'est la raison pour laquelle nous avons étudié l'atteignabilité du système en prenant la température du cristalliseur comme le seul contrôle. Nous avons effectué l'étude de l'atteignabilité basée sur le modèle discrétisé et puis sur le modèle EDP. Les résultats se sont avérés aussi concordants. Étant donné un profil de la DTC, nous avons proposé les critères algébriques permettant de déterminer si le profil est atteignable ou non. Dans le cas où le profil désiré est atteignable, nous avons calculé le temps  $T$  et le contrôle qui conduit le système à cette DTC désiré en temps  $T$ .

Enfin, nous avons conçu un contrôle désiré en boucle fermée pour atteindre la DTC désirée à partir de la condition initiale sans ensemencement. En pratique les paramètres physiques liés à la nucléation sont souvent incertains. Pour compenser l'incertitude des paramètres du modèle, nous avons ajouté un second contrôle par retour d'état afin d'assurer la poursuite du profil désiré en présence de l'incertitude des paramètres. Comme certaines variables d'état nécessaires dans la conception du contrôle désiré sont difficilement mesurables, nous avons construit un observateur qui nous permet d'avoir en ligne l'estimation de ces variables d'état. Ensuite, ces variables d'état estimées sont utilisées dans la synthèse de la loi du contrôle désiré. Les résultats de simulations obtenus ont démontré que le schéma de commande proposé permet d'atteindre la DTC voulue.

En termes de perspectives, nous travaillons actuellement pour démontrer la stabilité du système en boucle fermée par retour d'état. Ensuite, il sera intéressant d'exploiter plusieurs méthodes de contrôle et de les comparer afin d'améliorer la poursuite de la trajectoire. Une validation expérimentale permettra de valider et valoriser ce travail en terme d'exploitation industrielle.

## **Annexe A**

**Acte publié à l'occasion du  
congrès CIFA 2010**

# Simulation numérique d'un procédé de cristallisation via l'équation du bilan de population multidimensionnelle

Kun ZHANG<sup>1</sup>, Madiha NADRI<sup>1</sup>, Cheng-Zhong XU<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés,  
UMR 5007 CNRS

Université Claude Bernard Lyon 1, bât 308G Lyon, 43 bd du 11 Novembre 1918. 69622 Villeurbanne Cedex, France.  
*zhang@lagep.univ-lyon1.fr, nadri@lagep.univ-lyon1.fr, xu@lagep.univ-lyon1.fr*

*Résumé*— Cette étude se penche sur le problème de simulation d'un procédé de cristallisation gouverné par des équations aux dérivées partielles (EDP) du type hyperbolique. Pour la simulation de ce type de procédé, la Méthode des Caractéristiques (MDC) a démontré son efficacité en termes de temps de calcul et de précision dans le cas unidimensionnel. L'étude présentée dans cet article a été orientée vers le cas de formation de cristaux multidimensionnels pour lequel l'utilisation de la MDC reste encore un challenge. Dans un premier temps, nous donnons un modèle 2-D (le cristal est considéré comme un parallélépipède). En suite, la MDC est étendue à la simulation numérique du modèle 2-D en utilisant un maillage mouvant. Dans cet article nous développons un algorithme basé sur la MDC permettant de réaliser différentes simulations visant à tester la fiabilité pratique de la méthode. On montre que l'algorithme est stable, rapide et précis. Par conséquent l'algorithme développé peut être utilisé dans un objectif de contrôle en temps réel.

*Mots-clés*— Système de dimension infinie, méthode des caractéristiques, équation du bilan de population multidimensionnelle, cristallisation en batch.

## I. INTRODUCTION

La cristallisation en solution est une technique utilisée dans différents domaines industriels. Ce procédé est généralement utilisé pour la séparation et la purification des produits pharmaceutiques, chimiques et de l'industrie alimentaire. Un grand intérêt est porté de plus en plus à l'étude de ce procédé afin de le maîtriser, et donc améliorer le produit final en termes de pureté et de morphologie. Néanmoins, il reste mal connu à cause des différents phénomènes qui y interviennent. Un modèle dynamique fiable qui décrit ce procédé est nécessaire pour l'étudier, et appliquer des stratégies de contrôle afin d'en sortir des produits conformes aux cahiers des charges et aux exigences industrielles.

Le modèle de ce type de procédé est basé sur le bilan de population décrit par une équation aux dérivées partielles hyperbolique du premier ordre, et sa variable d'état, la densité de la taille des cristaux, dépend du temps et de la taille des cristaux. Les problèmes d'optimisation et de contrôle sont difficiles à traiter en utilisant un modèle complexe comme celui-ci. Cela a motivé des travaux de recherche pour trouver une solution numérique du modèle établi (EDP) et de proposer un algorithme rapide et précis pour le simuler.

En effet, beaucoup d'efforts ont été investis pour développer des solutions numériques appropriées pour le cas unidimensionnel; c'est-à-dire que le cristal est une

sphère qui est modélisé par le diamètre. Parmi ces techniques numériques, nous pouvons citer les méthodes principales : la méthode des moments [1], [4] et [9] sert à trouver une condition de fermeture, résoudre ce système des moments, et reconstruire la distribution des taille de cristaux avec les moments; la méthode des différences finies [2] discrétise toutes les dimensions des équations aux dérivées partielles, transfère l'équation continue en équations discrètes et calcule la distribution de chaque nœud; la méthode des volumes finis [6] étudie les volumes discrétisés au lieu des nœuds et utilise la conservation des flux de chaque volume discrétisé; la méthode des éléments finis [8] approxime la distribution avec des polynômes d'ordre faible pour les éléments discrétisés; la méthode des caractéristiques combine normalement avec d'autres méthodes numériques, par exemple, la méthode des différences finies [12] et la méthode des volumes finis [11], elle étudie la variation des variables suivant des courbes des caractéristiques et réduit les PDEs en ODEs afin de simplifier la résolution.

La méthode des différences finies (MDF) est souvent utilisée pour simuler ce procédé. L'avantage de cette méthode est que une taille de maille arbitraire peut être utilisée pour discrétiser la taille des cristaux et le temps. Ainsi, nous pouvons trouver facilement les propriétés du modèle. Néanmoins, il existe des inconvénients non négligeables : cette méthode nécessite un maillage très fin pour aboutir à une solution précise ce qui demande un temps de calcul important et rend difficile le contrôle en temps réel. Des oscillations dues à la stabilité du schéma apparaissent en début de la simulation ce qui rends le résultat numérique non utilisable.

Dans le cas du modèle avec des tailles multidimensionnelles, très peu de méthodes numériques sont étudiées excepté la méthode des volumes finis. Cette méthode est largement utilisée en raison de sa loi de conservation et de sa précision. Dans ce contexte, on peut citer plusieurs travaux : Ma et al. [7] et Gunawan et al. [5] ont simulé l'équation du bilan de population multidimensionnelle en utilisant la méthode des volumes finis de la haute résolution; Puel et al. [10] ont proposé un algorithme basé sur la méthode des classes dans la simulation de la cristallisation des tailles multidimensionnelles; Briesen et al. [3] ont proposé d'utiliser un modèle réduit pour simuler la distribution des tailles multidimensionnelles.

Dans ce travail, nous proposons d'utiliser la méthode des caractéristiques (MDC) combinée avec la MDF pour résoudre le problème de simulation de la distribution des tailles uni-dimensionnelle. De plus, cette méthode peut être étendue au cas de tailles multidimensionnelles avec un temps de calcul optimal et un résultat plus précis.

La MDC est une méthode qui a démontré son efficacité pour la simulation du procédé de cristallisation dans le cas unidimensionnel. Dans le cas multidimensionnel, où le cristal croît suivant deux directions et peut être considéré comme un parallélépipède rectangle qui a deux surfaces carrées et a quatre surfaces rectangulaires, l'utilisation de la MDC est encore un challenge. Dans ce cas, si les deux dimensions de taille sont discrétisées avec des pas réguliers, la méthode ne peut pas garantir que la courbe caractéristique passe par le nœud de grilles créée par deux tailles discrétisées. Ainsi, la solution numérique du système multidimensionnel sera étudiée avec la MDC au maillage mouvant qui est la principale contribution de notre papier.

Cet article est organisé comme suite : Dans la section 2, nous commençons par donner le modèle d'un cristallisoir idéal de refroidissement en fonctionnement batch dans le cas unidimensionnel et bidimensionnel. Dans la section 3, nous allons décrire brièvement la MDC et expliquer comment utiliser cette méthode pour résoudre l'équation du bilan de population dans le cas de taille unidimensionnelle, puis étendre le résultat au cas bidimensionnel. Dans la section 4, deux exemples sont donnés pour illustrer l'approche proposée : le premier exemple est le modèle dans le cas de la taille unidimensionnelle, et les résultats de simulations obtenus à partir de la MDC sont comparés avec ceux de la MDF ; le second exemple est la simulation numérique du système dans le cas de la taille bidimensionnelle. Enfin, une conclusion et quelques futures directions de recherche seront données.

## II. MODÈLE DU CRISTALLISOIR

### A. modèle unidimensionnel (1-D)

Le modèle proposé (pour plus de détails voir Bakir[2]) est basé sur la cristallisation idéale de refroidissement en batch sous la condition de la sursaturation. Nous nous sommes limités dans notre choix de modélisation aux phénomènes de nucléation et de croissance, en évitant ainsi les phénomènes physiques telles que l'agglomération et l'attrition. Ces phénomènes sont très difficiles à modéliser, et présentent beaucoup d'incertitudes.

Dans ces conditions, le bilan de population est décrit par :

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial n(x,t)}{\partial x} = 0, (x,t) \in \mathbb{R}_+^2 \quad (1)$$

la condition initial et la condition aux frontières sont telles que :

$$n(x, t_0) = n_0(x) \quad (2)$$

$$n(x_{\min}, t) = \frac{R_n(t)}{G(t)} \quad (3)$$

où  $n(x,t)$ ,  $G(t)$ ,  $x$  et  $t$  représentent la densité de la taille des cristaux, le taux de croissance, la taille et le temps, respectivement.  $R_n(t)$  est le taux de nucléation homogène.

Notons que le taux de croissance est indépendant de la taille des cristaux :

$$G(t) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C(t) - C_{sat}(t))^J \quad (4)$$

Les variables  $C(t)$  et  $C_{sat}(t)$  représentent les concentrations de soluté et la solubilité, respectivement.  $M_s$  et  $\rho_s$  sont la molaire-masse et densité du soluté respectivement. Et  $\eta$  est la solution de l'équation non-linéaire :

$$\frac{K_c}{K_d} (C(t) - C_{sat}(t))^{J-1} \eta + \eta^{\frac{1}{J}} - 1 = 0 \quad (5)$$

où  $K_d$  et  $K_c$  sont des coefficients globaux de transfert de masse et de croissance, respectivement, et donc constantes et positives. La quantité  $\eta$  établie un rapport entre le flux de masse de solide actuel intégré dans la structure cristalline et le flux maximal théorique qui serait intégré en l'absence de limitation diffusive.

Les variables  $C(t)$  et  $C_{sat}(t)$  peuvent s'écrire sous la forme :

$$C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \quad (6)$$

$$C_{sat}(t) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t)}\right) \quad (7)$$

où  $a_{sat}$ ,  $\Delta H_f$  et  $R$  sont la constante de saturation, l'enthalpie de fusion et la constante universelle de gaze parfait, respectivement. La contrainte  $T_{cr}(t)$  est la température du cristallisoir et nous supposons que nous pouvons contrôler cette variable globalement. La variable  $C_s(t)$  est la concentration de solide dans la suspension.

Notons que, sous la condition de la sursaturation,  $C(t) > C_{sat}(t)$ , le taux de croissance  $G(t)$  est de valeur positive, et par conséquent  $\eta \in (0, 1)$ . Etant donné  $C(t)$  et  $C_{sat}(t)$ , nous pouvons trouver un solution numérique pour  $\eta$  en résolvant Eq. (5).

Le taux de nucléation  $R_n(t)$  est exprimé sous la forme  $R_n(t) = R_{n_1}(t) + R_{n_2}(t)$  par deux parties : où  $R_{n_1}(t)$ , respectivement  $R_{n_2}(t)$ , représente la partie de la nucléation primaire, respectivement secondaire. La partie de la nucléation primaire s'écrit sous la forme :

$$R_{n_1}(t) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) \quad (8)$$

et représente la cinétique quand il n'y a pas de cristal introduit dans la solution sursaturée.  $a_{n_1}$  et  $b_{n_1}$  étant les paramètres constants de la nucléation primaire. La partie de la nucléation secondaire s'écrit sous la forme :

$$R_{n_2}(t) = K_{n_2} (C(t) - C_{sat}(t))^{I_{n_2}} C_s(t)^{J_{n_2}} \quad (9)$$

et représente la cinétique quand des cristaux existent dans la solution sursaturé.  $K_{n_2}$ ,  $I_{n_2}$  et  $J_{n_2}$  étant les paramètres constants de la nucléation secondaire.

$C_s(t)$  est la concentration du solide dans la suspension, qui est calculée par :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty x^3 n(x,t) dx \quad (10)$$

où  $K_v$  est le facteur de forme, et est égal à  $\pi/6$  pour les cristaux considérés de forme sphériques. Ces deux parties principales constituent la cinétique de nucléation.

Les autres équations, par exemple l'équation du bilan d'énergie et l'équation du bilan de matière que l'on peut trouver dans [2], sont utilisées pour calculer la variation de la température du cristalliseur  $T_{cr}(t)$ , qui est associée à la solubilité  $C_{sat}(t)$  et la variation de concentration du soluté  $C(t)$ .

### B. modèle bidimensionnel(2-D)

Dans le modèle 2-D, les cristaux sont supposés sous forme d'un parallélépipède rectangle, et avec deux surfaces carrées, dont le volume est exprimée par  $V_{cr} = x^2 \cdot y$ . Ainsi, il existe deux directions de croissance  $x$  et  $y$  avec les taux de croissance  $G_x(t)$  et  $G_y(t)$ , respectivement. Son modèle a été étudié dans [10], et l'équation du bilan de population s'écrit :

$$\frac{\partial n(x, y, t)}{\partial t} + G_x(t) \frac{\partial n(x, y, t)}{\partial x} + G_y(t) \frac{\partial n(x, y, t)}{\partial y} = 0, \quad (11)$$

où  $(x, y, t) \in \mathbb{R}_+^3$ , la condition initiale et la condition aux frontières de l'équation du bilan de population que nous proposons d'étudier est sous la forme :

$$n(x, y, t_0) = n_0(x, y) \quad (12)$$

$$n(x_{\min}, y_{\min}, t) = \frac{R_n(t)}{G_y(t) \Delta l_x} \quad (13)$$

$$n(x \neq x_{\min}, y_{\min}, t) = 0 \quad (14)$$

$$n(x_{\min}, y \neq y_{\min}, t) = 0 \quad (15)$$

C'est-à-dire que la nucléation a lieu seulement sur la taille minimale des cristaux.

Les taux de croissance sont décrits par :

$$G_x(t) = \frac{2M_s}{\rho_s} K_{c_1} \eta_1 (C(t) - C_{sat}(t))^{J_1} \quad (16)$$

$$G_y(t) = \frac{2M_s}{\rho_s} K_{c_2} \eta_2 (C(t) - C_{sat}(t))^{J_2} \quad (17)$$

La relation entre  $\eta_1$ ,  $\eta_2$ ,  $C(t)$  et  $C_{sat}(t)$  est le même que dans le cas 1-D :

$$\frac{K_{c_1}}{K_{d_1}} (C(t) - C_{sat}(t))^{J_1-1} \eta_1 + \eta_1^{\frac{1}{J_1}} - 1 = 0 \quad (18)$$

$$\frac{K_{c_2}}{K_{d_2}} (C(t) - C_{sat}(t))^{J_2-1} \eta_2 + \eta_2^{\frac{1}{J_2}} - 1 = 0 \quad (19)$$

Les cristaux sont considérés sous forme de parallélépipède rectangle, la concentration de solide  $C_s(t)$  s'écrit :

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty \int_0^\infty x^2 y \cdot n(x, t) dx dy \quad (20)$$

où  $K_v$  est égal à 1 pour les cristaux de parallélépipède rectangle.

Le modèle 1-D peut être considéré comme un cas particulier du modèle 2-D, alors les autres équations, par exemple l'équation du bilan d'énergie et l'équation de la nucléation qui sont indépendantes de la taille des cristaux, sont les mêmes que dans le cas 1-D.

## III. MÉTHODE DES CARACTÉRISTIQUES

### A. MDC pour le cas de 1-D

Dans cette section, la MDC sera simplement expliquée pour discrétiser le système dans le cas 1-D. Ayant montré dans Eq. (1), et avec la définition du taux de croissance et la courbe caractéristique par  $\frac{dx}{dt} = G(t)$ , la dérivation totale de  $n$  par rapport de  $t$  suivant la courbe caractéristique est exprimée par :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \frac{dx}{dt} \quad (21)$$

Les points sur une courbe caractéristique satisfont l'équation  $\frac{dx}{dt} = G(t)$ , et Eq. (1), suivant une courbe caractéristique qui peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} G(t) = 0 \quad (22)$$

Ainsi l'équation du bilan de population est transformée en deux équations différentielles ordinaires comme suite :

$$\frac{dx}{dt} = G(t) \quad (23)$$

$$\frac{dn}{dt} = 0 \quad (24)$$

Notons que  $G(t)$  est indépendant de  $x$ , alors la dérivation de deux courbes caractéristiques qui commencent en deux points initiaux différents  $(x_i, t_0)$  et  $(x_j, t_0)$  sont égales quelque soit le moment  $t_1$  ; c'est-à-dire que les courbes caractéristiques sont parallèles suivant la direction de  $x$  sur le plan- $xt$ . Sous cette circonstance, la variable  $x$  est discrétisée avec un pas régulier. Sur le plan- $xt$ , les courbes caractéristiques, qui partent des  $x_i$  à l'instant  $t_{j-1}$ , arrivent à  $x_{i+1}$  en même temps quelque soit  $i = 1, 2, \dots$ , alors la résolution du problème revient à trouver le pas du temps  $\Delta t_{j-1}$  pour chaque instant  $t_{j-1}$ .

Ainsi, le système discrétisé est exprimé par :

$$n(x_i, t_j) = n(x_{i-1}, t_{j-1}), i = 1, 2, \dots, N \quad (25)$$

$$n(x_0, t_j) = \frac{R_n(t_j)}{G(t_j)} \quad (26)$$

$$x_j - x_{j-1} = \int_{t_{j-1}}^{t_j} G(\tau) d\tau \quad (27)$$

où  $x_i \in X$ ,  $X = [x_1, x_2, \dots, x_N]^T$ , et  $x_i - x_{i-1} = \Delta x$ .

Notons que  $x_N$  est le maximum de  $x$  discrétisé,  $x_0$  est le minimum de  $x$  discrétisé et  $\Delta x$  est le pas de discrétisation entre  $x_0$  et  $x_N$ .

La variation de la distribution de taille des cristaux suivant la courbe caractéristique n'est pas une approximation numérique, mais plutôt une autre présentation du modèle. Cela signifie que le modèle discrétisé représente fidèlement la distribution de taille des cristaux à chaque taille discrétisée sans erreur numérique.

### B. MDC pour le cas de 2-D

La MDC dans le cas 2-D est similaire à celle du cas 1-D : les courbes caractéristiques s'écrivent sous la forme :

$$\frac{dx}{dt} = G_x(t) \quad (28)$$

$$\frac{dy}{dt} = G_y(t). \quad (29)$$

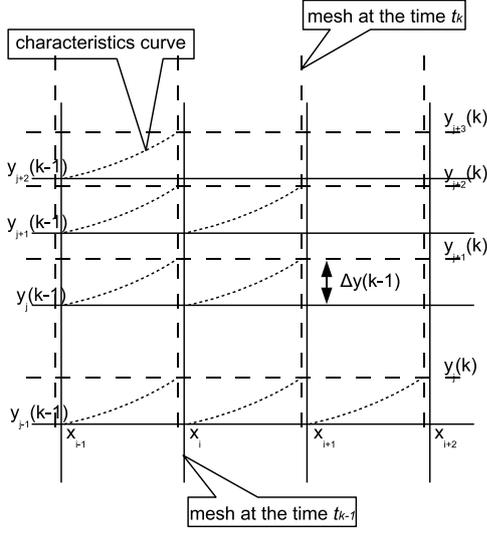


Fig. 1. schéma de la méthode des caractéristiques dans le plan-xy

Eq. (11), la variation de  $n$  par rapport de  $t$  suivant la courbe caractéristique, s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{dn}{dt} &= \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \cdot \frac{dx}{dt} + \frac{\partial n}{\partial y} \cdot \frac{dy}{dt} \\ &= \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \cdot G_x(t) + \frac{\partial n}{\partial y} \cdot G_y(t) = 0 \end{aligned}$$

Ainsi l'équation du bilan de population est décrite par :

$$\frac{dx}{dt} = G_x(t) \quad (30)$$

$$\frac{dy}{dt} = G_y(t) \quad (31)$$

$$\frac{dn}{dt} = 0 \quad (32)$$

Notons que :

$$\frac{dx}{dy} = \frac{G_x(t)}{G_y(t)}$$

qui est une fonction du temps  $t$ . Ainsi, entre deux instants différents, la proportion des pas de discrétisation dans  $x$  et dans  $y$  varie en fonction du temps. Dans ce cas, si nous construisons une maille rectangulaire fixe dans le plan- $xy$  en discrétisant les deux dimensions  $x$  et  $y$  durant le temps d'évolution, nous ne pouvons pas garantir l'existence d'une courbe caractéristique qui passe par deux nœuds arbitraires adjacents diagonaux aux deux instants consécutifs. Revenons aux équations de courbes caractéristiques Eq. (30) et Eq. (31). Les seconds membres des équations sont indépendants de  $x$  et  $y$ , comme dans le cas 1-D. Cela signifie que les projections des courbes caractéristiques sont parallèles suivant la direction  $x$  dans le plan- $xt$  et suivant la direction  $y$  dans le plan- $yt$ . C'est-à-dire que tous les points qui partent à l'instant  $t_{k-1}$  et arrivent à l'instant  $t_k$  passent la même distance dans le plan- $xy$ .

Avec cette illustration, nous introduisons deux nouvelles

variables  $\Delta x$  et  $\Delta y$ , avec la définition suivant :

$$\Delta x(t_0) = 0 \quad (33)$$

$$\Delta x(t) = \int_{t_0}^t G_x(\tau) d\tau \quad (34)$$

$$\Delta y(t_0) = 0 \quad (35)$$

$$\Delta y(t) = \int_{t_0}^t G_y(\tau) d\tau \quad (36)$$

alors, nous pouvons trouver la solution de cette EDP par la MDC, qui s'écrit sous la forme :

$$n(x, y, t_0) = n(x + \Delta x(t), y + \Delta y(t), t) \quad (37)$$

$$\Delta x(t) = \int_{t_0}^t G_x(\tau) d\tau \quad (38)$$

$$\Delta y(t) = \int_{t_0}^t G_y(\tau) d\tau. \quad (39)$$

Pour obtenir la solution numérique, nous devons discrétiser les variables  $x$  et  $y$  dans le plan- $xy$ . Nous supposons que  $x$  est discrétisé par un pas régulier constant  $\Delta x$  et que les valeurs minimales et maximales de cristaux sont désignées par  $x_0$  et  $x_N$ , respectivement. En utilisant Eq. (37) et Eq. (38),  $y$  est discrétisé par  $y_{j-1}(t_{k-1})$ ,  $j = 1, \dots, M$ . Supposons aussi que nous connaissons les valeurs de  $n$  à chaque nœud dans le plan- $xy$  à l'instant donné  $t_{k-1}$ . Sachant  $\Delta x$  donné et fixé, nous pouvons calculer le temps évolué à l'aide de Eq. (37) et le pas déplacé des nœuds suivant la direction de  $y$  partant de l'instant  $t_{k-1}$  à l'aide de Eq. (38). Ainsi le système discrétisé peut être exprimé par :

$$\begin{aligned} n(x_{i-1} + \Delta x, y_{j-1}(t_{k-1}) + \Delta y(t_{k-1}), t_k) \\ = n(x_{i-1}, y_{j-1}(t_{k-1}), t_{k-1}), \end{aligned} \quad (40)$$

$$\begin{aligned} i &= 1, 2, \dots, N \\ j &= 1, 2, \dots, M \end{aligned}$$

$$\Delta y(t_{k-1}) = \int_{t_{k-1}}^{t_k} G_y(t) dt \quad (41)$$

où  $t_k$  satisfie  $\Delta x = \int_{t_{k-1}}^{t_k} G_x(\tau) d\tau$ .

Notons que  $\Delta y(t_{k-1})$  est indépendant de  $x$  et de  $y$ . Nous pouvons créer un maillage rectangulaire dans le plan- $xy$  avec le pas constant  $\Delta x$  pour  $x$ , les tailles discrétisées  $Y(t_{k-1})$  pour  $y$  à l'instant  $t_{k-1}$  et  $Y(t_k)$  à l'instant  $t_k$  où  $y_j(t_k) - y_{j-1}(t_{k-1}) = \Delta y(t_{k-1})$ , qui garantit que la courbe caractéristique qui traverse les nœuds  $(x_{j-2}, y_{j-2}(t_{k-2}))$  et  $(x_{j-1}, y_{j-1}(t_{k-1}))$  traverse aussi le nœud  $(x_j, y_j(t_k))$  dans le plan- $xy$  vu dans la figure. 1.

L'algorithme de discrétisation est proposé comme suite :

1. supposons que la densité  $n$  est connu à l'instant donné  $t_{k-1}$  ;
2. donnons les tailles des cristaux discrétisés de  $x$ ,  $X = [x_0, x_1, \dots, x_N]$  avec le pas  $\Delta x$  au moment donné  $t_{k-1}$  ;
3. donnons les tailles des cristaux discrétisés de  $y$ ,  $Y(k-1) = [y_0(k-1), y_1(k-1), \dots, y_M(k-1)]$  à l'instant donné  $t_{k-1}$  ;
4. calculons l'instant  $t_k$  passant de  $x_{i-1}$  à  $x_i$  dans le plan- $xt$  ;

TABLE I  
PARAMÈTRES UTILISÉS DANS LA SIMULATION

Paramètre	Unité	Valeur
$M_s$	$Kg \cdot mol^{-1}$	$146.14 \times 10^{-3}$
$\rho_s$	$Kg \cdot m^{-3}$	1360
$J$	sansdimension	2.00
$K_c$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$1.57 \times 10^{-2}$
$K_d$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$
$a_{n_1}$	$[nb] \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$	$1.5 \times 10^{12}$
$b_{n_1}$	sansdimension	1.063
$K_{n_2}$	$\frac{[nb] \cdot m^{3(I_{n_2} + J_{n_2} - 1)}}{s \cdot mol^{(I_{n_2} + J_{n_2})}}$	$1.44 \times 10^3$
$J_1$	sansdimension	2.00
$J_2$	sansdimension	1.58
$K_{c_1}$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$1.57 \times 10^{-2}$
$K_{c_2}$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$7.18 \times 10^{-5}$
$K_{d_1}$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$
$K_{d_2}$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$

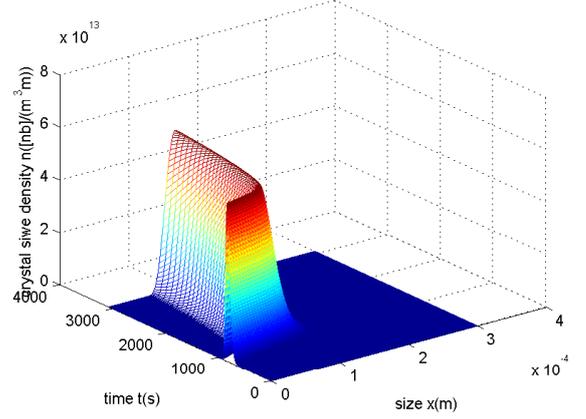


Fig. 2. L'évolution de la distribution de taille des cristaux simulée par la MDC (cas de 1-D)

5. calculons le pas  $\Delta y(t_{k-1})$  passant de  $Y(k-1)$  à l'instant  $t_{k-1}$  vers l'instant suivant  $t_k$  dans le plan- $yt$  ;

6. créons un nouveau maillage à l'instant  $t_k$  dans le plan- $xy$ ,  $X = [x_0, x_1, \dots, x_N]$  avec le pas  $\Delta x$ , et  $Y(k) = [y_0(k), y_0(k-1) + \Delta y_{k-1}, y_1(k-1) + \Delta y_{k-1}, \dots, y_N(k-2) + \Delta y_{k-1}]$  avec le pas  $\Delta y_{k-1}$  ;

7. calculons la densité  $n$  à l'instant  $t_k$  avec Eq. (40) et avec condition frontière suivante

$$\begin{aligned} n(x_i \neq x_0, y_0(k), t_k) &= 0, \\ n(x_0, y_j(k) \neq y_0(k), t_k) &= 0, \\ n(x_0, y_0(k), t_k) &= \frac{R_n(t_k)}{G_y(t_k) \Delta l_x} \end{aligned}$$

Notons que le soluté dans la solution est consommé, les cristaux ne peuvent pas s'accroître vers l'infini. En conséquence, des valeurs suffisamment grandes de  $x_N$  et  $y_M$  sont choisies pour éviter la perte des valeurs de  $n$  dans le maillage. La méthode complète a été mis en œuvre avec Matlab 7.04.

#### IV. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Pour illustrer les résultats du modèle, un procédé de cristallisation de refroidissement en batch sans ensemencement a été simulé. La température du cristallisateur a été diminuée de  $321K$  pendant 2 heures par une enveloppe de refroidissement (l'eau de  $288K$  à l'entrée). La concentration initiale  $C(t)$  est supposée être dans l'état saturé à la température initiale. Les paramètres utilisés dans la simulation sont résumés dans la table I.

La figure 2 présente la variation de la distribution de taille des cristaux par rapport au temps. La figure 3 représente la comparaison des distributions finales des tailles des cristaux donnée par la MDC et par la MDF. Nous pouvons observer que les distributions de taille finales données par la MDC avec les maillages différents (400 points, 800 points) sont les mêmes. En outre, plus petit est le pas de discrétisation, le profil final donné par la MDF est plus proche de ceux donnés par la MDC. Néanmoins, le temps de calcul demandé par la MDF est considérablement plus important. Un résumé de la comparaison du temps de calcul entre les deux méthodes se trouve dans la table II.

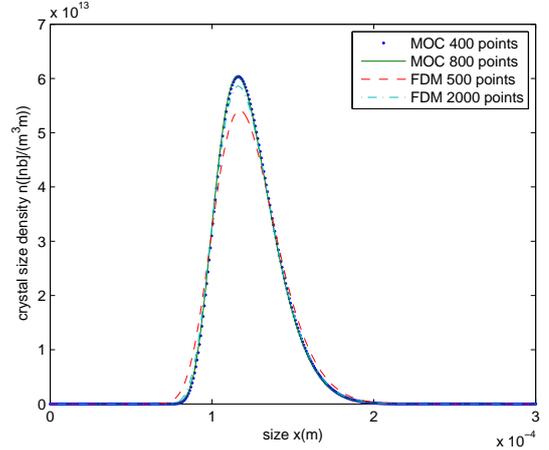


Fig. 3. Comparaison des distributions finales des tailles de cristaux (cas de 1-D)

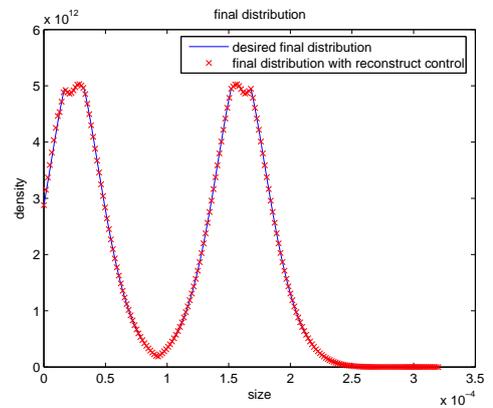


Fig. 4. La comparaison entre la distribution désirée et celle simulée par la MDC

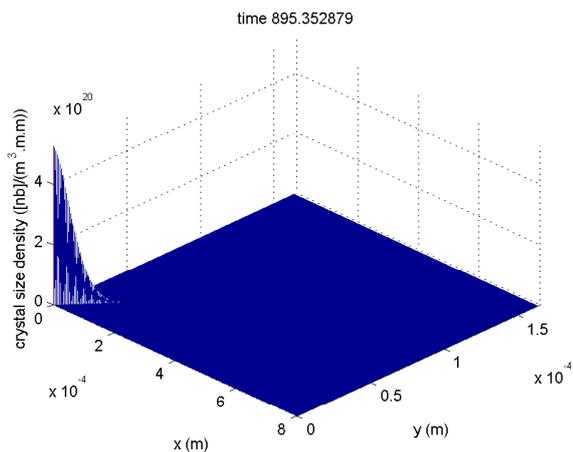


Fig. 5. Distribution des tailles de cristaux simulée par la MDC à  $t=895s$  (cas de 2-D)

TABLE II  
COMPARAISON DU TEMPS DE CALCUL

Méthode	temps de calcul
MDC(400 points)	17s
MDC(800 points)	34s
MDF(400 points)	26s
MDF(1000 points)	120s
MDF(2000 points)	530s

Nous donnons aussi un exemple de la MDC utilisée dans le contrôle de la distribution des tailles de cristaux. Nous considérons une distribution désirée, et nous utilisons la méthode d'inverse pour calculer la commande à appliquer au système. La simulation du système contrôlé est faite avec la MDC. La figure 4 présente la comparaison entre la distribution désirée et celle obtenue. Nous pouvons voir que les deux profils coïncident bien, ce qui montre que la MDC est robuste et permet de simuler le procédé commandé en respectant les propriétés physiques.

Les figures 5 et 6 représentent la distribution de taille des cristaux à 895s et celle finale, respectivement. La taille de maillage est  $400 \times 400$  et le temps de calcul est 127s avec

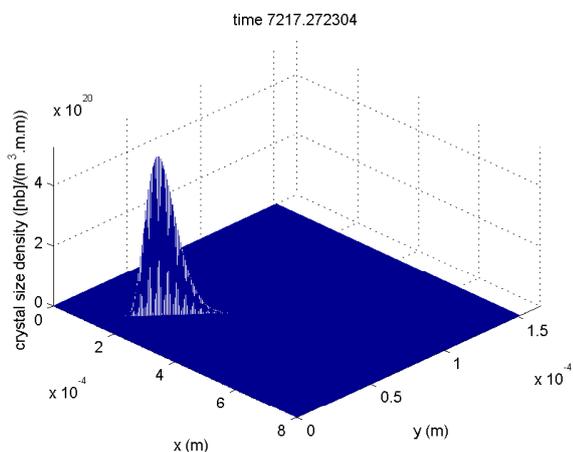


Fig. 6. Distribution finale des tailles de cristaux simulée par la MDC (cas de 2-D)

un PC personnel.

## V. CONCLUSIONS ET FUTURS TRAVAUX

Le but de ce travail est d'apporter une contribution à la simulation numérique d'un procédé de cristallisation en proposant une méthode précise et non conteuses en temps de calcul. L'étude a été orientée vers le cas de formation de cristaux multidimensionnels. La méthode des caractéristiques avec le pas régulier été introduite pour simuler le procédé de cristallisation du cas 1-D. Ensuite, cette méthode a été étendue dans le cas de la taille des cristaux bidimensionnels en utilisant un maillage mouvant. L'approche proposée permet de simuler avec précision le procédé et elle a démontré des bonnes performances en temps de calcul (temps de la simulation de 2h en modèle 2-D avec un maillage  $400 \times 400$  est de 127s). Cette vitesse de calcul est assez rapide pour une utilisation en temps réel dans l'objectif de concevoir des observateurs d'état et d'étudier les lois de contrôle, afin de commander la distribution des tailles de cristaux.

## RÉFÉRENCES

- [1] Aamir, E., Nagy Z. K., Rielly C. D., Kleinert T. et Judat B. Combined Quadrature Method of Moments and Method of Characteristics Approach for Efficient Solution of Population Balance Models for Dynamic Modeling and Crystal Size Distribution Control of Crystallization Processes. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol.48, n°18, pp. 8575-8584, 2009.
- [2] Bakir, T. *Estimation d'un procédé de cristallisation en batch*. Thèse de doctorat de l'Université de Claude Bernard Lyon 1, 2006.
- [3] Briesen, H. Simulation of crystal size and shape by means of a reduced two-dimensional population balance model. *Chemical Engineering Science*, vol.61, n°1, pp. 104 - 112, 2006.
- [4] Giaya, A. et Thompson R. W. Recovering the crystal size distribution from the moment equations. *AIChE Journal*, vol.50, pp. 879-882, 2004.
- [5] Gunawan, R., Fusman I. et Braatz R. D. High resolution algorithms for multidimensional population balance equations. *AIChE Journal*, vol.50, pp. 2738-2749, 2004.
- [6] LeVeque, R. J. *Finite volume methods for hyperbolic problems*, Cambridge University Press, 2002.
- [7] Ma, D. L., Tafti D. K. et Braatz R. D. High Resolution Simulation of Multidimensional Crystal Growth. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol.41, pp. 6217-6223, 2002.
- [8] Mahoney, A. W. et Ramkrishna D. Efficient solution of population balance equations with discontinuities by finite elements. *Chemical Engineering Science*, vol.57, n°7, pp. 1107-1119, 2002.
- [9] Marchisio, D. L., Piktorna J. T., Fox R. O., Vigil R. D. et Barresi A. A. Quadrature method of moments for population-balance equations. *AIChE Journal*, vol.49, pp. 1266-1276, 2003.
- [10] Puel, F., Févotte G. et Klein J. P. Simulation and analysis of industrial crystallization processes through multidimensional population balance equations. Part 1 : a resolution algorithm based on the method of classes. *Chemical Engineering Science*, vol.58, pp. 3715-3727, 2003.
- [11] Qamar, S., Ashfaq A., Angelov I., Elsner M. P., Warnecke G. et Seidel-Morgenstern A. Numerical solutions of population balance models in preferential crystallization. *Chemical Engineering Science*, vol.63, pp. 1342-1352, 2008.
- [12] Sotowa, K.-I., Naito K., Kano M., Hasebe S. et Hashimoto I. Application of the method of characteristics to crystallizer simulation and comparison with finite difference for controller performance evaluation. *Journal of Process Control*, vol.10, n°2-3, pp. 203 - 208, 2000.



## **Annexe B**

**Acte publié à l'occasion du  
congrès CCC 2011**

# Control of Crystal Size Distribution in Batch Crystallization Processes Governed by Partial Differential Equations

Kun Zhang<sup>1</sup>, Cheng-Zhong Xu<sup>1</sup>

1. Université de Lyon, Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés, Université Claude Bernard Lyon 1  
43 Boulevard du 11 novembre 1918, F-69622, Villeurbanne Cedex - France  
E-mail: zhang@lagep.univ-lyon1.fr, xu@lagep.univ-lyon1.fr

**Abstract:** The paper deals with the simulation of batch crystallization processes and their crystal size distribution controllability by temperature control. The dynamic of crystallization processes under consideration is governed by hyperbolic partial differential equations. We propose simulating the processes of one size variable using the method of characteristics. It turns out that the method of characteristics has no numerical diffusion as compared to the finite difference method. Given a desired crystal size distribution, we investigate its reachability from the null initial condition (i.e. without seeding) by controlling the temperature. Some checkable criterion is established to determine if a desired crystal size distribution is reachable. When it is reachable, an admissible temperature control is constructed to steer the states to the desired distribution in finite time. Our construction is developed based on the discretized model and applied for the original model described by partial differential equations. To ensure a desirable distribution to be reached, we add an output feedback control law to correct possible errors given rise to by uncertainty of parameters.

**Key Words:** infinite-dimensional system, controllability, method of characteristics, balance population equation, batch crystallization, crystal size distribution

## 1 Introduction

Crystallization is an important industrial process in chemical engineering. It is also an useful separation and purification process in pharmaceutical, chemical and food industries. Its model is based on the population balance equation described by a first order partial differential equation, where the important state, crystal size distribution (CSD), depends on time and crystal size. Optimization and control problems, which are difficult to solve with the partial differential equation directly, motivate us to find a numerical method for fast and accurate solution of the equation.

Much effort has been invested to develop appropriate numerical schemes. Among these numerical techniques, we can consider some primary and essential methods as follows: the moment method in [1] and [11] which consists to find a condition of closure, to solve the moment system and to reconstruct the size distribution; the finite difference method in [2] which consists to discretize all independent variables of partial differential equations, to study the variation of the state variable at each node and to transform the continuous system into discrete system; the finite volume method in [7] which consists to study the conservation law of each discretized volume instead of the node; the finite element method in [10] is to approximate the solution of partial differential equations with piecewise low order polynomials; and the method of characteristics which, normally combined with other numerical method such as the finite difference method [15] and the finite volume method [13], consists to study the variation of the state variable along the characteristics curves, by transforming the partial differential equations into the ordinary differential equations, and to propose strategies of discretization in relation with these numerical methods.

The finite differences method (FDM) is largely used to simulate this process. The advantage of the method is that finer and finer mesh size can be taken to satisfy the required precision. Moreover the structural property of the

discretized model is clear and simple. The disadvantage is that much finer mesh is required to get satisfied numerical results and that oscillations may occur which are not related to the model. Further finer mesh increases the computational time and the oscillations so that the numerical result is not accurate and sometimes non stable.

Here the method of characteristics (MOC) will be used to solve the above problems. When the method of characteristics is used for simulating the crystallization process with one size variable, the crystals are assimilated to spheres in the model, and the diameter of sphere is considered as crystal size. One contribution of the paper is proposing an algorithm based on the method of characteristics for efficient simulation of the batch crystallization process. The result obtained by the method of characteristics will be compared with the finite difference method.

The CSD determines the quality of the crystallization products, and it also affects the production efficiency of the subsequent products when the crystallization products are the semi-products. Therefore we have for the main objective to develop a method of driving the crystallizer state to the desired CSD. In the paper we focus our study on batch cooling crystallization processes.

Recently many control methods have been developed for batch cooling crystallization. Among these methods, two main directions have been identified [3]: the first is robustness analysis, which deals with the impact of model parameter uncertainty and disturbances [8]; the second is the optimization method concerned with some properties of crystallization such as the mean crystal size, the ratio of nucleated crystal mass to seed crystal mass etc (see [4] and [17]).

When we design control schemes for a system, we often study firstly the system controllability. Controllability analysis can figure out necessary extent and limit of control and help us to develop control methods. Although many methods have been developed for crystallization processes, there exist few studies about their controllability. Semino and Ray [14]

studied the controllability of the population balance equation (PBE), and demonstrated the controllability of a continuous crystallizer by the solute feed concentration control without constraint; Kalbasenka et al. [6] studied the controllability of the feed-batch Draft-Tube crystallizer by the evaporation control of solvent, with the PBE being simplified by the crystal age distribution.

In this paper we study a batch cooling crystallizer controlled by the temperature control. By studying its reachability we are able to construct a temperature trajectory to achieve the defined objective. The control design resorts to a feedback control scheme based on the control obtained by the study of reachability, in the lines of [5] and [16]. However the difference is that the proposed control, instead of being open loop, is designed in the form of closed-loop. Furthermore a corrector is introduced to compensate errors when the model has uncertain parameters.

The paper is organized as follows. The Section 2 will present the dynamical model for an ideal batched cooling crystallizer, governed by a nonlinear partial differential equation. In the Section 3, we will briefly describe the method of characteristics in one-dimensional size case and provides an numerical example for simulations. There the simulation results obtained by the MOC will be compared to those by the FDM. In Section 4, we study the reachability of a desired CSD for the batch cooling crystallization, based on its discretized model. From the study, a necessary and sufficient condition is proposed to determine if a given CSD is reachable or not by temperature control. Moreover we develop a control design, discuss the case where the nucleation parameters are uncertain, and design a feedforward/feedback control law to compensate the uncertainty. Simulation results are presented to illustrate performances of the proposed controller. The Section 5 contains our conclusions and directions of our future work.

## 2 Dynamical model of batch crystallization

Based on the ideal batched cooling crystallizer in the super-saturation condition without the breakage and without the aggregation, and with the growth rate being independent of the size under the McCabe hypothesis, the proposed model presented in [2] is, governed by the population balance equation as follows:

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial n(x,t)}{\partial x} = 0, \quad (x,t) \in \mathbb{R}_+^2 \quad (1)$$

where  $n(x,t)$  represents the crystal size distribution for crystal size  $x$  and at time  $t$ . The boundary and initial conditions for the population balance equation are given by

$$n(x,0) = n^0(x) \quad (2)$$

$$n(0,t) = \frac{R_n(t)}{G(t)} \quad (3)$$

where  $R_n$ ,  $G(t)$ ,  $x$  and  $t$  denote nucleation rate, growth rate, crystal size and time, respectively. In the following, we take always  $n_0 \equiv 0$  for the processes without seeding. Notice that the growth rate, independent of crystal size, is defined by:

$$G(t) = \frac{M_s}{2\rho_s} K_c \eta (C(t) - C_{sat}(t))^J \quad (4)$$

The variables  $C(t)$  and  $C_{sat}(t)$  represent the solute concentration and saturated solute concentration.  $M_s$  and  $\rho_s$  are molar mass and density of the solute, respectively. And  $\eta$  is the unique solution of the following nonlinear equation such that  $\eta \in (0,1)$  if  $C(t) > C_{sat}(t)$ :

$$\frac{K_c}{K_d} (C(t) - C_{sat}(t))^{J-1} \eta + \eta^J - 1 = 0 \quad (5)$$

where  $K_d > 0$  and  $K_c > 0$  are global mass transfer constant and growth constant, respectively. The quantity  $\eta$  relates the actual mass flux of solid integrated in the crystal structure to the maximum theoretical flux that would be integrated in the absence of diffusive limitation.

The variables  $C(t)$  and  $C_{sat}(t)$  represent the solute concentration and saturated solute concentration. Their expressions can be written as follows :

$$C(t) = \frac{[1 - M_s \rho_s^{-1} C_s(0)] C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - M_s \rho_s^{-1} C_s(t)} \quad (6)$$

$$C_{sat}(t) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t)}\right) \quad (7)$$

where  $a_{sat}$ ,  $\Delta H_f$  and  $R$  are the constant of saturation, fusion enthalpy and the universal constant of perfect air, respectively. The control  $T_{cr}(t)$  is the crystallizer temperature and is supposed to be known. The variable  $C_s(t)$  is the concentration of solid in the suspension, given by

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty x^3 n(x,t) dx \quad (8)$$

where  $K_v$  is the shape factor for a sphere crystal model,  $K_v$  is equal to  $\pi/6$ .

At super-saturation state, we have  $C(t) > C_{sat}(t)$  and growth rate  $G(t)$  is always positive, and then  $\eta \in (0,1)$ . Given  $C(t)$  and given  $C_{sat}(t)$ , a numerical solution can be found for  $\eta$  by solving (5). The term  $R_n(t)$  in Eq. (3) is homogeneous nucleation rate, including the primary and secondary nucleation. It can be expressed as  $R_n(t) = R_{n_1}(t) + R_{n_2}(t)$  where  $R_{n_1}(t)$  is the primary nucleation part and  $R_{n_2}(t)$  is the secondary nucleation part. The primary nucleation part

$$R_{n_1}(t) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) \quad (9)$$

represents the kinetic when there is no crystal inserting into the solution, where  $a_{n_1}$  and  $b_{n_1}$  are primary nucleation constants. And the secondary nucleation part

$$R_{n_2}(t) = K_{n_2} [C(t) - C_{sat}(t)]^{I_{n_2}} C_s(t)^{J_{n_2}} \quad (10)$$

represents the kinetic when there is crystal in the solution, where  $K_{n_2}$ ,  $I_{n_2}$  and  $J_{n_2}$  are secondary nucleation constant parameters. These two parts constitute the main nucleation kinetic.

The other balance equations such as energy balance equation and mass balance equation which can be found in [2] are used to compute the variation of the reactor temperature  $T_{cr}(t)$ , which is normally related with the saturated concentration  $C_{sat}(t)$  and the variation of the mass solute in the solution  $C(t)$ . However we suppose that  $T_{cr}(t)$  is our control variable for the sake of simplicity.

### 3 Simulations with method of characteristics

#### 3.1 Method of characteristics

In this section, the method of characteristics will be applied to solve the system in the 1-D case. As shown in Eq. (1), and with the definition of growth rate, along the characteristics curve  $\frac{dx}{dt} = G(t)$ , the total derivative of  $n$  with respect to  $t$  is written :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \frac{dx}{dt} \quad (11)$$

The points along a characteristics curve satisfy the relation  $\frac{dx}{dt} = G(t)$ . Then, with the Eq. (1), the variation of  $n$  following the characteristics curve can be expressed as:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} G(t) = 0 \quad (12)$$

Hence the population balance equation along a characteristics curve can be reduced into two ordinary differential equations as below:

$$\frac{dx}{dt} = G(t) \quad (13)$$

$$\frac{dn}{dt} = 0 \quad (14)$$

Note the growth rate is independent of the crystal size. So two characteristics curves which pass through two different initial points  $(x_i, t_0)$  and  $(x_j, t_0)$  have the same slope. It is meant that characteristic curves are parallel along the direction of  $x$ . Under this consideration, the crystal size can be discretized with the regular step. Along the characteristics curve, the discretized sizes grow and arrive in the adjacent discretized size at the same time, and so the problem is reduced to find the time step  $\Delta t_{j-1}$  beginning at a given time  $t_{j-1}$ . Therefore the discretized system is described by:

$$n(x_i, t_j) = n(x_{i-1}, t_{j-1}), \quad i = 1, 2, \dots, N \quad (15)$$

$$n(x_0, t_j) = \frac{R_n(t_j)}{G(t_j)}, \quad j = 1, 2, \dots, M \quad (16)$$

where  $x_i \in X$ , with  $X = \{x_1, x_2, \dots, x_N\}$  and  $\Delta x = x_i - x_{i-1}$ .  $x_N$  is the biggest crystal size in the process,  $x_0$  is the smallest crystal size, and a regular step is used to discretize the crystal size between  $x_0$  and  $x_N$ . The mesh grid points can be found by solving the nonlinear ordinary differential equation

$$\frac{dt}{dx} = \frac{1}{G(t)} \quad (17)$$

$$t(x_{i-1}) = t_{j-1}$$

If the Euler method is adopted, we get explicit solution of (17) as follows

$$t_j - t_{j-1} = \frac{\Delta x}{G(t_{j-1})}, \quad (18)$$

where  $G(t_{j-1})$  can be computed by (4)-(8).

Let us elucidate the difference between the FDM and the MOC. The FDM exhibits numerical errors when we discretize the time and the size. It needs much smaller time step and much smaller size step to get an accurate discretized

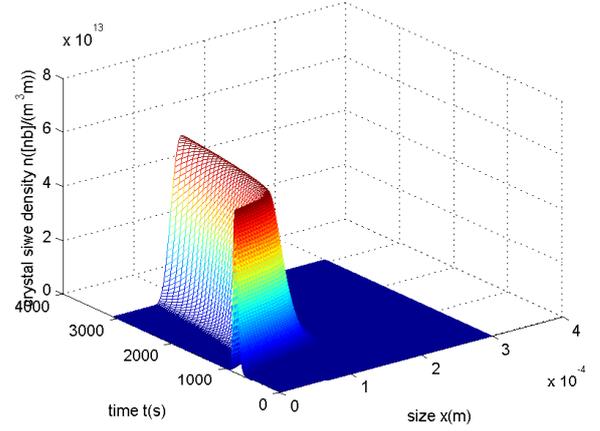


Fig. 1: 1-D Crystal size distribution with the MOC

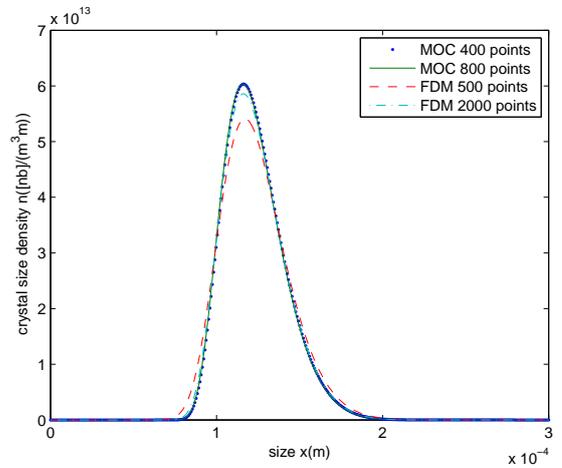


Fig. 2: Comparison of final 1-D crystal size distribution

model, which largely increases the computational time. For the MOC, the variation of crystal size distribution of discretized size following the characteristics curve is not a numerical approximation, rather than another representation of the model. It means that the discretized model presents accurately the crystal size distribution of each discretized size without numerical error.

#### 3.2 Simulation results and discussions

To illustrate the simulation results, a simple batch cooling crystallization process without seedings has been studied. The temperature of the reactor was decreased from 321K over 2 hours by a cooling jacket which import 288K water at the entrance. The initial concentration  $C(t)$  was assumed to be in the saturated state for the initial temperature. The parameters used in the simulation are summarized in Table 1. Figure 1 presents the time variation of the crystal size distribution by using MOC, and Figure 2 is the comparison of the final crystal size distributions between MOC and FDM. We observe that the final size distributions of two MOC with the different mesh size are the same, and smaller the size step is, closer is the final profile of the FDM to that of the MOC, with, of cause, longer computation time by the FDM (up to 251s for a 2000 discretized size). However, with MOC, we

resolve numerically the equation in 15s.

## 4 Controllability of crystal size distributions

### 4.1 Reachability of crystal size distributions

In the section, we study the reachability of crystal size distributions by means of temperature control, based on the discretized model. We suppose that the crystallizer temperature  $T_{cr}(t)$  is completely controlled by the jacket temperature  $T_{jack}(t)$ . Analysis is simplified by supposing that the control variable is  $T_{cr}(t)$ . However the essential feature of the process model is not lost. Therefore the qualitative results that we obtain here will remain valid and useful for the complete population balance equation model.

The reachability problem with the discretized model is stated as follows: Given a desired CSD profile  $n^d(x_i), \forall x_i \in X$ , how to find a sequence of control input  $T_{cr}(t_j), j = 1, 2, \dots, K$ , such that at  $t_K$ :

$$n(x_i, t_K) = n^d(x_i), \quad x_i \in X. \quad (19)$$

From (15) and (16), we have

$$n(x_i, t_j) = n(x_{i-1}, t_{j-1}) = n(x_{i-k}, t_{j-k}), \quad \forall k \in \mathbb{N}.$$

Another representation of the discretized model is given by:

$$n(x_i, t_j) = \begin{cases} n(x_0, t_{j-i}) = \frac{R_n(t_{j-i})}{G(t_{j-i})}, & 0 \leq i \leq j \\ n(x_{i-j}, 0) = n^0(x_{i-j}), & j < i \end{cases} \quad (20)$$

for  $i, j = 0, 1, \dots, N$ . As we consider the batch crystallization without seeding, the initial condition is null:  $n^0 \equiv 0$ . A necessary condition for a given CSD profile  $n^d$  to be reachable is the existence of some positive integer  $K$  such that  $n^d(x_i) = 0 \forall i > K$ , because the initial condition  $n^0$  is null. Obviously it is not sufficient. In the following we suppose that  $K$  is the least positive integer such that  $n^d(x_K) \neq 0$  and  $n^d(x_i) = 0 \forall i > K$ .

Since the system is hyperbolic, given a final desirable CSD profile  $n^d(x_i), i = 0, 1, \dots, K$ , the solution should be completely determined, i.e.

$$n(x_i, t_j) = \begin{cases} n^d(x_{K-j+i}), & 0 \leq i \leq j \\ 0, & j < i. \end{cases} \quad (21)$$

The question is to know if the determined solution may be a solution of the system (20) by choosing some sequence of control input  $T_{cr}(t_j), j = 1, 2, \dots, K$ . Notice just that  $R_n(t_j)$  and  $G(t_j)$  depend on  $T_{cr}(t_j)$  among other variables.

From this representation, we observe that the solution of the model is divided into two parts. The one is determined by the initial condition. It is obvious that this part can not be controlled by  $T_{cr}$ . The other is determined by the boundary condition, where the nucleation rate and growth rate are both related to  $T_{cr}$ , and so can be influenced by the temperature control.

Our next objective is to find a checkable criterion allowing to determine if a given desirable profile  $n^d(x_i)$  is reachable or not by means of temperature control.

**Definition 4.1** A given CSD profile  $n^d(x_i), i = 0, 1, \dots, K$ , is called reachable if there exists a sequence of temperature control  $T_{cr}(t_i)$  such that  $C(t_i) - C_{sat}(t_i) > 0$  and  $\frac{R_n(t_i)}{G(t_i)} = n^d(x_{K-i})$  for  $i = 0, 1, \dots, K$ .

**Theorem 4.2** A given CSD profile  $n^d(x_i), i = 0, 1, \dots, K$ , is reachable if and only if the following nonlinear algebraic relations have a solution  $(\alpha_i, \beta_i) \in (]0, 1[)^2$  for each  $0 \leq i \leq K$ :

$$\begin{aligned} & a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2(1 - \alpha_i)}\right) + K_{n_2} C^{J_{n_2}}(t_i) C_s(t_i)^{J_{n_2}} \alpha_i^{J_{n_2}} \\ &= \left[ \frac{n^d(x_{K-i}) K_c M_s C^J(t_i)}{2\rho_s} \right] \alpha_i^J \beta_i, \\ & \left[ \frac{K_c C^{J-1}(t_i)}{K_d} \right] \alpha_i^{J-1} \beta_i = 1 - \beta_i^{1/J}, \\ & [1 - \alpha_i] C(t_i) < a_{sat} \end{aligned} \quad (22)$$

where  $C(t_i)$  and  $C_s(t_i)$  are defined by

$$\begin{aligned} & C_s(t_0) = 0 \\ & C_s(t_i) = \frac{K_v \rho_s \Delta x}{2M_s} \sum_{j=0}^{i-1} \left[ x_j^3 n^d(x_{K-i+j}) + x_{j+1}^3 n^d(x_{K-i+j+1}) \right] \\ & C(t_i) = \frac{C(0) - C_s(t_i)}{1 - M_s \rho_s C_s(t_i)}. \end{aligned} \quad (23)$$

**Remark 4.3** All the parameters in Theorem 4.2 have been defined in previous sections. Moreover, if the condition in Theorem 4.2 is satisfied, the corresponding control sequence is given by  $T_{cr}^d(t_i)$  as follows

$$T_{cr}^d(t_i) = \frac{\Delta H_f}{R[\ln(a_{sat}) - \ln((1 - \alpha_i)C(t_i))]}$$

where  $\alpha_i$  is the solution of (22) to the index  $i$ .

Roughly speaking, given a desirable CSD profile  $n^d(x_i), i = 0, 1, \dots, K$ , that we want to achieve, the CSD profile should be determined correspondingly at each discrete time  $t_i$  without any ambiguity, though  $t_i$  is not yet known a priori. The only question is to know if it is realizable with temperature control. The Theorem 4.2 provides us a checkable necessary and sufficient condition for the realizability.

Although we have computed the desired control  $T_{cr}^d(t_i)$  at  $t_i$ , we still do not know the time instant  $t_i$  exactly. The time instants can be computed by the formula (18). On the other side, by computing the moment of different order, we could observe that, on supersaturation, the moments are monotonically increasing with time, and the moment  $\mu_3(t) = \int_0^\infty x^3 n(x, t) dx$  is the factor of the concentration of solid  $C_s(t)$ , which means that  $C_s(t)$  is also monotonically increasing. The measurable variable, solute concentration  $C(t)$ , decreases monotonically with time according to (6), and the desired solute concentration  $C(t_i)$ , which also decreases monotonically with time, can be computed by (23). Hence we obtain a simple and robust control design by creating a reference table between the desired solute concentration as output  $C^d$  and the desired control  $T_{cr}^d$ . We assume that the solute concentration  $C$  is the measurable output as well as the total number per unit of volume  $\mu_0(t) = \int_0^\infty n(x, t) dx$ . Notice that the feedforward desired control is given by  $T_{cr}^d$ .

### 4.2 Simulation results and discussions

In order to simulate the controllable profiles, a simple batch cooling crystallization model without seedings has

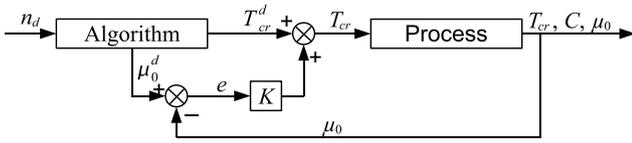


Fig. 3: Simple feedforward/feedback control scheme

Table 1: Parameters used in the simulation

Parameter	Unit	Value
$M_s$	$Kg \cdot mol^{-1}$	$146.14 \times 10^{-3}$
$\rho_s$	$Kg \cdot m^{-3}$	1360
$V_T$	$m^3$	$0.3 \times 10^{-3}$
$J$	dimensionless	2.00
$K_C$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$1.57 \times 10^{-2}$
$K_d$	$m \cdot s^{-1}$	$0.85 \times 10^{-3}$
$K_V$	dimensionless	$\pi/6$
$a_{n_1}$	$[nb] \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$	$1.5 \times 10^{12}$
$b_{n_1}$	dimensionless	1.063
$K_{n_2}$	$\frac{[nb] \cdot m^{3(l_{n_2} + l_{n_2} - 1)}}{s \cdot mol^{(l_{n_2} + l_{n_2})}}$	$1.44 \times 10^3$
$I_{n_2}$	dimensionless	1.968
$J_{n_2}$	dimensionless	1
$a_{sat}$	$mol \cdot m^{-3}$	$7.492 \times 10^{-6}$
$R$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	8.314
$\Delta H_f$	$J \cdot mol^{-1}$	32424.6
$\Delta H_C$	$J \cdot mol^{-1}$	-48000
$C_{p1}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	372
$C_{p2}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$C_{p3}$	$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$	75.33
$U$	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$	1000
$A$	$m^2$	$2.2 \times 10^{-2}$

been studied. The temperature of the reactor is decreased from 321K by the control  $T_{cr}$ . The initial concentration  $C(t)$  was assumed to be in the saturated state for the initial temperature. The parameters used in the simulation are listed in Table 1. The desired CSD is supposed to be the one shown in Fig. 4. We suppose that the nucleation parameters are all exactly known and without errors. We obtained the reference table between the desired solute concentration  $C^d$  and the desired crystallizer temperature  $T_{cr}^d$ . The variation of  $T_{cr}^d$  with  $C^d$  is shown in the Fig. 5. By using the simple feedforward control we have obtained the final CSD compared with the desired CSD in Fig. 6. We observe that two profiles are close to each other.

In the case where the nucleation parameters have been corrupted by errors, we used the desired control shown in Fig. 5 to drive the system. The simulation is shown in Fig. 7, and the relative error is 85.6%. We observe that the final CSD is sensitive to the nucleation parameters, and that the two profiles are totally separated. We used the feedback control scheme by measuring  $\mu_0(t)$  and by correcting the error  $(\mu_0(t) - \mu_0^d(t))$  with proportional gain  $K = -5 \cdot 10^{-6}$ . The desired control was the same as the one described in the Fig. 5, with

$$T_{cr}(t) = T_{cr}^d + K(\mu_0(t) - \mu_0^d(t))$$

and the final CSD was shown in the Fig. 8. From the figure, we see that the corrector has efficiently compensated the errors given rise to by the uncertain nucleation parameters, and the relative error was 0.88% as illustrated in the Fig. 8.

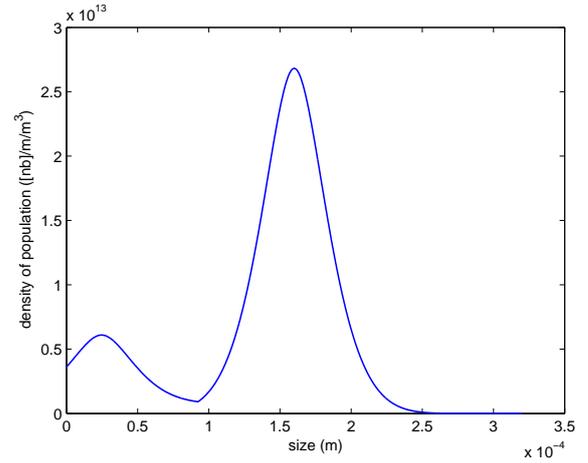


Fig. 4: Desired CSD

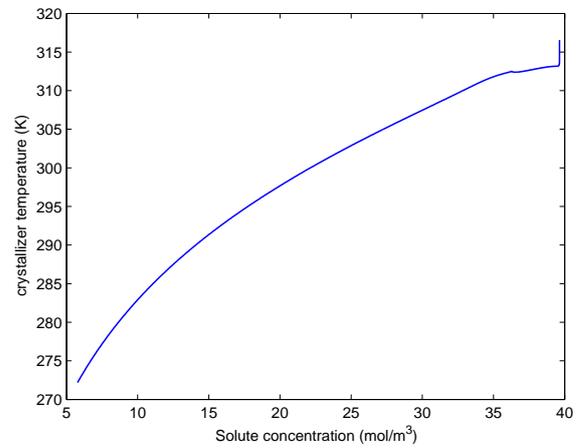


Fig. 5: Desired crystallizer temperature

## 5 Conclusions

The method of characteristics has been exploited to simulate the batch crystallization processes of 1-D crystal size. The method has utilized the relation between the time and the crystal size which is called characteristics curve, and the variation of crystal size distributions along the characteristics curves. The discretized models accurately simulate the two hours processes in a few minutes. This computation speed is quick enough for the control problems that we will investigate later.

In the paper, we have investigated the reachability of a desired CSD in the batch crystallization process by temperature control. The study has been done on the discretized model. A feedforward control scheme has been designed, based on the reachability analysis, to drive the state to reachable distributions. Moreover the sensitivity of the final CSD to the uncertainty of nucleation parameters has been analyzed, and it turns out that the desired control could hardly attain the desired CSD in the open-loop feedforward control configuration. That is the reason why an output feedback control law has been proposed to correct the uncertainty so as to reach the desirable CSD.

Properties and performances of the proposed controller have been evaluated by simulations. The simulation results

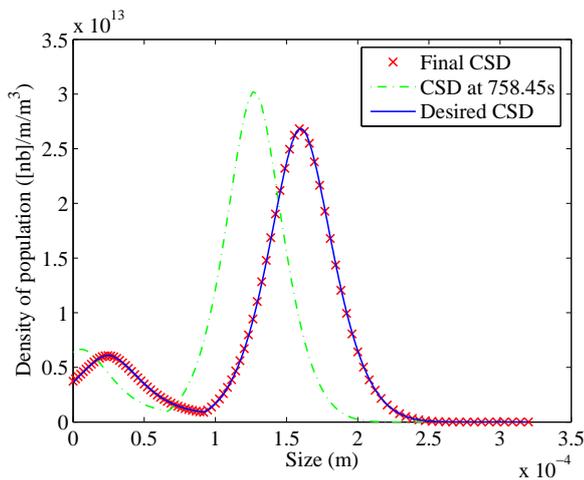


Fig. 6: Desired and final CSD with exact nucleation parameters

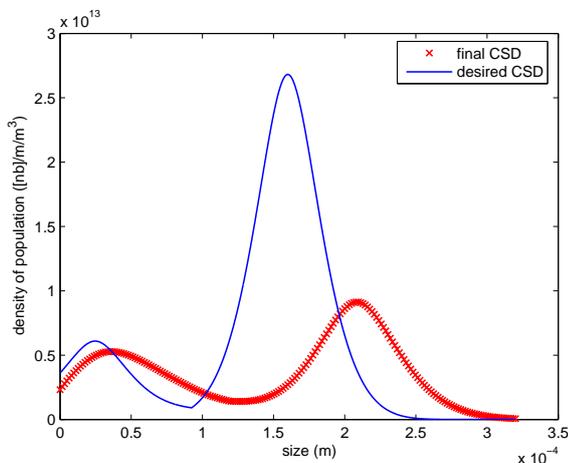


Fig. 7: Final CSD with uncertain nucleation parameters

demonstrate good performances and efficient guarantee for the final desired CSD profile. In the future work, we will provide a mathematical proof for the stability of the feedforward/feedback closed-loop. The proposed numerical algorithm will be utilized to design state observers and to study control laws, in order to shape crystal size distribution in the batch crystallization processes.

## References

- [1] E. Aamir, Z. K. Nagy, C. D. Rielly, T. Kleinert and B. Judat, Combined quadrature method of moments and method of characteristics approach for efficient solution of population balance models for dynamic modeling and crystal size distribution control of crystallization processes, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol.48, 8575-8584, 2009.
- [2] T. Bakir, Estimation d'un procédé de cristallisation en batch, Thesis, Université de Claude Bernard Lyon 1, 2006.
- [3] R. D. Braatz, Advanced control of crystallization processes, *Annu. Rev. Control*, vol. 26, 87-99, 2002.
- [4] S. H. Chung, D. L. Ma and R. D. Braatz, Optimal seeding in batch crystallization, *Can. J. Chem. Eng.*, vol. 77, 590-596, 1999.
- [5] M. J. Hounslow and G. K. Reynolds, Product engineering for crystal size distribution, *AIChE J.*, vol. 52, 2507-2517, 2006.

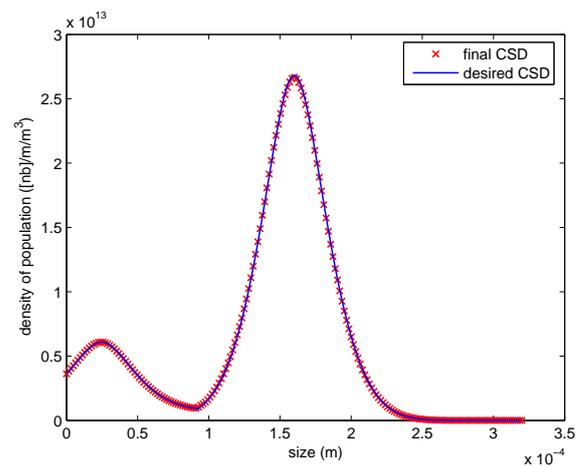


Fig. 8: Final CSD with uncertain nucleation parameters corrected by  $\mu_0$

- [6] A. Kalbasenka, A. Huesman, H. Kramer and O. Bosgra, "Controllability analysis of industrial crystallizers", in *12th international workshop on industrial crystallization*, Halle, Germany, 2005, 157-164.
- [7] R. J. LeVeque, Finite volume methods for hyperbolic problems, Cambridge University Press, 2002.
- [8] D. L. Ma and R. D. Braatz, Worst-case analysis of finite-time control policies, *IEEE Trans. Control Syst. Technol.*, vol. 9, 766-774, 2001.
- [9] D. L. Ma, D. K. Tafti and R. D. Braatz, High Resolution Simulation of Multidimensional Crystal Growth, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol.41, 6217-6223, 2002.
- [10] A. W. Mahoney and D. Ramkrishna, Efficient solution of population balance equations with discontinuities by finite elements, *Chemical Engineering Science*, vol.57, 1107-1119, 2002.
- [11] D. L. Marchisio, J. T. Pikturna, R. O. Fox, R. D. Vigil and A. A. Barresi, Quadrature method of moments for population-balance equations, *AIChE Journal*, vol.49, 1266-1276, 2003.
- [12] Z. K. Nagy and R. D. Braatz, Robust nonlinear model predictive control of batch processes, *AIChE J.*, vol. 49, 1776-1786, 2003.
- [13] S. Qamar, A. Ashfaq, I. Angelov, M. P. Elsner, G. Warnecke and A. Seidel-Morgenstern, Numerical solutions of population balance models in preferential crystallization, *Chemical Engineering Science*, vol.63, 1342-1352, 2008.
- [14] D. Semino and W. H. Ray, Control of systems described by population balance equations-i. controllability analysis, *Chem. Eng. Sci.*, vol. 50, 1805-1824, 1995.
- [15] K.-I. Sotowa, K. Naito, M. Kano, S. Hasebe and I. Hashimoto, Application of the method of characteristics to crystallizer simulation and comparison with finite difference for controller performance evaluation, *Journal of Process Control*, vol.10, 203-208, 2000.
- [16] U. Vollmer and J. Raisch, Control of batch crystallization—a system inversion approach, *Chem. Eng. Process.*, vol. 45, 874-885, 2006.
- [17] G. P. Zhang and S. Rohani, On-line optimal control of a seeded batch cooling crystallizer, *Chem. Eng. Sci.*, vol. 58, 1887-1896, 2003.



## Annexe C

Acte publié à l'occasion du  
congrès IFAC 2011

# Control of Crystal Size Distribution in Batch Crystallization Processes with Size-dependent Growth using Reachability Analysis<sup>\*</sup>

K. Zhang, M. Nadri, C.Z. Xu, B. Ucheddu<sup>\*</sup>  
and G. Févotte<sup>\*\*</sup>

<sup>\*</sup> *Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés, Université  
Claude Bernard Lyon 1, 69622 Villeurbanne, France.  
(e-mail: zhang@lagep.cpe.fr, nadri@lagep.cpe.fr, xu@lagep.cpe.fr,  
Ucheddu@lagep.cpe.fr)*

<sup>\*\*</sup> *LPMG, Centre SPIN, Ecole des Mines de Saint Etienne, 42000  
Saint Etienne, France. (e-mail: fevotte@emse.fr)*

---

**Abstract:** This paper deals with the control problem of crystallization processes. The dynamics of the system are governed by nonlinear partial differential equations, and the growth kinetics under consideration depends both on crystal size and on time. Given a desired crystal size distribution, we study its reachability from a initial condition without seeding using the temperature as control input. If the desired crystal size distribution is reachable, we are able to construct an admissible control to steer the states to the desired distribution. To ensure that the final desired distribution is attained, an output feedback control law is designed to correct errors due to uncertainty of model parameters.

*Keywords:* Reachability; Nonlinear partial differential equations; Output feedback control; Crystallization process; Size-dependent growth.

---

## 1. INTRODUCTION

In many industries, crystallization process is the most common way for producing high value chemicals with high purity and desired size and shape. It is usually used for separation and purification processes in pharmaceutical, chemical and food industries. The mathematical description of the crystallization process is based on population balance equations (PBE), coupled with integral differential algebraic equations representing the crystal size evolution. Consequently, the obtained dynamical model is described by a first order partial differential equation (PDE), where the important state variable, crystal size distribution (CSD), depends on both time and crystal size. The CSD is a parameter of paramount importance as it determines most of the quality variables of the final solid product.

In the case when the crystallization products are intermediate products, the CSD can affect the production efficiency of the subsequent products. Hence, an important problem of the control is how to drive the crystallizer state to the desired CSD.

Many control methods have been developed for batch cooling crystallization processes. Among these methods, two main directions have been investigated (see Braatz (2002)): the first is robustness analysis, one deals mainly

with the impact of the uncertain model parameters and the disturbances (cf. Ma and Braatz (2001)); the second is optimization, one studies and optimizes some properties of crystallization such as the mean crystal size, the ratio of nucleated crystal mass to seed crystal mass etc (cf. Chung et al. (1999), Hu et al. (2005) and Zhang and Rohani (2003)). These two directions can also be combined together to solve the optimization problem with the uncertain model (cf. Nagy and Braatz (2003)). Fujiwara et al. (2005) compared the first-principles and direct design approaches and emphasize importance of control for better product quality, shorter process times.

The control design for a given system necessitate a study of controllability. Controllability analysis can figure out necessary extents of control, and helps in developing control methods. In a previous paper (see Zhang et al. (2010)), authors have studied the reachability of a desired CSD for a batch cooling crystallizer in the case that the growth rate is independent of the crystal size under the McCabe's  $\Delta L$  Law (cf. McCabe (1929)). In this case, we are able to examine the reachability of the desired CSD for the discretized system and the PDE system by using the method of characteristics. However, some researches (see Canning and Randolph (1967)) have proved out that the growth rate of the crystallization may strongly depend on the crystal size for different process operating conditions. In this case, the crystallization process is a nonlinear PDE system and the method used in the previous paper can not adapt directly such system.

<sup>\*</sup> This work has been supported by grant "IPAPI 2007-2010 (programme BLAN 07-1/\_202691)" of the Agence Nationale de la Recherche.

In this paper, a batch cooling crystallizer is studied with temperature control in the case that the growth rate depends on the crystal size and is a product of two functions of two independent variables. Hence, the system is described by nonlinear PDE. The problem under consideration is: given a desired CSD, and using the reachability analysis based on the method of characteristics (MOC), are we able to construct a control trajectory to obtain the desired CSD? Furthermore, are we able to construct a corrector to compensate errors when the model has uncertain nucleation parameters?

The paper is organized as follows. In section 2, the crystallization model is introduced. In section 3, a discretized model using MOC is given. In section 4, the reachability of a desired CSD for a batch cooling crystallization based on its discretized model is presented. Then from this study, a close-loop control design is developed, and the case where the nucleation parameters are uncertain is discussed and a feedback control to compensate these uncertainties is designed. In section 5, some simulation results obtained by the proposed control method are presented.

## 2. DYNAMICAL MODELS OF BATCH CRYSTALLIZATION

The model considered is presented in Bakir et al. (2006) which is based on the ideal solution batch cooling crystallizer, where both breakage and aggregation of crystals are neglected, and the volume of the suspension is invariant. The model is governed by the following PDE:

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial(G(x, t)n(x, t))}{\partial x} = 0, \quad (x, t) \in \mathbb{R}_+^2 \quad (1)$$

with initial and boundary conditions:

$$n(x, 0) = n_0(x) \quad (2)$$

$$n(0, t) = \frac{R_n(t)}{G(0, t)} \quad (3)$$

where  $n(x, t)$ ,  $R_n(t)$ ,  $G(x, t)$ ,  $x$  and  $t$  represent crystal size density, nucleation rate, growth rate, crystal size and time, respectively.

Here the size-dependent growth rate is the product of two functions which is proposed by Aamir et al. (2009):

$$G(x, t) = G_1(x)G_2(t) \quad (4)$$

where  $G_1(x)$  and  $G_2(t)$  depend on the size  $x$  and to the time  $t$  respectively.

These two functions are formulated by:

$$G_1(x) = (1 + ax)^b \quad (5)$$

$$G_2(t) = K_g(C(t) - C_{sat}(t))^J \quad (6)$$

where  $a$ ,  $b$ ,  $K_g$  and  $J$  are the growth constants. The variables  $C(t)$  and  $C_{sat}(t)$  represent the solute concentration and the solubility, respectively.

The solubility  $C_{sat}(t)$  can be approximated by a thermodynamic function of the crystallizer temperature:

$$C_{sat}(t) = a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t)}\right) \quad (7)$$

where  $a_{sat}$ ,  $\Delta H_f$ ,  $R$  and  $T_{cr}(t)$  are the constant of saturation, the fusion enthalpy, the universal constant of perfect gases and the crystallizer temperature, respectively.

The solute concentration  $C(t)$  is described by the molar balance equation:

$$C(t) = \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s(t)}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(t)} \quad (8)$$

where  $M_s$  and  $\rho_s$  are molar mass of crystals and the density of crystals, respectively.

The variable  $C_s(t)$  is the concentration of solid in the suspension defined by:

$$C_s(t) = \frac{K_v \rho_s}{M_s} \int_0^\infty x^3 n(x, t) dx \quad (9)$$

where  $K_v$  is a shape factor (e.g. for a ideal spherical crystal,  $K_v$  is equal to  $\pi/6$ ).

The term  $R_n(t)$  in (3) includes the primary and secondary nucleations.

$$R_n(t) = R_{n_1}(t) + R_{n_2}(t) \quad (10)$$

The primary nucleation part is computed from the following expression:

$$R_{n_1}(t) = a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) \quad (11)$$

$a_{n_1}$  and  $b_{n_1}$  are primary nucleation constant parameters.

The secondary nucleation is expressed by the following empirical equation:

$$R_{n_2}(t) = K_{n_2}(C(t) - C_{sat}(t))^{I_{n_2}} C_s(t)^{J_{n_2}} \quad (12)$$

where  $K_{n_2}$ ,  $I_{n_2}$  and  $J_{n_2}$  are the secondary nucleation constant parameters which are positive.

The energy balance equation is described by:

$$\sum_{i=1}^3 C p_i n_i(t) \frac{dT_{cr}(t)}{dt} = -\Delta H_c V_T \frac{dC_s(t)}{dt} - UA(T_{cr}(t) - T_j(t)) \quad (13)$$

where  $C p_1$ ,  $C p_2$  and  $C p_3$  denote the molar heat capacity of the solid, of the solute in the solution and of the solvent, respectively,  $n_1$ ,  $n_2$  and  $n_3$  denote the molar number of the solid, of the solute in the solution and of the solvent, respectively, and  $\Delta H_c$ ,  $V_T$ ,  $U$ ,  $A$  and  $T_j$  are crystallization enthalpy, the total suspension volume, the overall heat transfer coefficient, contact surface through the jacket wall and jacket temperature, respectively.

The CSD can also be characterized by its moments:

$$\mu_i(t) = \int_0^\infty x^i n(x, t) dx, \quad i = 0, 1, 2, \dots \quad (14)$$

The moments from zero order to third order are, the factors of the total number, the total size, the total surface and the total volume of the crystals per unit volume of suspension, respectively.

The control strategy is based on cooling the crystallizer temperature to obtain the supersaturation such that the nucleation and growth of the crystals take place. Here the crystallizer temperature  $T_{cr}(t)$  is supposed to be completely controlled by the jacket temperature  $T_j(t)$ . Hence the process is simplified assuming that the control input is directly  $T_{cr}(t)$  in the following analysis and that  $T_{cr}(t)$ ,  $C(t)$  and  $\mu_0(t)$  are our measurable output variables. The system output to be controlled is the CSD  $n(x, t)$ .

### 3. DISCRETIZED MODEL

In this section, the model described by the PBE is discretized using the MOC which has been presented in Finlayson (1992) and Sotowa et al. (2000). The PBE (1) is rewritten as follow:

$$\frac{\partial n(x, t)}{\partial t} + G(x, t) \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} + n(x, t) \frac{\partial G(x, t)}{\partial x} = 0 \quad (15)$$

From the definition, the total derivative of  $n(x, t)$  with respect to  $t$  is described by the equation below:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial n}{\partial x} \frac{dx}{dt} \quad (16)$$

The characteristics curve defined in the  $xt$ -plane satisfies the relation:

$$\frac{dx}{dt} = G(x, t) \quad (17)$$

Then, with (15), the variation of  $n(x, t)$  with respect to  $t$  along the characteristics curve is expressed as:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\partial n}{\partial t} + G(t) \frac{\partial n}{\partial x} = -n(x, t) \frac{\partial G(x, t)}{\partial x} \quad (18)$$

Hence the variation of  $n(x, t)$  along a characteristics curve is reduced to the ordinary differential equations below:

$$\frac{dx}{dt} = G(x, t) \quad (19)$$

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = -n(x, t) \frac{\partial G(x, t)}{\partial x} \quad (20)$$

As the growth rate is the product of two independent functions, equation (20) can be recast to:

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = -n(x, t) G_2(t) \frac{dG_1(x)}{dx} = -\frac{n(x, t) dG_1(x)}{G_1(x) dt} \quad (21)$$

We finally obtain the simple equation:

$$\frac{d(n(x, t) G_1(x))}{dt} = 0 \quad (22)$$

In order to use the MOC to discretize the model, a new variable  $l$  is introduced with the definition:

$$\frac{dx}{dl} = G_1(x) \quad (23)$$

$$x(l = 0) = 0 \quad (24)$$

Equations (19) and (20) are reformulated to:

$$\frac{dl}{dt} = G_2(t) \quad (25)$$

$$\frac{dx}{dl} = G_1(x) \quad (26)$$

$$\frac{d(n(x, t) G_1(x))}{dt} = 0 \quad (27)$$

The part  $G_2(t)$  is independent of  $l$ , which means that the characteristics curves are parallel along the direction of  $l$  in the  $lt$ -plane. Therefore, the new variable  $l$  is discretized with the fixed step  $\Delta l$ , and the mesh is created such that the characteristics curves meet mesh points at every time step, and the exact discretized crystal size is precomputed analytically or numerically by (26). Hence, the problem is reduced to finding the time step  $\Delta t_{j-1}$  beginning at  $t_{j-1}$ .

Assuming that (23) has the explicit solution  $x = f(l)$ , the discretized model is then described by:

$$n(x_i, t_j) G_1(x_i) = n(x_{i-1}, t_{j-1}) G_1(x_{i-1}) \quad (28)$$

$$x_i = f(l_i), \quad i = 1, 2, \dots, N$$

$$n(x_0, t_j) = \frac{R_n(t_j)}{G(0, t_j)} \quad (29)$$

$$t_j = t_{j-1} + \int_{(j-1)\Delta l}^{j\Delta l} \frac{d\xi}{G_2(t(\xi))} \quad (30)$$

where  $l_i \in L$ ,  $L = [l_1, l_2, \dots, l_N]^T$ ,  $l_i - l_{i-1} = \Delta l$ .

In the above equation,  $x_N$  is chosen to be greater or equal to the biggest crystal size during the process,  $L_N$  is computed by (29), the crystal is formed at negligible size (usually referred to as the size of critical nucleus), and a fixed step  $\Delta l$  is used to discretize the crystal size between 0 and  $l_N$ .

In the discretized model,  $C_s$  defined by (9) is approximated by:

$$C_s(t_j) = \frac{K_v \rho_s}{2M_s} \sum_{i=0}^{N-1} [(x_i^3 n(x_i, t_j) + x_{i+1}^3 n(x_{i+1}, t_j))(x_{i+1} - x_i)] \quad (31)$$

We remark that the variation of the CSD of the discretized sizes along the characteristics curves is not a numerical approximation. The discretized model accurately presents the CSD of each discretized size without numerical errors.

### 4. REACHABILITY AND CONTROL OF THE BATCH COOLING CRYSTALLIZATION

#### 4.1 Reachability of the discretized model

In this section, we begin with studying the reachability of the discretized model. The reachability of the crystallization process in the discrete model is defined below.

*Definition 1.* A CSD  $n_d(x_i)$ ,  $\forall x_i \in X$ , is said reachable, if one can find a sequence of control input  $T_{cr}(t_j)$ ,  $j = 1, 2, \dots, K$ , such that  $n(x_i, t_K) = n_d(x_i)$ ,  $\forall x_i \in X$ , is satisfied.

Here the discretized PBE obtained by the MOC is studied for the reachability problem. We obtain another representation of the model which is expressed by iterating (28):

$$n(x_i, t_j) = \begin{cases} \frac{R_n(t_{j-i})}{G_1(x_i) G_2(t_{j-i})}, & i < j \\ \frac{n_0(x_{i-j}) G_1(x_{i-j})}{G_1(x_i)}, & i \geq j \end{cases} \quad (32)$$

for  $i = 0, 1, \dots, N$  and  $j = 0, 1, \dots, K$ .

From this representation, the solution of the model is divided into two parts. One is determined by the initial condition and by the size  $x$ , hence it is obvious that this part can not be controlled by  $T_{cr}$ . The other is determined by the boundary condition, where the nucleation rate and growth rate are both related to  $T_{cr}$ . Given a desired CSD at  $t_K$ , it can be separated into two part, the controllable part and the initial part as follows:

$$n_d(x_i) = \begin{cases} n_c(x_i), & i < K \\ n_I(x_i) = \frac{n_0(x_{i-K}) G_1(x_{i-K})}{G_1(x_i)}, & i \geq K \end{cases} \quad (33)$$

for  $i = 0, 1, \dots, N$ .  $n_c(x_i)$  is the control part which can be influenced by the control  $T_{cr}(t)$ , and  $n_I(x_i)$  is the initial part determined by the initial condition.

According to the given desired CSD, the reachability problem consists of finding a sequence of control  $T_{cr}(t_j)$ ,  $j = 1, 2, \dots, K$ , such that,  $\forall m \in \{0, 1, \dots, K-1\}$ :

$$n(x_m, t_K) = \frac{R_n(t_{K-m})}{G_1(x_m)G_2(t_{K-m})} = n_c(x_m) \quad (34)$$

is satisfied.

Equation (34) is related to the states of the system at  $t_{K-m}$ . Studying the growth rate and the nucleation rate (5), (6), (11) and (12), both  $R_n(t_{K-m})$  and  $G_2(t_{K-m})$  in (34) are functions of the variables  $C(t_{K-m})$ ,  $T_{cr}(t_{K-m})$  and  $C_s(t_{K-m})$ . From the definition of solid concentration  $C_s$ , the computation of  $C_s(t_{K-m})$  depends on the CSD at  $t_{K-m}$ .

From (32) the controllable part of the CSD at  $t_{K-m}$  is described by:

$$\begin{bmatrix} n(x_0, t_{K-m}) \\ n(x_1, t_{K-m}) \\ \vdots \\ n(x_{K-m-1}, t_{K-m}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{R_n(t_{K-m})}{G_1(x_0)G_2(t_{K-m})} \\ \frac{R_n(t_{K-m-1})}{G_1(x_1)G_2(t_{K-m-1})} \\ \vdots \\ \frac{R_n(t_1)}{G_1(x_{K-m-1})G_2(t_1)} \end{bmatrix} \quad (35)$$

The controllable part at  $t_{K-m}$  is related to  $R_n(t_{K-m})$ ,  $G_2(t_{K-m})$  as well as to the states of the previous time steps.

According to (28), the variation of the CSD along the characteristics curves is independent of the time  $t$ . Taking the desired CSD  $n_d(x_i)$  at  $t_K$  as initial condition, we solve (28) backward along the characteristics curves, and find the desired CSD at  $t_{k-m}$ , noted by  $n_d(x_i, t_{k-m})$ , described by:

$$\begin{bmatrix} n_d(x_0, t_{K-m}) \\ n_d(x_1, t_{K-m}) \\ \vdots \\ n_d(x_{K-m-1}, t_{K-m}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{n_c(x_m)G_1(x_m)}{G_1(x_0)} \\ \frac{n_c(x_{m+1})G_1(x_{m+1})}{G_1(x_1)} \\ \vdots \\ \frac{n_c(x_{K-1})G_1(x_{K-1})}{G_1(x_{K-m-1})} \end{bmatrix} \quad (36)$$

If  $n(x_i, t_{K-m-1}) = n_d(x_i, t_{K-m-1})$ ,  $\forall x_i \in X$  at  $t_{K-m-1}$ , then it is easy to prove from (28), (35) and (36) that  $n(x_j, t_{K-m}) = n_d(x_j, t_{K-m})$ ,  $j = 1, 2, \dots, N$ . We only need to find a temperature control  $T_{cr}(t_{K-m})$  such that  $n(x_0, t_{K-m}) = n_d(x_0, t_{K-m})$ .

If there exists  $T_{cr}(t_{K-m})$  satisfying that  $n(X, t_{K-m}) = n_d(X, t_{K-m})$ , then:

$$C_s(t_{K-m}) = C_s^d(t_{K-m}) \quad (37)$$

where  $C_s^d(t_{K-m})$  is the desired solid concentration at  $t_{K-m}$ .  $C_s^d(t_{K-m})$  is computed by the desired CSD at  $t_{K-m}$  using (31), (33) and (36).

And so the variable  $C(t_{K-m})$  is computed by (8) and (37):

$$\begin{aligned} C(t_{K-m}) &= C_d(t_{K-m}) \\ &= \frac{(1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s(0))C(0) + C_s(0) - C_s^d(t_{K-m})}{1 - \frac{M_s}{\rho_s} C_s^d(t_{K-m})} \end{aligned} \quad (38)$$

where  $C_d(t_{K-m})$  is the desired solute concentration at  $t_{K-m}$ .

Then only the control variable  $T_{cr}(t_{K-m})$  is unknown in (34). We should verify if the solution  $T_{cr}(t_{K-m})$  of (34) really exists. Hence, the reachability problem is equivalent to the problem of existence of solution: If  $\forall m < K$ , equation (34) has the solution for  $T_{cr}^d(t_{K-m})$ , then the desired CSD is reachable.

The result is summarized with the proposition below:

*Proposition 2.* A desired CSD defined by (33) is reachable if  $\forall m = 0, 1, \dots, K-1$ , the non-linear algebraic equation has the solution of  $T_{cr}(t_{K-m})$ :

$$\frac{R_n(t_{K-m})}{G_1(x_m)G_2(t_{K-m})} = n_c(x_m) \quad (39)$$

with

$$\begin{aligned} R_n(t_{K-m}) &= a_{n_1} \exp\left(\frac{-b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C_d(t_{K-m})}{C_{sat}(t_{K-m})}\right)}\right) \\ &\quad + K_{n_2} (C_d(t_{K-m}) - C_{sat}(t_{K-m}))^{I_{n_2}} C_s^d(t_{K-m})^{J_{n_2}} \\ G_1(x_m) &= (1 + ax_m)^b \\ G_2(t_{K-m}) &= K_g (C_d(t_{K-m}) - C_{sat}(t_{K-m}))^J \\ C_{sat}(t_{K-m}) &= a_{sat} \exp\left(\frac{-\Delta H_f}{RT_{cr}(t_{K-m})}\right) \end{aligned}$$

where  $C_s^d(t_{K-m})$  and  $C_d(t_{K-m})$  are defined by (37) and (38) respectively.

#### 4.2 Feedback control with uncertain nucleation parameters

Firstly, the control problem using the discretized model is studied. For a desired CSD  $n_d(x_i)$ ,  $\forall x_i \in X$ , if it is reachable, then a sequence of desired control  $T_{cr}^d(t_{K-m})$ ,  $m = 0, 1, \dots, K-1$  is obtained by solving (39). In the open-loop control, we need to know when the desired control  $T_{cr}^d$  is adapted in order to attain the desired CSD. Note that  $t_{K-m}$  in (39) is still unknown, equation (30) which defines the  $t_{K-m}$  is difficult to be solved explicitly.

In a supersaturated solution,  $C_s$  increases monotonically with increasing time, by its definition. The measurable state variable  $C$  decreases monotonically with time according to (8), and the desired solute concentration  $C_d(t_{K-m})$ , which also decreases monotonically with time, can be computed by (38). Therefore, a new closed-loop control is proposed, and a look-up table is created between the desired solute concentration  $C_d$  and the desired control  $T_{cr}^d$  as shown in Fig. 1.

Secondly, we study the model with the uncertain nucleation parameters. Normally, these parameters are obtained from experimental results in the ideal environment condition. In reality, the nucleation kinetics are sensitive to environment conditions, this means that the nucleation parameters are different from the ones used in the model for the analysis if the experimental environment changes. We suppose that the nucleation parameters  $a_{n_1}$ ,  $b_{n_1}$ ,  $K_{n_2}$  and  $I_{n_2}$  are disturbed by the errors  $\Delta a_{n_1}$ ,  $\Delta b_{n_1}$ ,  $\Delta K_{n_2}$  and  $\Delta I_{n_2}$ :

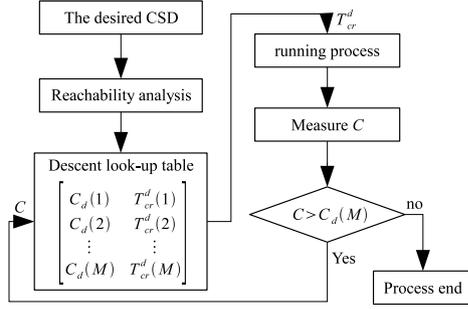


Fig. 1. feedback control algorithm

$$R'_{n_1}(t) = (a_{n_1} + \Delta a_{n_1}) \exp\left(\frac{-b_{n_1} - \Delta b_{n_1}}{\ln^2\left(\frac{C(t)}{C_{sat}(t)}\right)}\right) \quad (40)$$

$$R'_{n_2}(t) = (K_{n_2} + \Delta K_{n_2})(C(t) - C_{sat}(t))^{(I_{n_2} + \Delta I_{n_2})} C_s(t)^{J_{n_2}} \quad (41)$$

The example in the next section shows that the final CSD is sensitive to the nucleation parameters. The desired control  $T_{cr}^d(t)$  is computed by the model without disturbance, we can not drive the system to the desired CSD with the designed temperature control trajectory if the errors are large. Therefore, the control objective is to design a corrector such that at  $t'_K$ :

$$\|n(x_i, t'_K) - n_d(x_i, t_K)\|^2 = 0, \quad i = 0, 1, \dots, N \quad (42)$$

Note that the end time  $t'_K$  of the perturbed model could be different to  $t_K$  of the ideal model because of the disturbance. Our control design is based on the MOC, the characteristics curve relates the time variable  $t$  with the abstract size variable  $l$  through (25), (42) is recast to:

$$\|n(x_i, l_K) - n_d(x_i, l_K)\|^2 = 0, \quad i = 0, 1, \dots, N \quad (43)$$

The variation of the CSD along the characteristics curve only depends on  $x$  from (27). (42) is equivalent to:

$$\frac{G_1(x_0)^2}{G_1(x_i)^2} \|n(x_0, l_{K-i}) - n_d(x_0, l_{K-i})\|^2 = 0, \quad i < K \quad (44)$$

Hence the feedback error is:

$$e = n_d(x_0, l) - n(x_0, l) \quad (45)$$

The variable  $n(x_0, l)$  is not measurable where  $x_0 = 0$ . But its integration is  $\mu_0$  according to (3) and (25):

$$\int_{l_{K-i}}^{l_K} n(0, l) dl = \int_{l_{K-i}}^{l_K} \frac{R_n(l)}{G(0, l)} dl = \int_0^{t'_i} \frac{R_n(t)}{G_1(0)} dt = \frac{\mu_0(t'_i)}{G_1(0)}$$

and  $\mu_0$  is measurable. The desired zero order moment  $\mu_0^d(t_i)$  can be computed from the desired CSD  $n_d(x)$  using (31), (33) and (36).

Hence the integral control is used to correct the disturbance. The corresponding control scheme is illustrated in Fig. 2. We create a look-up table of  $\mu_0^d$  and  $C_d$ , measure  $\mu_0$ , and compare  $\mu_0$  with the desired  $\mu_0^d$  decided by the measured  $C$ . The difference between  $\mu_0^d$  and  $\mu_0$  is returned to the input of the process in order to correct the system.

## 5. RESULTS AND DISCUSSIONS

A batch cooling unseeded crystallization model has been studied. In this case, when sufficient supersaturation is

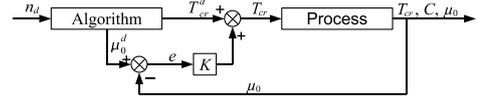


Fig. 2. Feedback control scheme

Table 1. Parameters used in the simulation

Parameter	Unit	Value
$J$	dimensionless	1.58
$K_g$	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	$7.18 \times 10^{-9}$
$a$	dimensionless	2500
$b$	dimensionless	2

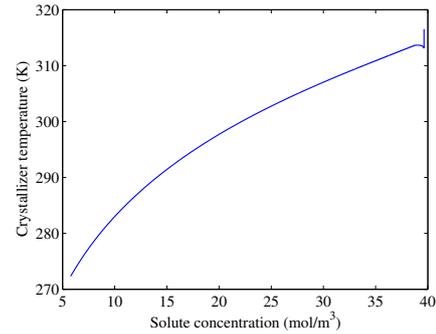


Fig. 3. Desired crystallizer temperature control

reached through cooling, the crystallization starts through spontaneous primary nucleation. The temperature of the reactor was decreased by a cooling jacket whose input was fed with cooling water, and the backstepping method was used to control  $T_{cr}$  with  $T_j$ . The initial concentration  $C(t)$  was assumed to be  $39.64 mol/m^3$ . The parameters used in the simulation are given in our previous paper Zhang et al. (2010), and the growth parameters are illustrated in table 1.

The desired CSD is supposed to be the profile in solid line shown in Fig. 4. We obtained the look-up table between  $C_d$  and  $T_{cr}^d$  through (39). The relation between  $T_{cr}^d$  and  $C_d$  was traced in Fig. 3.

Firstly, the case with ideal nucleation parameters is simulated. Using the closed-loop control scheme shown in Fig. 2, and the correction gain was  $K = -1 \times 10^{-7}$ , and the final CSD is shown in Fig. 4. We observed that the desired CSD and the simulated CSD were close to each other. Computing the relative error between the desired CSD and the final CSD with the formula:

$$Err = \frac{\|n(x, T) - n_d(x)\|}{\|n_d(x)\|} \quad (46)$$

the relative error was 0.27%.

In the case where the nucleation parameters were all disturbed with 10% error, the desired control  $T_{cr}^d$  shown in Fig. 1 was used to control the system without correction. The simulation is shown in Fig. 5. We observed that the desired CSD and the simulated CSD were totally separated, and the relative error was 87.4%. This means that the final CSD appears to be really sensitive to the nucleation parameters.

We used the control scheme with the correction of  $\mu_0$  shown in Fig. 2. The desired control  $T_{cr}$  was the same as

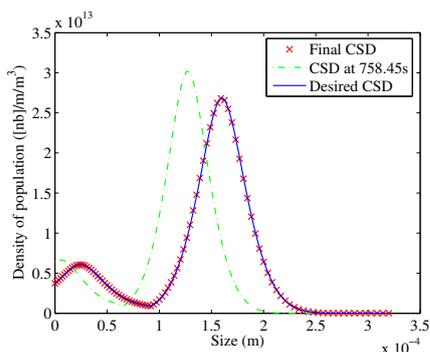


Fig. 4. Desired CSD and final CSD with exact nucleation parameters

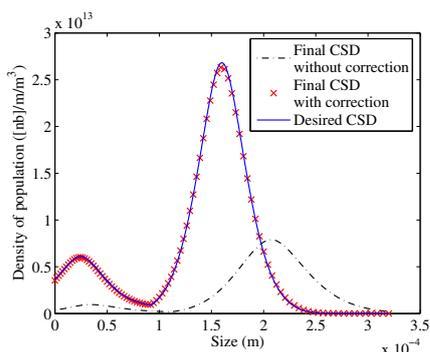


Fig. 5. Final CSD with uncertain nucleation parameters

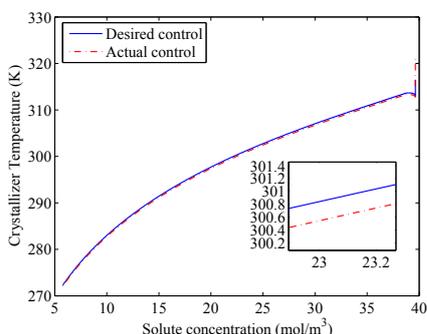


Fig. 6. Crystallizer temperature control corrected by  $\mu_0$

the profile shown in Fig. 3, and the final CSD was shown in Fig. 5. From this figure, we observed that the corrector has efficiently compensated the errors caused by the uncertain nucleation parameters, and the relative error between two profiles was 1.42%. And Fig. 6 showed the evolution of the temperature with the correction.

## 6. CONCLUSIONS AND FUTURE WORKS

In this paper the reachability of a desired CSD in the batch crystallization process with size-dependent growth rate is investigated. A control scheme based on reachability analysis is designed. Furthermore, the sensitivity of the final CSD to the uncertainty on the nucleation parameters is analysed, and it is concluded that the desired control could hardly attain the desired CSD. An output feedback control law to correct this uncertainty is proposed and the properties of the proposed controller were evaluated by simulation. The simulation results demonstrate good

performances and an efficient correction of the corrector. In future work, we shall provide a mathematical proof for the stability of the feedback correction.

## ACKNOWLEDGEMENTS

We acknowledge the Agence Nationale de la Recherche (ANR) for the support to the Project "IPAPI" (Improving the Properties of Active Pharmaceutical Ingredients).

## REFERENCES

- Aamir, E., Nagy, Z.K., Rielly, C.D., Kleinert, T., and Judat, B. (2009). Combined quadrature method of moments and method of characteristics approach for efficient solution of population balance models for dynamic modeling and crystal size distribution control of crystallization processes. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 48(18), 8575–8584.
- Bakir, T., Othman, S., Fevotte, G., and Hammouri, H. (2006). Nonlinear observer of crystal-size distribution during batch crystallization. *AIChE J.*, 52(6), 2188–2197.
- Braatz, R.D. (2002). Advanced control of crystallization processes. *Annu. Rev. Control*, 26(1), 87–99.
- Canning, T.F. and Randolph, A.D. (1967). Some aspects of crystallization theory: Systems that violate mccabe's delta l law. *AIChE J.*, 13(1), 5–10.
- Chung, S.H., Ma, D.L., and Braatz, R.D. (1999). Optimal seeding in batch crystallization. *Can. J. Chem. Eng.*, 77(3), 590–596.
- Finlayson, B.A. (1992). *Numerical Methods for Problems with Moving Fronts*. Ravenna Park Publishing, Incorporated.
- Fujiwara, M., Nagy, Z.K., Chew, J.W., and Braatz, R.D. (2005). First-principles and direct design approaches for the control of pharmaceutical crystallization. *J. Process Control*, 15(5), 493 – 504.
- Hu, Q., Rohani, S., Wang, D., and Jutan, A. (2005). Optimal control of a batch cooling seeded crystallizer. *Powder Technology*, 156(2-3), 170–176.
- Ma, D.L. and Braatz, R.D. (2001). Worst-case analysis of finite-time control policies. *IEEE Trans. Control Syst. Technol.*, 9(5), 766–774.
- McCabe, W.L. (1929). Crystal growth in aqueous solutions: I—theory. *Ind. Eng. Chem.*, 21(1), 30–33.
- Nagy, Z.K. and Braatz, R.D. (2003). Robust nonlinear model predictive control of batch processes. *AIChE J.*, 49(7), 1776–1786.
- Sotowa, K.I., Naito, K., Kano, M., Hasebe, S., and Hashimoto, I. (2000). Application of the method of characteristics to crystallizer simulation and comparison with finite difference for controller performance evaluation. *J. Process Control*, 10(2-3), 203 – 208.
- Zhang, G.P. and Rohani, S. (2003). On-line optimal control of a seeded batch cooling crystallizer. *Chem. Eng. Sci.*, 58(9), 1887–1896.
- Zhang, K., Nadri, M., and Xu, C.Z. (2010). Reachability analysis and control of crystal size distribution in batch crystallization processes. In *49th IEEE CDC*. Atlanta, GA, USA.



# Bibliographie

- AAMIR, E., NAGY, Z. K., RIELLY, C. D., KLEINERT, T. et JUDAT, B. (2009). Combined quadrature method of moments and method of characteristics approach for efficient solution of population balance models for dynamic modeling and crystal size distribution control of crystallization processes. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 48(18):8575–8584.
- BAKIR, T. (2006). *Estimation d'un procédé de cristallisation en batch*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1.
- BESANÇON, G. (2007). *Nonlinear Observers and Applications*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- BRAATZ, R. D. (2002). Advanced control of crystallization processes. *Annual Reviews in Control*, 26(1):87–99.
- BRIESEN, H. (2006). Simulation of crystal size and shape by means of a reduced two-dimensional population balance model. *Chemical Engineering Science*, 61(1):104–112. Advances in population balance modelling.
- CAILLET, A. (2006). *Etude de la Transition de Phase en Solution d'un Hydrate Grâce à un Suivi In-situ par Spectroscopie Raman et Acquisition d'Images*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1.
- CANNING, T. F. et RANDOLPH, A. D. (1967). Some aspects of crystallization theory : Systems that violate mccabe's delta l law. *AIChE Journal*, 13(1):5–10.
- CHOONG, K. L. et SMITH, R. (2004). Optimization of batch cooling crystallization. *Chemical Engineering Science*, 59(2):313–327.
- CHUNG, S. H., MA, D. L. et BRAATZ, R. D. (1999). Optimal seeding in batch crystallization. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 77(3):590–596.
- CORON, J.-M. (2007). *Control and nonlinearity*. American Mathematical Society.

- FUJIWARA, M., NAGY, Z. K., CHEW, J. W. et BRAATZ, R. D. (2005). First-principles and direct design approaches for the control of pharmaceutical crystallization. *Journal of Process Control*, 15(5):493–504.
- GAUTHIER, J. P., HAMMOURI, H. et OTHMAN, S. (1992). A simple observer for nonlinear systems applications to bioreactors. *IEEE Transaction on Automatic Control*, 37(6):875–880.
- GAUTHIER, J. P. et KUPKA, A. K. (1997). *Deterministic observation theory and applications*. Cambridge Univ Press.
- GIAYA, A. et THOMPSON, R. W. (2004). Recovering the crystal size distribution from the moment equations. *AIChE Journal*, 50(4):879–882.
- GODLEWSKI, E. et RAVIART, P.-A. (1996). *Numerical Approximation of Hyperbolic Systems of Conservation Laws*. Springer-Verlag New York Inc.
- GUNAWAN, R., FUSMAN, I. et BRAATZ, R. D. (2004). High resolution algorithms for multidimensional population balance equations. *AIChE Journal*, 50(11):2738–2749.
- HU, Q., ROHANI, S., WANG, D. et JUTAN, A. (2005). Optimal control of a batch cooling seeded crystallizer. *Powder Technology*, 156(2-3):170–176.
- KALBASENKA, A., HUESMAN, A., KRAMER, H. et BOSGRA, O. (2005). Controllability analysis of industrial crystallizers. In *12th International Workshop on Industrial Crystallization*, pages 157–164, Halle, Germany.
- KALMAN, R. E. et BUCY, R. S. (1961). New results in linear filtering and prediction theory. *J. Basic. Eng*, 83(3):95–108.
- KLEIN, J.-P., BOISTELLE, R. et DUGUA, J. (1994). Cristallisation industrielle. aspects pratiques. *Techniques de l'ingénieur*, J3(J2788):J2788.1–J2788.31.
- KRENER, A. J. et ISIDORI, A. (1983). Linearization by output injection and nonlinear observers. *Systems & Control Letters*, 3:47–52.
- LEVEQUE, R. J. (2002). *Finite volume methods for hyperbolic problems*. Cambridge University Press.
- LEWINER, F. (2000). *Application de la spectroscopie irtf-atr in-situ au suivi en ligne de cristallisations discontinues*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1.

- LI, T.-T. et RAO, B.-P. (2003). Exact boundary controllability for quasi-linear hyperbolic systems. *SIAM Journal on Control and Optimization*, 41(6):1748–1755.
- LUENBERGER, D. G. (1971). An introduction to observers. *IEEE Transaction on Automatic Control*, 16(6):596–602.
- MA, D. L. et BRAATZ, R. D. (2001). Worst-case analysis of finite-time control policies. *IEEE Transactions on Control Systems Technology*, 9(5):766–774.
- MA, D. L., TAFTI, D. K. et BRAATZ, R. D. (2002). High-resolution simulation of multidimensional crystal growth. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 41(25):6217–6223.
- MAHONEY, A. W., DOYLE III, F. J. et RAMKRISHNA, D. (2002). Inverse problems in population balances : Growth and nucleation from dynamic data. *AIChE Journal*, 48(5):981–990.
- MARCHISIO, D. L., PIKTURNA, J. T., FOX, R. O., VIGIL, R. D. et BARRESI, A. A. (2003). Quadrature method of moments for population-balance equations. *AIChE Journal*, 49(5):1266–1276.
- MCCABE, W. L. (1929). Crystal growth in aqueous solutions1 : I–theory. *Industrial & Engineering Chemistry*, 21(1):30–33.
- MERSMANN, A. (2001). *Crystallization technology handbook 2nd Edition*. Marcel Dekker.
- MULLIN, J. W. (1993). *Crystallization, 3th Edition*. Butterworths.
- NAGY, Z. K. (2009). Model based robust control approach for batch crystallization product design. *Computers & Chemical Engineering*, 33(10):1685 – 1691.
- NAGY, Z. K. et BRAATZ, R. D. (2003a). Robust nonlinear model predictive control of batch processes. *AIChE Journal*, 49(7):1776–1786.
- NAGY, Z. K. et BRAATZ, R. D. (2003b). Worst-case and distributional robustness analysis of finite-time control trajectories for nonlinear distributed parameter systems. *IEEE Transactions on Control Systems Technology*, 11(5):694–704.
- OULLION, F. (1989). *Etude de la cristallisation discontinue par spectroscopie atr-ftir in-situ, analyse d’image et modélisation par bilan de population bidimensionnel : Application à la vanilline*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1.

- PUEL, F. (1994). *Bilan de population pour deux tailles caractéristique des particules : application à la cristallisation de l'hydroquinone*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1.
- PUEL, F., FÉVOTTE, G. et KLEIN, J. P. (2003). Simulation and analysis of industrial crystallization processes through multidimensional population balance equations. part 1 : a resolution algorithm based on the method of classes. *Chemical Engineering Science*, 58(16):3715–3727.
- PUEL, F., VEESLER, S. et MANGIN, D. (2005). Cristallisation : Aspects théoriques. *Techniques de l'ingénieur*, JB2(J2710):J2710.1–J2710.16.
- QAMAR, S. et WARNECKE, G. (2008). Analytical and numerical investigations of a batch crystallization model. *Journal of Computational and Applied Mathematics*, 222(2):715–731.
- RAMKRISHNA, D. (2000). *Population Balances : Theory and Applications to Particulate Systems in Engineering*. Academic Press.
- SEMINO, D. et RAY, W. H. (1995). Control of systems described by population balance equations-i. controllability analysis. *Chemical Engineering Science*, 50(11):1805–1824.
- SOTOWA, K.-I., NAITO, K., KANO, M., HASEBE, S. et HASHIMOTO, I. (2000). Application of the method of characteristics to crystallizer simulation and comparison with finite difference for controller performance evaluation. *Journal of Process Control*, 10(2-3):203–208.
- UCCHEDDU, B., ZHANG, K., HAMMOURI, H. et FÉVOTTE, G. (2011). Design of a csd observer during batch cooling crystallization dealing with uncertain nucleation parameters. *In Proceedings of the 18th IFAC World Congress*, pages 10460–10465, Milano, Italy.
- VILLERMAUX, J. (1993). *Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs, 2e édition*. Lavoisier.
- ZHANG, G. P. et ROHANI, S. (2003). On-line optimal control of a seeded batch cooling crystallizer. *Chemical Engineering Science*, 58(9):1887–1896.
- ZHANG, K., NADRI, M. et XU, C.-Z. (2010a). Efficient numerical simulation of batch crystallization processes governed by partial differential equations. *In Proceedings*

of the 24th Chinese Control and Decision Conference (CCDC), pages 878–883, Xuzhou, China.

ZHANG, K., NADRI, M. et XU, C.-Z. (2010b). Reachability analysis and control of crystal size distribution in batch crystallization processes. *In Proceedings of the 49th IEEE CDC*, pages 3295–3300, Atlanta, USA.

ZHANG, K., NADRI, M. et XU, C.-Z. (2010c). Simulation numérique d'un procédé de cristallisation via l'équation du bilan de population multidimensionnelle. *In Proceedings of the 6ème Conférence Internationale Francophone d'Automatique (CIFA)*, Nancy, France.

ZHANG, K., NADRI, M., XU, C.-Z., UCCHEDDU, B. et FÉVOTTE, G. (2011). Control of crystal size distribution in batch crystallization processes with size-dependent growth using reachability analysis. *In Proceedings of the 18th IFAC World Congress*, pages 14025–14030, Milano, Italy.

ZHANG, K. et XU, C.-Z. (2011). Control of crystal size distribution in batch crystallization processes governed by partial differential equations. *In Proceedings of the 30th Chinese Control Conference (CCC)*, pages 992–997, Yantai, Chine.



# Liste des symboles

$n(x, t)$	densité de population en nombre, page 15
$C_{sat}(t)$	solubilité, page 7
$C(t)$	concentration de soluté, page 16
$C_s(t)$	concentration du solide, page 16
$\beta(t)$	rapport de sursaturation, page 7
$\sigma(t)$	sursaturation relative, page 7
$\Delta C(t)$	sursaturation absolue, page 7
$T_{cr}(t)$	température du cristalliseur, page 7
$T_{de}(t)$	température de la double enveloppe, page 17
$G(x, t)$	taux de croissance, page 15
$G_l(x)$	partie de croissance dépendant de la taille, page 19
$G_t(t)$	partie de croissance dépendant du temps, page 19
$R_n(t)$	taux de nucléation, page 17
$R_{n_1}(t)$	taux de nucléation primaire, page 17
$R_{n_2}(t)$	taux de nucléation secondaire, page 17
$N_{tot}(t)$	nombre total de cristaux, page 16
$a_{sat}$	constante de saturation, page 7
$R$	constante de Boltzmann, page 7
$\Delta H_f$	enthalpie de fusion, page 7
$X_{min}$	taille du plus petit cristal stable, page 15
$X_{max}$	taille maximale du cristal, page 15
$V_T$	volume total, page 16
$V_t(t)$	volume de la solution, page 16
$M_s$	masse molaire du solide, page 16
$\rho_s$	masse volumique du solide, page 16
$K_v$	facteur de forme, page 16
$Cp_1$	capacités molaires thermiques du solide, page 17
$Cp_2$	capacités molaires thermiques du soluté, page 17
$Cp_3$	capacités molaires thermiques du solvant, page 17

$n_1(t)$	nombre de moles du solide, page 17
$n_2(t)$	nombre de moles du soluté, page 17
$n_3(t)$	nombre de moles du solvant, page 17
$\Delta H_c$	enthalpie de cristallisation, page 17
$U$	coefficient globale de transfert de la chaleur, page 17
$A$	surface de transfert de chaleur, page 17
$a_{n_1}$	paramètre constant de nucléation primaire, page 18
$b_{n_1}$	paramètre constant de nucléation primaire, page 18
$K_{n_2}$	paramètre constant de nucléation secondaire, page 18
$I_{n_2}$	exposant constant de nucléation secondaire, page 18
$J_{n_2}$	exposant constant de nucléation secondaire, page 18
$K_c$	paramètre constant de croissance, page 19
$J$	exposant constant de croissance, page 19
$\eta(t)$	facteur de flux de transfert, page 19
$K_d$	coefficient global de transfert de masse, page 19
$a$	paramètre constant de croissance, page 19
$b$	exposant constant de croissance, page 19
$K_g$	paramètre constant de croissance, page 19
$J_g$	exposant constant de croissance, page 19
$D(t)$	taux de décroissance, page 21
$K_{diss}$	paramètre constant de dissolution, page 21
$J_d$	exposant constant et positif de dissolution, page 21
$\mu_0$	moment d'ordre 0, page 26
$\mu_1$	moment d'ordre 1, page 26
$\mu_2$	moment d'ordre 2, page 26
$\mu_3$	moment d'ordre 3, page 26
$Ln_{moy}(t)$	taille moyenne en nombre, page 26
$CV_{Ln}(t)$	coefficient de variance de la taille moyenne en nombre, page 26
$Lm_{moy}(t)$	taille moyenne en masse, page 26
$CV_{Lm}(t)$	coefficient de variance de la taille moyenne en masse, page 26
$n_d(x)$	DTC désirée, page 61
$n_c(x)$	partie de la DTC désirée contrôlée par la commande $T_{cr}$ , page 62
$n_0(x)$	partie de la DTC désirée déterminée par la condition initiale, page 62
$C_s^d(t)$	concentration du solide désirée, page 63
$C_d(t)$	concentration du soluté désirée, page 63
$T_{cr}^d(t)$	température du cristalliseur désirée, page 63

# Liste des acronymes

DTC	Distribution des Tailles de Cristaux, page 15
CSD	Crystal Size Distribution, page 15
EDP	Équation aux Dérivées Partielles, page 15
PDE	Partial Differential Equation, page 15
EDO	Équations Différentielles Ordinaires, page 24
ODE	Ordinary Differential Equation, page 24
EBP	Équation Bilan de Population, page 15
PBE	Population Balance Equation, page 15
MDF	Méthode des Différences Finies, page 28
FDM	Finite Difference Method, page 28
MDC	Méthode des Caractéristiques, page 30
MOC	Method Of Characteristics, page 30

## **Résumé**

L'objectif principal de ce travail de recherche est de contrôler l'évolution de la distribution des tailles de cristaux (DTC) dans un procédé de cristallisation en batch. Nous avons été amenés à chercher une résolution numérique du bilan de population et à proposer un algorithme rapide et précis. La méthode numérique a été étendue au cas de la taille des cristaux multidimensionnels en utilisant un maillage mouvant. Nous avons étudié le problème de la commandabilité du système à partir de son modèle discrétisé et puis à partir du modèle continu. Nous avons conçu une loi de commande en boucle fermée pour atteindre la DTC désirée à partir de la condition initiale. Pour compenser l'incertitude des paramètres du modèle, nous avons ajouté second contrôle par retour d'état afin d'assurer la poursuite de la DTC désirée en présence de l'incertitude des paramètres. Nous avons construit un observateur qui nous permet d'avoir en ligne l'estimation de Les variables d'état. Ces variables d'état estimées sont utilisées dans la synthèse de la loi du contrôle.

**Discipline : Automatique**

**Mots-clés :** Procédé de cristallisation en batch, résolution numérique, analyse de commandabilité, balance de population, distribution des tailles de cristaux, contrôle en boucle fermée, systèmes en dimension infinie, observateur.

**Crystal size distribution control of crystallization process governed by partial differential equations**

## **Abstract**

The main objective of this research is to control the evolution of the Crystal Size Distribution (CSD) in a batch crystallization process. We are led to study a numerical resolution of the population balance and propose an algorithm for fast and accurate simulation. This method was extended to the case of the two-dimensional crystal by using a moving mesh. We studied the problem of controllability of the system from its discretized model and then from the continuous model. To compensate the uncertainty of the model parameters, we added the second state feedback control to ensure the tracking of the desired CSD in presence of parameter uncertainty. We constructed an observer who provides us with on-line estimation of state variables. These state variables estimated are used in the control law synthesis.

**Keywords :** batch crystallization process, numerical resolution, controllability analysis, population balance, crystal size distribution, output feedback control, infinite dimensional systems, observer.