HAL
open science

Contrôle de la cristallisation du alpha-lactose monohydraté

Amira Rachah, Fabien Baillon, Fabienne Espitalier, Dominikus Noll

To cite this version:

Amira Rachah, Fabien Baillon, Fabienne Espitalier, Dominikus Noll. Contrôle de la cristallisation du alpha-lactose monohydraté. CRISTAL 7 -7ème édition du colloque Cristallisation et précipitation industrielles, May 2013, Albi, France. Art. 30-9 p. hal-01768685

HAL Id: hal-01768685

https://hal.science/hal-01768685v1

Submitted on 6 Sep 2018

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.

Contrôle de la cristallisation du alpha-lactose monohydraté

RACHAH Amira[a*], BAILLON Fabien[b], ESPITALIER Fabienne[b] et NOLL Dominikus[a]

[a]Institut de Mathématiques de Toulouse
Université Paul Sabatier,Toulouse, France

[b]Université de Toulouse, Mines Albi
CNRS UMR 5302, Centre RAPSODEE, C.Jarlard, ALBI

Résumé

La cristallisation est une opération utilisée dans différents domaines industriels comme la pharmacie, l'agro-alimentaire ou la chimie fine. Ce processus consiste à isoler un produit en solution pour le récupérer sous forme solide dans l'objectif de conférer au solide synthétisé des spécifications voulues en vue de contrôler ses propriétés d'usage.

Un grand intérêt est porté à l'étude du processus de cristallisation afin de le maîtriser, et donc d'améliorer les propriétés du produit final. Un modèle dynamique fiable décrivant les phénomènes mis en jeu est nécessaire pour l'étudier, et appliquer des stratégies de contrôle afin de produire des solides conformes aux cahiers des charges et aux exigences industrielles.

Dans ce travail, nous nous intéressons à la cristallisation du α-lactose monohydraté en mode semi-continu avec ensemencement. Le lactose est un sucre réducteur présent dans le lait, qui existe sous deux formes anomériques α et β en solution (mutarotation).

La modélisation mathématique de la cristallisation du α-lactose monohydraté comprend le bilan de population sur les cristaux de α-lactose monohydraté, les bilans de matières sur le α-lactose, le β-lactose et l'eau, avec prise en compte de la mutarotation et le bilan d'énergie.

Cette étude présente le contrôle du processus de cristallisation selon deux objectifs d'optimisation : minimisation du taux de nucléation et minimisation du coefficient de variation de la distribution de taille en volume.

Mots-clés : Cristallisation, Modélisation, Optimisation, Contrôle optimal

1. Introduction

Dans le domaine agro-alimentaire, des nombreux efforts ont été faits pour maîtriser le processus de cristallisation du lactose en vue d'améliorer la distribution de taille du produit final.

L'objectif de ce travail est de proposer un modèle dynamique fiable de cristallisation du α-lactose monohydraté en mode semi-continu à partir de résultats de cinétiques publiés dans la littérature en prenant en compte la mutarotation du lactose en solution. De ce fait, cette étude est nouvelle par rapport aux précédents travaux sur la cristallisation du α-lactose monohydraté en mode discontinu par Shi et al. (2009), Mcleod (2007) et Mimouni et al. (2009).

Différentes stratégies de contrôle ont été étudiées afin d'obtenir des produits conformes aux cahiers des charges et aux exigences industrielles. Suivant l'objectif choisi, on détermine le profil de contrôle et l'évolution des états du système.

Le cristallisoir utilisé dans cette étude est une cuve de 10 L supposée parfaitement agitée. Dans une première étape, il est rempli jusqu'à 1,5 L et ensemencé avec 100 g de cristaux. Dans une seconde étape, le reste de la solution de concentration fixe est ajoutée à température constante. Dans cette étude, seuls les

* Auteur/s à qui la correspondance devrait être adressée : amira.rachah@math.univ-toulouse.fr, fabienne.espitalier@mines-albi.fr

phénomènes de nucléation primaire et de croissance sont pris en compte dans la modélisation, en négligeant les phénomènes d'agglomération et de brisure. Les résultats ainsi obtenus nous permettront de valider notre stratégie de contrôle.
Deux objectifs d'optimisation sont présentés dans ce travail : la minimisation de la vitesse de nucléation et la minimisation du coefficient de variation de la distribution de taille en volume.

2. Modèle dynamique de processus

Le modèle mathématique qui décrit les divers phénomènes mis en jeu dans la cristallisation du α-lactose monohydraté comprend le bilan de population sur les cristaux de α-lactose monohydraté, les bilans de matières sur le α-lactose, le β-lactose et l'eau avec prise en compte de la mutarotation, et le bilan d'énergie.

2.1 Equation du bilan de population

L'équation du bilan de population est une équation aux dérivées partielles :

$$\frac{\partial(V(t).n(L,t))}{\partial t} + V(t)G(t)\frac{\partial n(L,t)}{\partial t} = 0 \tag{1}$$

où *V(t)* est le volume de cristallisoir, *n(L,t)* la densité de population en nombre de cristaux de α-lactose, *G(t)* la vitesse de croissance des cristaux de α−lactose. La condition aux limites est donnée par :

$$n(0,t) = \frac{B(t)}{G(t)} \tag{2}$$

sachant que les vitesses de nucléation et de croissance et le volume dépendent des états $C_\alpha(t)$, $C_\beta(t)$ et $T(t)$.
et la condition initiale :

$$n(L,0) = n_0(L) \tag{3}$$

L'utilisation des moments permet de transformer l'équation de bilan de population en un ensemble d'équations différentielles ordinaires. En négligeant les termes d'agglomération et de brisure, on obtient :

$$\frac{d\mu_\nu(t)}{dt} + \frac{V'(t)}{V(t)}\mu_\nu(t) - \nu G(t)\mu_{\nu-1}(t) = 0,\ \nu = 1,2,\ldots \tag{4}$$

avec comme condition initiale :

$$\frac{d\mu_0(t)}{dt} + \frac{V'(t)}{V(t)}\mu_0(t) - B(t) = 0 \tag{5}$$

2.2 Bilans de matière

Les bilans de matière ont été écrits sur le solvant (eau), le α-lactose et le β-lactose.

- sur le solvant

$$\frac{dm_{eau}(t)}{dt} = (R^{-1} - 1)3k_v\rho_{lactose}G(t)V(t)\mu_2(t) + q^e_{eau}(t) \tag{6}$$

où m_{eau} est la masse d'eau dans le cristallisoir, qui dépend du débit et de l'intégration des molécules d'eau dans les cristaux.

- sur le α-lactose :

$$\frac{dC_\alpha(t)}{dt} = \frac{q^e_{eau}(t)}{m_{eau}(t)}(C^e_\alpha - C_\alpha(t)) \frac{[C_\alpha(t)(1-R^{-1}) - R^{-1}]}{R\ m_{eau}}\frac{dm_s(t)}{dt} - k_1C_\alpha(t) + k_2C_\beta(t) \tag{7}$$

où m_s est la masse de cristaux. La solution en entrée est supposée à l'équilibre de mutarotation.
- sur le β-lactose

$$\frac{dC_\beta(t)}{dt} = \frac{C_\beta(t)}{m_{eau}(t)}\left(1-\frac{1}{R}\right)\frac{dm_s(t)}{dt} + k_1 C_\alpha(t) - k_2 C_\beta(t) + (C_\beta^e - C_\beta(t))\frac{q_{eau}^e(t)}{m_{eau}(t)} \quad (8)$$

Le volume total du cristallisoir est une variable dépendante, qui est exprimée en fonction des concentrations C_α(t) et C_β(t) et de la masse d'eau $m_{eau}(t)$ sachant que les masses volumiques des corps purs ont été supposées indépendantes de la température. La dérivée du volume est donnée par :

$$\frac{dV(t)}{dt} = 3k_v G(t)V(t)\mu_2(t) + \frac{dm_{eau}(t)}{dt}[\rho_{lac,\alpha}^{-1} C_\alpha(t) + \rho_{lac,\beta}^{-1} C_\alpha(t) + \rho_{eau}^{-1}]$$

$$+ m_{eau}(t)(\rho_{lac,\alpha}^{-1}\frac{dC_\alpha(t)}{dt} + \rho_{lac,\beta}^{-1}\frac{dC_\beta(t)}{dt}) \quad (9)$$

La masse totale de cristaux satisfait l'équation :

$$\frac{dm_s(t)}{dt} = 3k_v \rho_{lactose} G(t)V(t)\mu_2(t) \quad (10)$$

2.3 Bilan d'énergie

La température du système dépend de la température de la double enveloppe et de la température de consigne du bain thermostaté. Ce bilan prend en compte la cristallisation du α-lactose monohydraté (ΔH_{crist}) et l'addition d'une solution de concentration égale C_α^e à 0,88 g/g eau et de température T_{eau} constante (70 °C) :

$$\frac{dT(t)}{dt} = P_1(t)[-P_2(t)(T(t) - T_{ref}) - \Delta H_{crist}\frac{dm_s(t)}{dt} + UA(t)(T_{de}(t) - T(t))$$

$$+ q_{eau}(t)(C_{p,eau} + C_{p,\alpha}C_\alpha^e + C_{p,\beta}C_\beta^e)(T_{eau} - T_{ref})] \quad (11)$$

$$\frac{dT_{de}(t)}{dt} = -0.0019(T_{de}(t) - T_{sp}(t)) \quad (12)$$

où $T(t)$ la température de cristallisoir, T_{ref} la température de référence (= 25°C), $T_{de}(t)$ est la température de la double enveloppe , et $T_{sp}(t)$ la température de consigne du bain. Cette dernière est utilisée pour réguler T_{de} , et donc indirectement réguler $T(t)$ par échange de chaleur entre la double enveloppe et la solution. La surface d'échange est notée $A(t)$. $C_{p,\alpha}$, $C_{p,\beta}$ et $C_{p,eau}$, $C_{p,s}$ sont respectivement les capacités calorifique du α-lactose, du β-lactose, de l'eau et du solide. Les termes P_1 et P_2 sont donnés par :

$$P_1^{-1} = m_{eau}(t)C_{p,eau} + m_\alpha(t)C_{p,\alpha} + m_\beta(t)C_{p,\beta} + m_{cristauxs}(t)C_{p,cry} \quad (13)$$

$$P_2 = \frac{dm_{eau}}{dt}C_{eau}^p + \frac{dm_\alpha}{dt}C_\alpha^p + \frac{dm_\beta}{dt}C_\beta^p + \frac{dm_s(t)}{dt}C_s^p \quad (14)$$

2.4 Mutarotation

La constante de l'équilibre de mutarotation dépend de la température (K_m = 1,64 -0,0027 $T(°C)$). Elle s'exprime sous la forme (Mimouni et al. 2009) :

$$k_2(T(t)) = k_0 exp(-E / R(T(t) + 273,15)) \quad (15)$$

avec $k_1(T(t)) = k_2(T(t))k_m(T(t))$ et $k_0 = 1,62\ 10^9 s^{-1}$ (16)

2.5 Saturation

La concentration à saturation du α-lactose monohydraté à l'équilibre de mutarotation est donnée par (Mcleod 2007)

$$C_{\alpha,eq,eqmuta}(T(t)) = \frac{10,9109\ exp(0,02804\ T(t))}{100(1 + k_m(T(t)))} \quad (17)$$

Hors équilibre de mutarotation, la concentration à saturation du α-lactose monohydraté est corrigée par un facteur F et les concentrations C_α et C_β selon la relation :

$$C_{\alpha,eq}(T) = C_{\alpha,eq,eqmuta}(T) - F(T)\cdot(C_\beta - k_m(T)\cdot C_{\alpha,eq,eqmuta}(T)) \tag{18}$$

où

$$F(T) = 0.0187\cdot exp(0.0236\cdot T) \tag{19}$$

2.6 Nucléation et Croissance

La vitesse de nucléation est donnée (Gernigon 2007) par :

$$B(t) = k_b exp\frac{-B_0}{(T(t)+273.15)^3 ln^2\left(\frac{C_\alpha(t)}{C_{\alpha,eq}(C_\alpha(t),T(t))}\right)} \tag{20}$$

et la vitesse de croissance, supposée indépendante de la taille par :

$$G(t) = k_g(C_\alpha(t) - C_{\alpha,eq}(C_\alpha,T)) \tag{21}$$

3. Problème de contrôle optimal

L'objectif en contrôle optimal est de trouver un contrôle (ou une commande) qui fait passer un système d'un état initial à un état final donné en optimisant un certain critère. Dans cette étude, pour la résolution numérique du problème de controle optimal, nous avons utilisé le logiciel ACADO Toolkit (Automatic Control And Dynamic Optimisation) (Arien et al. 2010) qui comporte une collection d'algorithmes de contrôle automatique et d'optimisation dynamique, écrits en langage C++.

3.1 Méthode de résolution

Les méthodes de résolution numérique du problème de commande optimale utilisées par ACADO sont la méthode directe « Tir simple » et la méthode directe « Tirs multiples ». Pour ces méthodes, la solution optimale s'obtient par une discrétisation complète du problème avec pour objectif de ramener le problème de contrôle à la résolution d'un problème d'optimisation en dimension finie.

3.1.1 Méthode de « Tir simple »

Cette méthode comporte 3 étapes :

- Définition d'un grille temporelle de discrétisation, telle que $0= t_0 < t_1 <....< t_N = t_f$,
- Paramétrisation du contrôle sur chaque intervalle de temps, de sorte que le contrôle, noté u, soit constant par morceaux. Cela signifie que $u=q$ sur $[t_i, t_{i+1}]$,
- Résolution numérique du système d'équations différentielles ordinaires (ODE) qui décrivent la dynamique sur tout l'intervalle $[0, T]$, pour obtenir l'état comme une fonction $x(t,q)$ pour un nombre fini de contrôles discrétisés $q=(q_0,q_1,....,q_{N-1})$.

3.1.2 Méthode de « Tirs multiples»

La méthode de « Tirs multiples» est une extension de la méthode de « Tir simple ». Les étapes 1 et 2 restent les mêmes, mais les ODE qui décrivent la dynamique du système ne sont plus intégrées sur $[0, t_f]$ mais sur chaque intervalle $[t_i, t_{(i+1)}]$ à partir d'un ensemble de conditions initiales $x(t_i)=x_i$.

La méthode de résolution numérique utilisée dans les divers scénarios que nous présentons dans ce papier est la méthode directe « Tirs multiples».

3.2 Configurations d'étude

La résolution s'est effectuée en deux temps.

Dans un premier temps, les équations des moments et de bilans de matière et d'énergie ont été résolues avec ACADO en vue de déterminer les profils optimaux. L'approche par la méthode des moments conduit à choisir un nombre suffisant des moments pour remplacer les équations de bilans de population écrites sur un nombre de classe important. Dans cette étude, on a choisi les cinq premiers moments. Les autres états de la dynamique du système sont m_{eau}, m_{cry}, C_α,C_β, T, T_{de}. Les variables de contrôle sont

$u_1 = T_{sp}$ (Température de consigne) et $u_2 = q_{eau}$ (débit d'addition d'eau dans la solution d'entrée). Dans ce travail, on compare différentes configurations :

• Configuration 1 : On fixe la température de consigne T_{sp} à 15 °C et le débit d'eau à 0,0056 kg/h. Cette configuration est identifiée par le terme *constant* dans les figures.

• Configuration 2 : Ici on fixe la valeur de débit d'eau à 0,0056 kg/h, et la température de consigne commence à T_{sp} = 15 °C et décroît linéairement pour t supérieur à 0. Cette configuration est appelée *linéaire* dans les figures.

• Configuration 3 : On contrôle la température de consigne $u_1 = T_{sp}$ et le débit d'eau $u_2 = q_{eau}$ en optimisant différents objectifs. Ces objectifs sont définis dans les scénarios. Cette configuration est nommée *optimal* dans les figures.

Dans un deuxième temps, les densités de population complètes ont ensuite été recalculées par résolution du bilan de population complet couplé aux équations de bilans de matière et de bilan d'énergie en utilisant le profil optimal. Pour cela on ré-injecte les valeurs optimales de contrôle pour la construction de la densité de population au cours du temps. Pour cette construction, nous avons utilisé la méthode des différences finies en MATLAB selon un schéma explicite décentré. Trois cent neuf équations différentielles ordinaires pour le bilan de population couplées aux bilans de matière et d'énergie ont été résolues.

Dans les deux scénarios, les variables de contrôle sont T_{sp} et q_{eau}^{e}.

3.3 Scénario 1

Le premier problème de contrôle minimise le taux de nucléation B. Le temps final (t_f) est fixé à 11000 s.

Les contraintes s'écrivent sous la forme :

$$\begin{cases} 0 \le V(t) \le V_{\max} \\ 0 \le T(t) \le 70\ ^{o}C \\ 0 \le T_{sp}(t) \le 40\ ^{o}C \\ c_{\alpha}(t) \ge c_{\alpha,eq}(T(t)) \\ 0 \le q_{eau}(t) \le 0{,}1 \text{ kg/h} \end{cases} \tag{21}$$

3.4 Scénario 2

Le deuxième problème de contrôle optimal minimise le coefficient de variation de la distribution en volume $CV = \frac{\mu_3 \mu_5}{(\mu_4)^2} - 1$. Le temps final ($t_f$) est fixé à 11000 s. Le problème est résolu avec les mêmes contraintes.

4 Résultats

Les résultats obtenus avec la régulation optimale de la température de consigne et le débit d'eau sont présentés dans les Figures 1, 2 et 3. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus avec les autres configurations (constant et linéaire).

La figure 1, montre les profils optimaux de deux contrôles permettant la minimisation de la vitesse de nucléation ((a) et (c)) ou du coefficient de variation de la distribution de taille en volume ((b) et (d)). À ces profils optimaux correspondent des variations de volume de solution, de vitesses de nucléation et de croissance, et de température. Elle montre aussi le coefficient de variation (e) et les densités de population finales (f). La figure 2 présente les profils de vitesse de nucléation et de croissance correspondant.

Sur la figure 3, on remarque que la décroissance de la température du cristallisoir est plus importante dans le scénario 2 (min CV), ce qui entraîne une vitesse de nucléation élevée en début de processus. Par la suite la croissance devient le phénomène prépondérant. Dans le scénario 1, la nucléation est plus lente par rapport aux autres configurations. Au niveau de la croissance, les deux scénarios sont caractérisés par une croissance importante au début, qui diminue par la suite mais plus lentement dans le cas du scenario 2.

D'après le profil du volume, on remarque que le temps de remplissage du cristallisoir est différent en fonction des stratégies. Pour les configurations constante et linéaire (sans contrôle), le temps de remplissage vaut 1020 secondes. Le temps de remplissage est plus faible dans le cas de la minimisation du taux de nucléation et dans le cas de la minimisation du coefficient de variation. Les temps de remplissage du cristallisoir sont respectivement de 4424 et 3859 s. Entre les deux scénarios étudiés, le remplissage du cristallisoir pour la minimisation du coefficient de variation est plus lent durant la première heure que celui dans le cas de la minimisation de la nucléation.

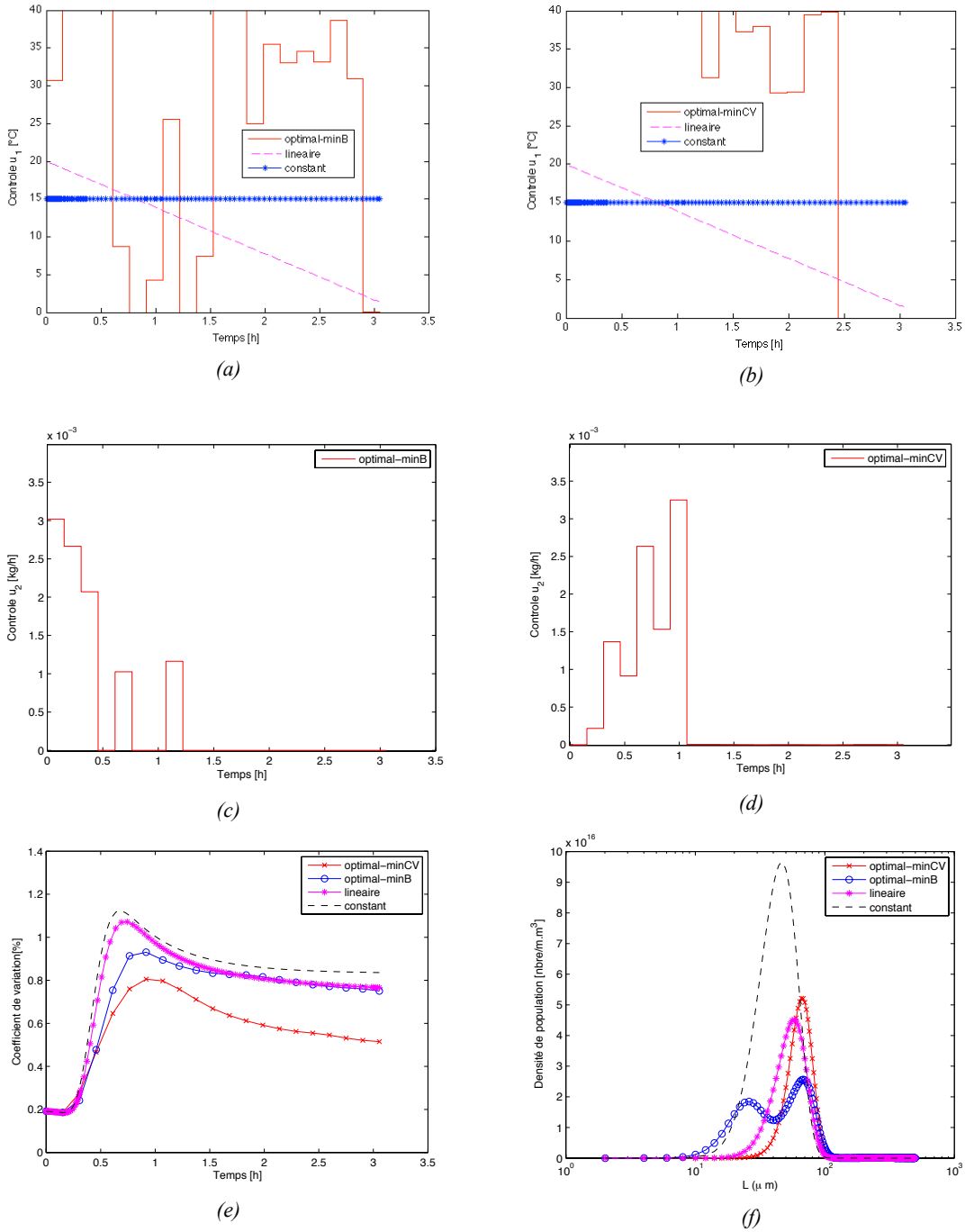
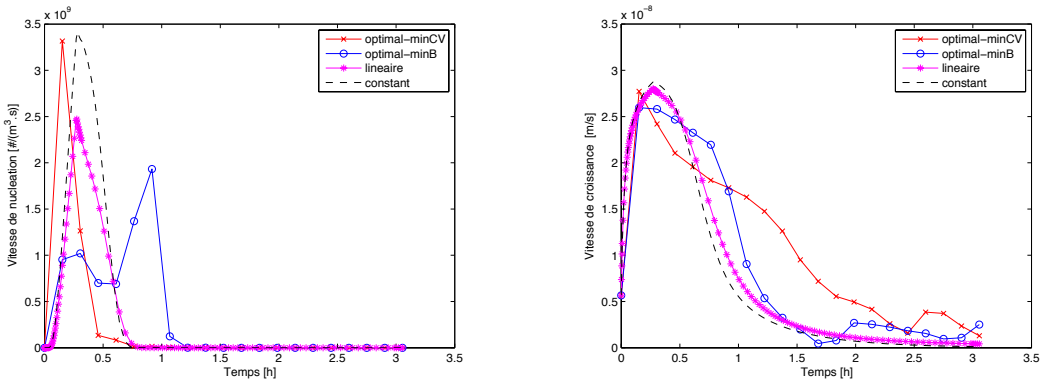
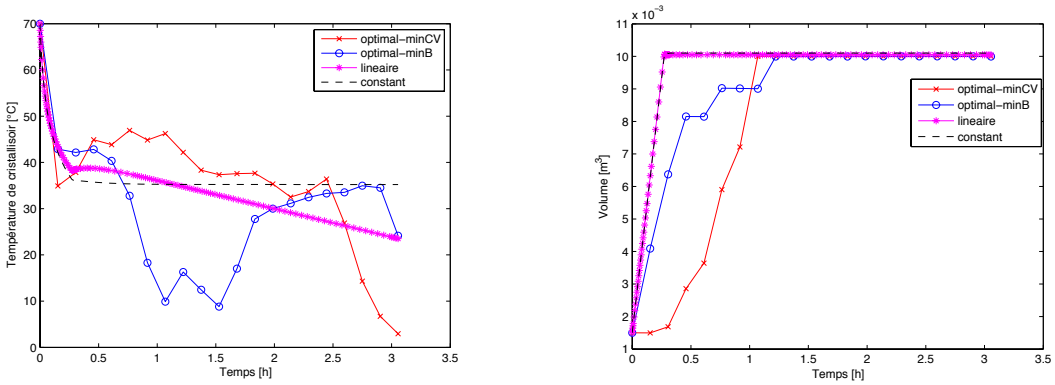


Figure 1. Profils des variables de contrôles : la température (a) et (b) respectivement pour la minimisation de la vitesse de nucléation et du CV, le débit d'addition d'eau (c) et (d) respectivement pour la minimisation de la vitesse de nucléation et du CV, et le coefficient de variation de la distribution en volume (e) et les densités de population finales (f).



(a) *(b)*

Figure 2. Profils des vitesses de nucléation (a) et de croissance (b) correspondant aux contrôles appliqués



(a) *(b)*

Figure 3. Profils de Température (a) et de volume (b) correspondant aux contrôles appliqués.

5. Conclusions générales

Dans ce papier, une comparaison entre une cristallisation par refroidissement naturel ou linéaire et une cristallisation contrôlée de α-lactose monohydraté en mode semi-continu a été faite. Dans les deux problèmes de contrôle les variations de température de refroidissement, et de remplissage ne sont pas les mêmes . Cette comparaison nous donne la stratégie optimale qu'il faut suivre : à quelle température de consigne et quel débit de solution optimaux, il est nécessaire de travailler, durant le processus, pour minimiser la nucléation des cristaux ou minimiser le coefficient de variation de la distribution en volume. Cette étude est une étude préliminaire. Par la suite, les phénomènes de nucléation secondaire seront pris en compte et d'autres objectifs seront testés suivant les besoins.

Références

D. Ariens, B. Houska, H.J. Ferreau, 2010, ACADO Toolkit User's Manual. http://www.acadotoolkit.org.

G. Gernigon, 2012, Modélisation de la cinétique de cristallisation du lactose en solution_modèles-application à la transformation des lactosérums de mozzarella, thèse, Institut supérieur des sciences agronomiques, agro-alimentaires, horticoles et du paysage.
J. Mcleod, 2007. Nucleation and growth of Alpha lactose Monohydrate PhD Thesis, Massey University, volume 220.
A. Mimouni, P. Schuck, S. Bouhallab, 2009, Isothermal batch crystallisation of alpha-lactose: A kinetic model combining mutarotation, nucleation and growth steps, International Dairy Journal, volume 8.
Y. Shi, B. Liang, R.W. Hartel, 1990, Isothermal crystallization of alpha-lactose monohydrate in a continuous cooling crystallizer, Journal of Food Science, volume 55.

Remerciements
Les auteurs remercient la région Midi Pyrénées pour sa participation au financement de cette étude.

Control of crystallization of alpha-lactose monohydrate

RACHAH Amira[a*], BAILLON Fabien[b], ESPITALIER Fabienne[b*] et NOLL Dominikus[a]

[a]Institut of Mathematics of Toulouse
University Paul Sabatier,Toulouse, France

[b]University of Toulouse, Mines Albi

CNRS UMR 5302, Centre RAPSODEE, C.Jarlard, ALBI

Abstract

Crystallization is the unitary operation of formation of solid crystals from a solution. In chemical engineering crystallization is an important separation process used in chemical, pharmaceutical, material and semiconductor industries. Mathematical models are described by conservation laws with population, mass and energy balance equations. Crystallizers can be operated either in batch, semi-batch or continuous mode. Semi-batch crystallization is widely used in the pharmaceutical and fine chemical industry for the production of solids in a variety of operating modes.

In this work, we present a mathematical model of solvated crystallization of alpha-lactose monohydrate in semi-batch mode. This model is described by conservation laws with population, mass and energy balance equations. We discuss the model and then consider the problem of optimization using several objective functions which leads to significantly several optimal operating conditions by controlling temperature and feed rate.

Keywords : Crystallization, Modelling, Optimization, Optimal control

* Authors(s) to whom the correspondence should be sent: amira.rachah@math.univ-toulouse.fr, fabienne.espitalier@mines-albi.fr