

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

Kun ZHANG¹, Madiha NADRI¹, Cheng-Zhong XU¹

¹Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés,
UMR 5007 CNRS

Université de Claude Berbard 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 sera 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 cristallisateur 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 ρ_s sont la molaire-masse et densité du soluté respectivement. Et η 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 η établit 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} , ΔH_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 cristallisateur 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 une solution numérique pour η 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 sursaturée. 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 η_1 , η_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 Δt_{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 Δx 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 :

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

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

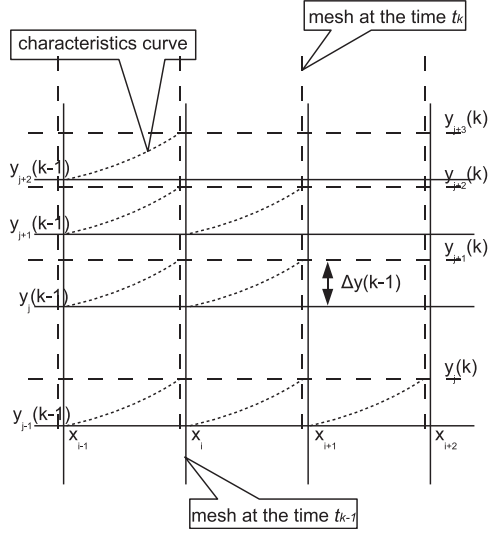


Fig. 1. schéma de la méthode des caractéristiques dans le plan-xy

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 Δx et Δy , 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 Δx 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 Δx 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 :

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

$i = 1, 2, \dots, N$
 $j = 1, 2, \dots, M$

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

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 Δx 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 discrétisées de x , $X = [x_0, x_1, \dots, x_N]$ avec le pas Δx au moment donné t_{k-1} ;
3. donnons les tailles des cristaux discrétisées 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	$Kg \cdot mol^{-1}$	146.14×10^{-3}
ρ_s	$Kg \cdot m^{-3}$	1360
J	sansdimension	2.00
K_c	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	1.57×10^{-2}
K_d	$m \cdot s^{-1}$	0.85×10^{-3}
a_{n_1}	$[nb] \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$	1.5×10^{12}
b_{n_1}	sansdimension	1.063
K_{n_2}	$\frac{[nb] \cdot m^{3(I_{n_2} + J_{n_2} - 1)}}{s \cdot mol^{(I_{n_2} + J_{n_2})}}$	1.44×10^3
J_1	sansdimension	2.00
J_2	sansdimension	1.58
K_{c_1}	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	1.57×10^{-2}
K_{c_2}	$mol^{1-J} \cdot m^{3J-2} \cdot s^{-1}$	7.18×10^{-5}
K_{d_1}	$m \cdot s^{-1}$	0.85×10^{-3}
K_{d_2}	$m \cdot s^{-1}$	0.85×10^{-3}

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 Δx , 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 Δy_{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.

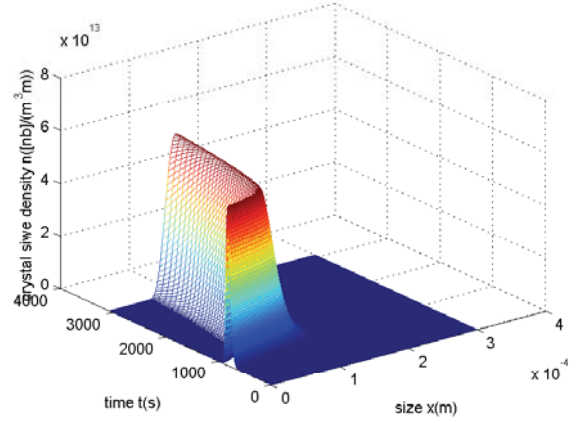


Fig. 2. L'évolution de la distribution de taille des cristaux simulée par la MDC (cas de 1-D)

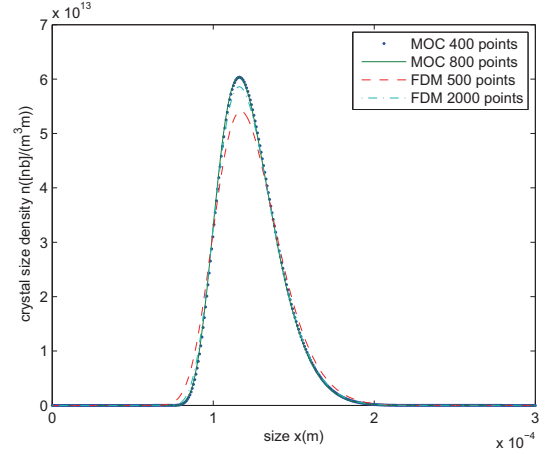


Fig. 3. Comparaison des distributions finales des tailles de cristaux (cas de 1-D)

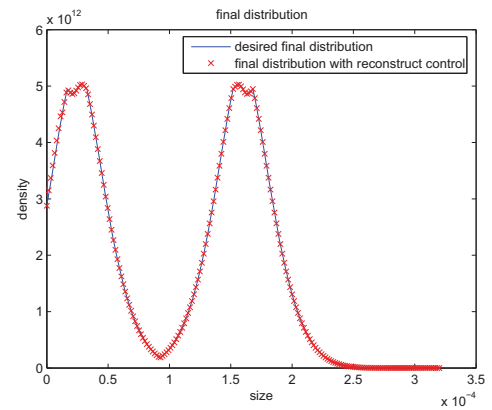


Fig. 4. La comparaison entre la distribution désirée et celle simulée par la MDC

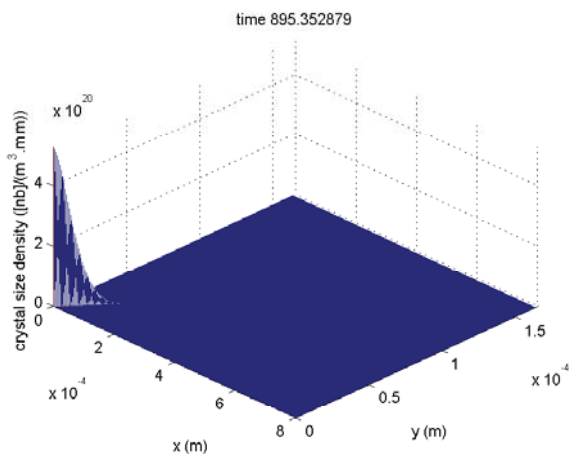


Fig. 5. Distribution des tailles de cristaux simulée par la MDC à $t=895s$ (cas de 2-D)

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 400×400 et le temps de calcul est 127s avec

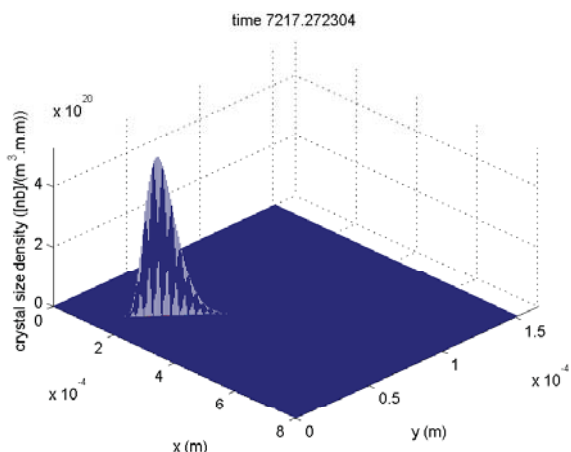


Fig. 6. Distribution finale des tailles de cristaux simulée par la MDC (cas de 2-D)

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 400×400 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.