



HAL
open science

Commande prédictive du lit mobile simulé :

Nicolas Dejardin

► **To cite this version:**

Nicolas Dejardin. Commande prédictive du lit mobile simulé :. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2006. Français. NNT : 2006INPL053N . tel-01752486

HAL Id: tel-01752486

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01752486v1>

Submitted on 29 Mar 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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques

Institut National
Polytechnique de Lorraine

Ecole doctorale RP2E

Commande prédictive du lit mobile simulé

THESE

présentée et soutenue publiquement le 19 Octobre 2006

pour l'obtention du

Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
(spécialité **Génie des Procédés et des Produits**)

par

Nicolas DEJARDIN

Composition du Jury :

Président :	Abderrazak LATIFI	LSGC, Nancy
Rapporteurs :	Gilles FEVOTTE Arsène ISAMBERT	LAGEP, Lyon LGPM, Chatenay-Malabry
Examineurs :	Jean-Pierre CORRIOU Mazen ALAMIR	LSGC, Nancy LAG, Grenoble

Commande prédictive du lit mobile simulé

Résumé : Le lit mobile simulé est un procédé largement utilisé dans une grande diversité de secteurs de l'industrie chimique, pétrochimique, agro-alimentaire et de plus en plus pharmaceutique. Ce procédé repose sur une séparation chromatographique mais son caractère continu a imposé un fonctionnement hybride, marqué par l'absence de régime permanent lié aux commutations cycliques de vannes et par un domaine opératoire restreint. Il s'ensuit une modélisation et une commande relativement compliquées.

Le document dresse dans un premier temps une revue sur la chromatographie qui permettra ensuite la mise en place de la modélisation et de la simulation des procédés de lit mobile vrai et simulé. La commande prédictive est fréquemment utilisée pour les procédés multivariables et en particulier pour ce type de procédé. Après une revue générale de la commande prédictive, cette dernière est appliquée sur les lits mobiles vrai et simulé en intégrant la gestion de contraintes dures sur les caractéristiques techniques du procédé (débits) ainsi que la gestion de contraintes douces sur des paramètres économiques (consommation d'éluant).

Mots-clés : chromatographie, lit mobile vrai, lit mobile simulé, commande prédictive, séparation

Model Predictive Control of The Simulated Moving Bed

Abstract : The Simulated Moving Bed Process is widely used in many sectors of the chemical, petrochemical, food and pharmaceutical industry. It lies on a chromatographic separation however its continuous character imposed a hybrid behaviour, marked by the absence of steady state related to the cyclic switching of the valves and by a narrow operating domain. It results a delicate modelling and a complex and challenging control.

In a first part, the manuscript offers a review on chromatography which later leads to modelling and simulation of true and simulated moving beds. Model predictive control is frequently used for multivariable processes and in particular for this type of process. After a general review of model predictive control, this latter is applied on the true and simulated moving beds with consideration of hard constraints for technical parameters of the process like flow rates and soft constraints for economical criteria such as eluent consumption.

Keywords : chromatography, true moving bed, simulated moving bed, model predictive control, separation

Spécialité : Génie des procédés

à ma femme Agnès

Avant-propos

Je tiens tout d'abord à remercier monsieur **Michel SARDIN**, directeur du laboratoire des Sciences du Génie Chimique de m'avoir accueilli pour réaliser ce travail.

Je remercie monsieur **Abderrazak LATIFI** d'avoir accepté de présider le jury.

Je remercie messieurs **Arsène ISAMBERT** et **Gilles FEVOTTE** d'avoir accepté de juger mon travail en tant que rapporteurs.

Je remercie monsieur **Mazen ALAMIR** pour ses conseils et pour sa participation à ce jury.

Toute ma reconnaissance va à monsieur **Jean-Pierre CORRIOU**, pour la qualité de ses conseils, pour le soin qu'il a apporté à la direction de ce travail et à la confiance qu'il a su me témoigner.

Mes remerciements vont également aux permanents et doctorants du groupe SYS-POL (**François, Michel, Isabelle, Renato, Djalal, Thibault, Stéphane, Adrien, Ibrahim, Michal**), du groupe GP2E (**Marie-Noëlle, Denis, Mehdi, Maria, Farida, Ouadiaa, Ali, Jean-François**)

Aux anciens **Virginie, Sébastien, Farouk**.

Enfin je remercie toute **ma famille** pour son soutien et particulièrement mon épouse **Agnès** pour sa patience, sa confiance et ses précieux encouragements.

Table des matières

1	Séparation chromatographique	1
1.1	Principes de la chromatographie	1
1.2	Les différents types de chromatographie	1
1.2.1	Les différentes formes de chromatographie	2
1.2.2	La chromatographie d'adsorption	2
1.3	Production discontinue	5
1.4	Applications industrielles	6
2	Lit Mobile : généralités et description	9
2.1	Introduction	9
2.2	Lit mobile vrai	9
2.2.1	Modèle du Lit Mobile Vrai	10
2.2.2	Conditions aux limites	11
2.3	Lit mobile simulé	12
2.3.1	Modèle du Lit Mobile Simulé	13
2.3.2	Conditions aux limites	15
2.3.3	Définition de configuration	15
2.4	Modélisation selon un modèle discret	16
2.4.1	Généralités	16
2.4.2	Généralisation sur une classe de procédé	17
2.4.3	Modèle des mélangeurs en cascade	19
2.4.4	Conditions aux frontières	21
2.5	Domaine de fonctionnement acceptable	24
2.5.1	Rappel du système	25
2.5.2	Cas des isothermes linéaires	26
2.5.3	Isothermes stoechiométriques	29
2.5.4	Isothermes de Langmuir	32
2.5.5	Isothermes de Langmuir modifiées	34
2.5.6	Isothermes de type bi-Langmuir	35
2.5.7	Comparatif des domaines en fonction des isothermes	35
2.5.8	Régime de fonctionnement sous-optimal	36
2.6	Simulation du Lit Mobile Simulé en boucle ouverte	43
2.6.1	Évolution temporelle des profils de concentration	44

2.6.2	Évolution temporelle des puretés sur plusieurs périodes de commutation	44
2.6.3	Comparaison du Lit Mobile Vrai et du Lit Mobile Simulé	46
2.6.4	Mise en évidence des non-linéarités	47
3	Commande Prédictive basée sur le Modèle	59
3.1	Généralités	59
3.1.1	En absence de contraintes	60
3.1.2	En présence de contraintes	60
3.2	Équations de commande prédictive	61
3.2.1	Cas d'un système à une entrée et une sortie	61
3.2.2	Cas d'un système multivariable	65
3.2.3	Commande matricielle dynamique quadratique : Quadratic Dynamic Matrix Control (QDMC)	68
3.2.4	Formulation dans l'espace d'état de MPC	69
3.3	Commande prédictive non linéaire	70
3.4	Méthode numérique d'optimisation	71
3.4.1	Problème à optimiser	71
3.4.2	Programmation quadratique successive	71
4	Commande prédictive du lit mobile simulé	73
4.1	Bibliographie sur la commande du lit mobile simulé	73
4.2	Entrées manipulées et sorties commandées possibles	75
4.3	Choix effectif des entrées et sorties	75
4.4	Gestion des contraintes dans le cadre général de la commande prédictive	77
4.4.1	Problème des contraintes	77
4.4.2	Contraintes fortes	77
4.4.3	Contraintes faibles	78
4.4.4	Problème d'optimisation	79
4.5	Réponses indicielles du LMV	82
4.6	Commande prédictive du LMV	83
4.7	Réponses indicielles du LMS	84
4.8	Simulation du Lit Mobile Simulé en boucle fermée	84
4.8.1	Poursuite de consigne en absence de contraintes	85
4.8.2	Poursuite de consigne en présence de contraintes dures	87
4.8.3	Poursuite de consigne en présence de contraintes dures et douces	89
5	Conclusion et perspectives	97
	Nomenclature	99
	Bibliographie	100

Chapitre 1

Séparation chromatographique

La chromatographie s'utilise pour deux champs d'application : la chromatographie analytique et la chromatographie préparative. Les objectifs de la chromatographie analytique sont d'identifier qualitativement et/ou quantitativement les constituants d'un mélange ; cette opération se faisant par le seul processus chromatographique, auquel peuvent être associées, en passage direct, d'autres techniques analytiques chimiques ou physico-chimiques destinées à faciliter l'analyse qualitative. La chromatographie préparative est utilisée pour purifier des quantités importantes de produits en vue d'autres utilisations : purifier des produits intermédiaires pour un procédé chimique, séparer les composés indésirables d'un mélange ou isoler des molécules à forte valeur ajoutée.

1.1 Principes de la chromatographie

La chromatographie est un processus thermodynamique visant la séparation des constituants d'un mélange (les solutés) par entraînement au moyen d'une phase mobile liquide ou gazeuse (l'éluant) le long d'une phase stationnaire (adsorbant) (Ruthven, 1984; Wankat, 1986a,b). La séparation est basée sur l'entraînement différentiel des constituants présents dans la colonne.

Chaque soluté est soumis à une force de rétention proportionnelle aux propriétés intrinsèques de la colonne et de l'adsorbant (taille, structure, porosité, ...) et aux affinités avec la phase stationnaire (polarité, sites d'adsorption spécifiques, ...) et à une force de mobilité due à l'entraînement de la phase mobile.

1.2 Les différents types de chromatographie

Les méthodes chromatographiques peuvent être classées en fonction de la nature physique des phases mobile et stationnaire. Parmi ces méthodes, les plus courantes sont la chromatographie en phase gazeuse (CPG) et la chromatographie liquide haute performance (CLHP).

1.2.1 Les différentes formes de chromatographie

Dans le cas de la chromatographie en phase gazeuse, la phase mobile est un gaz. On distingue alors la chromatographie gaz-liquide et la chromatographie gaz-solide. La chromatographie gaz-liquide est une chromatographie de partage où la phase stationnaire est un liquide. Les solutés se partagent entre le gaz vecteur et le liquide stationnaire. La chromatographie gaz-solide est une chromatographie d'adsorption où les solutés sont plus ou moins adsorbés par la phase stationnaire solide.

Dans le cas de la chromatographie liquide, la phase mobile est liquide. Cinq types de chromatographie liquide peuvent être distingués :

chromatographie liquide-liquide de partage en phase normale : la phase stationnaire est un liquide fixé sur un support inerte. Cette chromatographie est ainsi dénommée car elle est basée sur le partage du soluté dans les deux phases liquides

chromatographie liquide-liquide de partage en phase inversée : les solutés se partagent entre phase mobile et des chaînes hydrocarbonées non-polaires greffées sur un solide poreux

chromatographie liquide-solide d'exclusion : la phase stationnaire est un solide poreux dont la dimension des pores exclut les grosses particules de la phase fixe, en revanche les petites particules incluses diffusent dans les pores de la phase stationnaire

chromatographie liquide-solide à échange d'ions : la phase stationnaire est un échangeur d'ions constitué par une résine porteuse de groupements ionisés négativement ou positivement, exerçant des interactions de type électrostatique avec les solutés ioniques du milieu mobile

chromatographie liquide-solide d'adsorption : la phase stationnaire est un adsorbant solide polaire

Durant la suite de ce document, seul le cas de la chromatographie liquide-solide d'adsorption sera étudiée.

1.2.2 La chromatographie d'adsorption

Ce mode de chromatographie met en jeu un mécanisme d'adsorption des solutés sur la phase stationnaire solide, ainsi qu'un mécanisme d'élution (désorption) par la phase mobile (éluant).

L'adsorption se définit par la fixation plus ou moins énergétique d'un gaz, d'un liquide ou d'un soluté sur une surface solide ; elle met en jeu des liaisons à faible énergie (liaisons hydrogène, interactions électrostatiques...). Pour être utilisable à des fins séparatives, l'adsorption doit être réversible. L'élution ou désorption consiste à extraire le soluté adsorbé à l'aide d'un solvant appelé éluant.

Les différents solutés sont plus ou moins adsorbés sur la phase stationnaire, et plus ou moins solubles dans la phase mobile ; il en résulte une migration différentielle des solutés

en fonction de la résultante entre les forces de rétention et les forces d'entraînement, et donc une séparation de ces solutés.

Lorsque ces forces de rétention et d'entraînement sont à l'équilibre, la concentration du soluté i adsorbé dans la phase stationnaire q_i^{eq} et la concentration des solutés j présents dans la phase mobile c_j sont reliées par une relation dite d'équilibre. Pour un mélange constitué de n_c solutés, cette équation se définit par des isothermes d'adsorption sous la forme générale suivante :

$$q_i^{eq} = f(c_j) \quad , \quad j = 1, \dots, n_c \quad (1.1)$$

La concentration à l'équilibre est également souvent notée q_i^* .

Isotherme linéaire

L'isotherme la plus simple est l'isotherme linéaire (Giovanni et al., 2001) utilisable en principe uniquement lorsque la concentration de l'espèce i dans la phase liquide est faible. Elle suit une forme de loi de Henry selon :

$$q_i = H_i c_i \quad (1.2)$$

où H_i est la constante de Henry.

Les isothermes linéaires caractérisent un comportement limite des phénomènes d'adsorption. Cette forme linéaire donne une première approche de la séparation des solutés. Cependant, plusieurs effets locaux (diffusion particulaire externe, diffusion particulaire macro-poreuse, diffusion particulaire micro-poreuse, cinétique d'adsorption...) sont négligés. Dans la suite de ce document, des isothermes non-linéaires seront utilisés pour affiner ces phénomènes physiques.

Isotherme stoechiométrique

Les isothermes linéaires ne tiennent pas compte de deux phénomènes de transfert : la compétition de l'adsorption des espèces de la phase liquide et la limitation de l'adsorption par la saturation de la phase solide. Les isothermes stoechiométriques (Mazzotti et al., 1994) tiennent compte de ces phénomènes :

$$q^i = \frac{q^{mi} K^i c^i}{N_c + \sum_{j=1}^{n_c} K^j c^j} \quad (1.3)$$

avec N_c le nombre total de constituants, défini par le nombre n_c de composés à séparer, plus l'éluant $N_c = n_c + 1$. Le dernier composé K_{N_c} étant lié à l'éluant.

Isotherme de Langmuir

Dans le cas où la concentration d'un constituant est élevée, l'équation (1.2) de l'isotherme n'est plus valide et l'équation de Langmuir est fréquemment utilisée. Dans le cas de plusieurs constituants, l'isotherme de Langmuir exprime selon :

$$q^i = \frac{q^{mi} K^i c^i}{1 + \sum_{j=1}^{n_c} K^j c^j} \quad (1.4)$$

q^{mi} étant la quantité maximale adsorbable de l'espèce i , K_i la constante de Langmuir, q_i la concentration de l'espèce adsorbée, c_i la concentration en phase liquide ou gazeuse, n_c le nombre de composés adsorbables.

Aux faibles concentrations, l'équation (1.2) peut être considérée comme une forme simplifiée de la loi de Langmuir (1.4).

$$q^{i*} = q^{mi} K^i c^i \quad \text{avec : } H_i = q^{mi} K^i \quad (1.5)$$

Les isothermes de Langmuir sont des isothermes non linéaires, non stoechiométriques. Ces isothermes introduisent la notion de phénomènes d'adsorption compétitive pour un système à sélectivité constante (Giovanni et al., 2001; Mazzotti et al., 1996a,b; Migliorini et al., 1998, 2001).

Isotherme de Langmuir modifiée

Les isothermes de Langmuir sont incapables de représenter des séparations complexes comme celle des énantiomères qui présentent des caractéristiques physiques et chimiques très voisines. Pour ce type de séparation, un terme linéaire est ajouté (Charton and Nicoud, 1995) :

$$q^i = a^i c^i + \frac{q^{mi} K^i c^i}{1 + \sum_{j=1}^{n_c} K^j c^j} \quad (1.6)$$

Isotherme de bi-Langmuir

Les isothermes de bi-Langmuir permettent de décrire l'adsorption sur deux sites indépendants comme dans le cas de la séparation d'énantiomères (Migliorini et al., 2000). Ils comportent deux termes reflétant la nature des composés à séparer :

$$q^i = \frac{q^{mi} K^i c^i}{1 + \sum_{j=1}^{n_c} K^j c^j} + \frac{q^{mi} L^i c^i}{1 + \sum_{j=1}^{n_c} L^j c^j} \quad (1.7)$$

Le premier terme caractérise l'adsorption des composés sur les sites non chiraux marquée par des valeurs de saturation importantes (q^{mi} importants) et le deuxième terme

caractérise l'adsorption des composés sur les sites chiraux marquée par des valeurs de saturation faibles (q^{mi} faibles). De plus, les isothermes de bi-Langmuir représente une généralisation des deux isothermes vues précédemment (Langmuir et Langmuir modifiée). Avec $L_i = 0$, cette équation s'écrit selon la forme de l'équation de Langmuir modifiée (1.6). Avec $q^{mi} = 0$, cette équation s'écrit selon la forme de l'équation de Langmuir (1.4). L'isotherme linéaire (1.2) est une forme approchée de l'isotherme de bi-Langmuir dans le cas particulier où les concentrations c^i sont très faibles

1.3 Production discontinue

Le principe de la chromatographie implique que la production d'une chromatographie préparative classique soit discontinue, appelée également production par lots. Cependant le chapitre 2 est consacré aux procédés chromatographiques continus.

La chromatographie préparative par lots s'effectue avec un dispositif similaire au schéma de la figure 1.1 où le collecteur de phase peut être couplé à un système de recyclage.

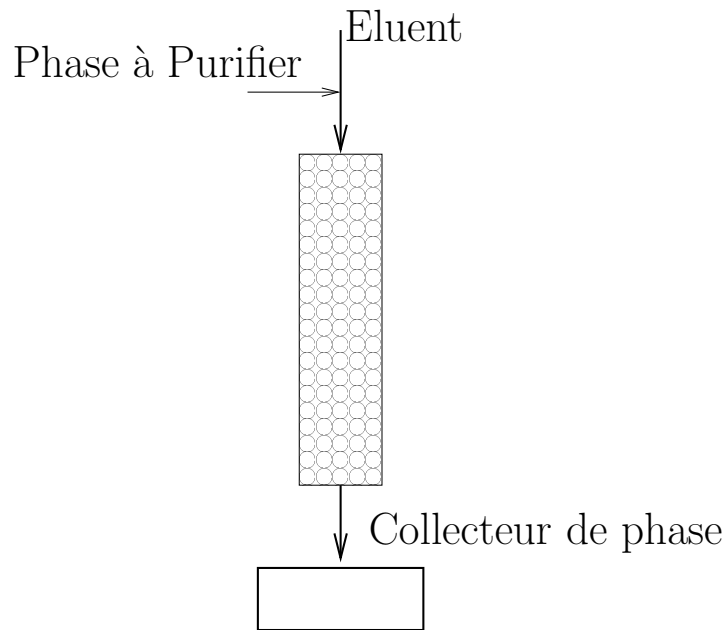


Figure 1.1 – Principe de la chromatographie préparative par lots

Classiquement, la séparation peut s'effectuer selon deux modes d'élution distincts : élution en mode isocratique ou élution en mode gradient. Lors d'une élution avec un système isocratique, le solvant conserve ses propriétés physico-chimiques constantes alors que lors d'une élution en gradient, un ou plusieurs des paramètres de l'éluant sont variables dans le temps.

Lors de l'élution, l'adsorptivité des solutés présents dans l'adsorbant peut être ainsi modifiée. Il est donc possible de désorber des composés même de forte adsorptivité et ainsi de régénérer l'adsorbant. Par exemple, lors du passage de la charge à séparer, l'adsorbant va se charger préférentiellement en solutés d'adsorptivité la plus forte. Durant la phase d'élution (recyclage de la phase solide), le passage d'un solvant pur va provoquer la diminution de l'adsorptivité des solutés présents dans la phase solide et donc la restitution de ces solutés.

Dans le cadre d'une séparation chromatographique par lots, il est possible de recycler et séparer à nouveau un lot ; cette manière de procéder s'effectue essentiellement pour obtenir des puretés élevées.

Le plus souvent, on utilise comme éluant le solvant de la phase mobile. Ainsi la sortie à l'extrait et au raffinat auront toute deux l'éluant comme solvant.

Avec une configuration correcte des paramètres du système chromatographique (porosité de la colonne, nature de l'adsorbant, débit et quantité de la charge à séparer, débit de l'éluant, nature de l'éluant...), il est possible de réaliser une séparation complète ; le composé le moins adsorbé est obtenu en premier, s'en suivront alors les composés d'adsorptivité croissante et finalement le composé le plus adsorbé sera obtenu en dernier.

Cependant, il existe plusieurs inconvénients à l'utilisation de cette technique de production :

- le coût de production sera d'autant plus élevé que le prix de l'éluant est important et que la quantité défluent nécessaire à la désorption des solutés de forte adsorptivité est importante
- compte tenu des profils de concentrations pour un système chromatographique donné, une séparation complète ne peut s'obtenir que pour une longueur de colonne la plus importante possible ou pour une quantité de soluté le plus faible possible.

1.4 Applications industrielles

La technologie du lit mobile simulé a été introduite à la fin des années 1950 par un brevet de UOP (Broughton and Gerhold, 1961). Ses applications principales ont d'abord concerné des productions de masse (Nicoud, 1992). Ainsi la séparation du glucose et du fructose est possible (Ching, 1984; Rearick et al., 1997) de même que l'extraction du fructose du sirop de maïs (Ganestos and Barker, 1993; Gattuso et al., 1996; Guest, 1997; Mallmann et al., 1998) Dans le domaine de l'agriculture de masse, la lysine, un acide aminé essentiel, est utilisée entre autres dans l'élevage des porcs. La lysine est produite par un procédé microbiologique, puis est isolée à partir d'un procédé d'extraction de type lit mobile simulé (Van Walsem and Thompson, 1996).

Dans l'industrie pétrochimique la séparation des xylènes par le procédé Eluxyl breveté par l'IFP (Couenne et al., 2002; Kloppenburg and Gilles, 1999). Dans le traitement des résidus pétroliers, l'utilisation du lit mobile simulé concerne la séparation des chaînes hydrocarbonées linéaires par rapport aux chaînes hydrocarbonées cycliques, l'extraction d'alcènes des alcanes. Plus récemment, des applications pour des produits à haute valeur

ajoutée se sont imposées.

La chromatographie préparative que ce soit par des procédés continus ou discontinus peut se trouver dans toutes les activités industrielles et plus particulièrement dans l'industrie pharmaceutique pour la séparation des molécules chirales (Francotte and Richert, 1997; Haag et al., 2001; Lehoucq et al., 2000), dans l'industrie agro-alimentaire, dans l'industrie cosmétique (purification des produits intermédiaires). L'utilisation du lit mobile simulé est devenue primordiale dans la production d'isomères optiques en particulier dans le domaine de la pharmacologie. Ces énantiomères peuvent être utilisés pour des essais toxicologiques (Schulte et al., 1996) ou en tant que produits intermédiaires (Cavoy et al., 1997; Haag et al., 2001). Même s'il existe des voies de synthèse pour la préparation de certains énantiomères (Crosby and Sheldrake, 1992) comme les synthèses énantiosélectives, la chromatographie préparative des isomères est une technique qui attire de plus en plus l'attention. Elle permet de séparer les deux énantiomères en une seule opération avec un degré de pureté élevé. Cependant l'approche chromatographique souffre des inconvénients liés à la nature chromatographique de la technique : le coût important de la phase stationnaire, le coût et la consommation importante de la phase mobile et surtout la forte dilution des produits séparés (Ching et al., 1993; Lim and Ching, 1996). Si des méthodes d'amélioration du procédé de séparation chromatographique ont été mises en oeuvre (Charton et al., 1994; Dingenen, 1994; Kinkel et al., 1991), c'est l'introduction du procédé de lit mobile simulé dans la séparation des isomères optiques qui a permis d'obtenir les résultats les plus intéressants (Negawa and Shoji, 1992). Actuellement dans le domaine médical, le lit mobile simulé rend possible la séparation et la purification des acides aminés (Hashimoto et al., 1989), des protéines et des enzymes (Huang et al., 1988) ou encore des acides gras (Szepesy et al., 1975).

Chapitre 2

Lit Mobile : généralités et description

2.1 Introduction

Dans le cadre de séparations difficiles telles que les xylènes (Couenne et al., 2002), les sucres (Ching, 1984; Rearick et al., 1997) ou même les énantiomères (Francotte and Richert, 1997; Haag et al., 2001; Lehoucq et al., 2000), la méthode traditionnelle pour isoler un composé donné consistait en l'élaboration d'une voie de synthèse sélective ou de séparations chromatographiques préparatives par lots.

En tant que procédé continu, le lit mobile vrai (LMV) est une alternative intéressante à ses méthodes. Le lit mobile vrai est une forme de colonne chromatographique à mouvement à contre-courant de la phase solide et de la phase mobile.

Cependant, pour des raisons de faisabilité, le LMV ne peut pas être réalisé. En effet la dégradation de la phase solide par attrition serait trop forte. Ce mouvement de solide est donc simulé dans le procédé de lit mobile simulé.

Dans la pratique, le lit mobile simulé (LMS) est réalisé en reliant plusieurs colonnes chromatographiques simples en série et en simulant le mouvement du solide par des commutations cycliques des ports d'entrées et de sorties dans la direction d'écoulement du liquide.

De par sa dynamique complexe, des non-linéarités importantes et du caractère multi-variable du LMS, la commande du Lit Mobile Simulé est une tâche ardue.

2.2 Lit mobile vrai

Le LMV est caractérisé par un courant de liquide et un courant de solide circulant à contre-courant (Figure 2.1). Il comprend quatre sections (ou zones) notées de *I* à *IV* sur le schéma et chacune de ces sections est composée d'une ou plusieurs colonnes chromatographiques.

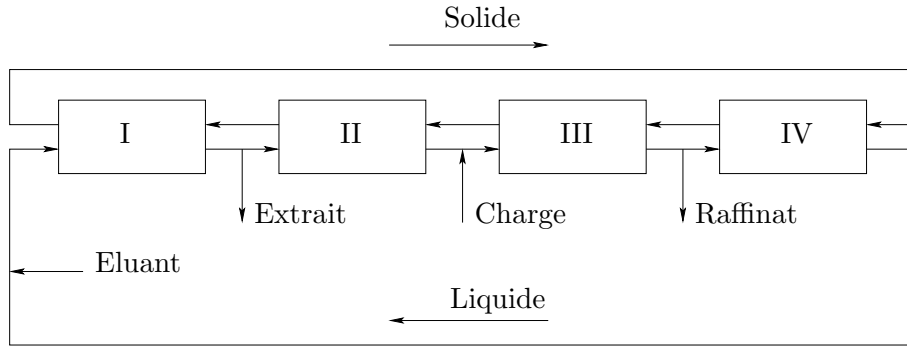


Figure 2.1 – Schéma d'un lit mobile vrai.

2.2.1 Modèle du Lit Mobile Vrai

L'équation de bilan matière dans une section j pour un composé i est :

$$\epsilon \frac{\partial c_j^i}{\partial t} + (1 - \epsilon) \frac{\partial q_j^i}{\partial t} + \epsilon v_j \frac{\partial c_j^i}{\partial z} - \epsilon \mathcal{D} \frac{\partial^2 c_j^i}{\partial z^2} - (1 - \epsilon) v_s \frac{\partial q_j^i}{\partial z} = 0 \quad (2.1)$$

où v_j est la vitesse de liquide dans la section j (reliée au débit F_j par la relation $F_j = \epsilon \Omega v_j$), Ω la section de colonne, ϵ la porosité, \mathcal{D} le coefficient de dispersion axiale. Cette relation doit être complétée par l'équation de conservation de la matière dans la phase poreuse :

$$\frac{\partial q_j^i}{\partial t} - v_s \frac{\partial q_j^i}{\partial z} = k_i (q_j^{i*} - q_j^i) \quad (2.2)$$

où q_j^{i*} est la concentration du composé i adsorbé qui serait en équilibre avec le composé i à la concentration c_i dans la phase liquide, v_s la vitesse de solide, k_i le coefficient de transfert de matière. L'équilibre entre la concentration c_i du composé i en phase liquide et la concentration q_i en phase solide se traduit par l'équation d'isotherme d'équilibre.

Nous discuterons dans la partie 2.5 des différentes isothermes et de leurs intérêts respectifs. Dans le cas le plus simple, aux faibles concentrations, on peut utiliser une loi linéaire :

$$q^{i*} = q^{mi} K^i c^i \quad (2.3)$$

q^{mi} étant la quantité maximale adsorbable, K_i étant la constante de Langmuir pour l'espèce i et c_i étant la concentration. Dans un domaine de concentrations plus large, l'isotherme de Langmuir est fréquemment utilisée :

$$q^i = \frac{q^{mi} K^i c^i}{1 + \sum_{i=1}^{n_c} K^i c^i} \quad (2.4)$$

où n_c est le nombre de constituants.

2.2.2 Conditions aux limites

Soit L_{elu} le débit d'éluant, L_{ext} le débit à l'extrait, L_{raf} le débit au raffinat et L_{alim} le débit d'alimentation. Supposons également que chaque zone du LMV ait une porosité identique notée ϵ ainsi qu'une section de surface Ω . Notons v_j la vitesse de la phase mobile dans la zone j .

Les conditions aux limites sont :

- Au point d'entrée d'éluant (Figure 2.2) :

$$v_{IV} c_{IV,S}^i = v_I c_{I,E}^i \quad \text{et :} \quad q_{IV,E}^i = q_{I,S}^i \quad (2.5)$$

ou :

$$L_{elu} + v_{IV} \epsilon \Omega = v_I \epsilon \Omega \quad (2.6)$$

L'éluant est introduit entre les sections IV et I.

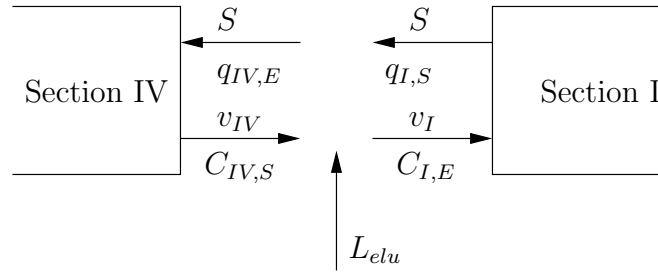


Figure 2.2 – Conditions au point d'entrée d'éluant.

- Au point de soutirage d'extrait (Figure 2.3) :

$$c_{I,S}^i = c_{II,E}^i \quad \text{et :} \quad q_{I,E}^i = q_{II,S}^i \quad (2.7)$$

ou :

$$L_{ext} + v_{II} \epsilon \Omega = v_I \epsilon \Omega \quad (2.8)$$

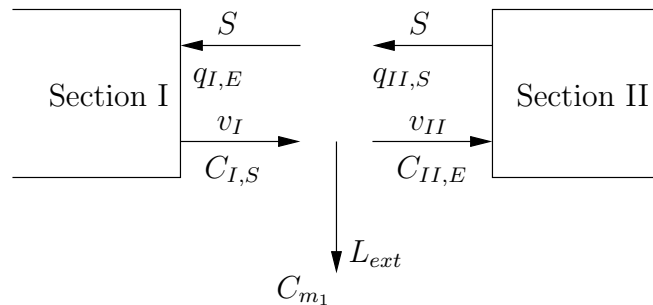


Figure 2.3 – Conditions au point de soutirage d'extrait.

- Au point d'entrée de l'alimentation (Figure 2.4) :

$$L_{alim} c_{alim}^i + v_{II} \epsilon \Omega c_{II,S}^i = v_{III} \epsilon \Omega c_{III,E}^i \quad \text{et :} \quad q_{II,E}^i = q_{III,S}^i \quad (2.9)$$

ou :

$$L_{alim} + v_{II} \epsilon \Omega = v_{III} \epsilon \Omega \quad (2.10)$$

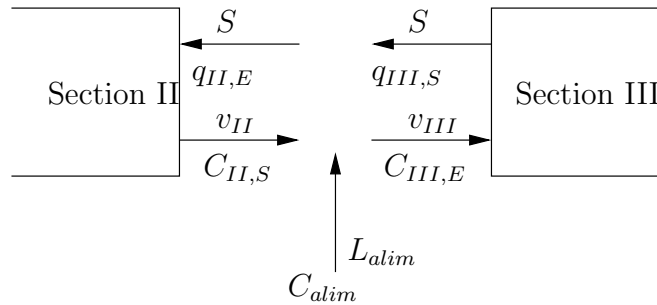


Figure 2.4 – Conditions au point d'entrée de l'alimentation.

- Au point de soutirage du raffinat (Figure 2.5) :

$$c_{III,S}^i = c_{IV,E}^i \quad \text{et :} \quad q_{III,E}^i = q_{IV,S}^i \quad (2.11)$$

ou :

$$L_{raf} + v_{IV} \epsilon \Omega = v_{III} \epsilon \Omega \quad (2.12)$$

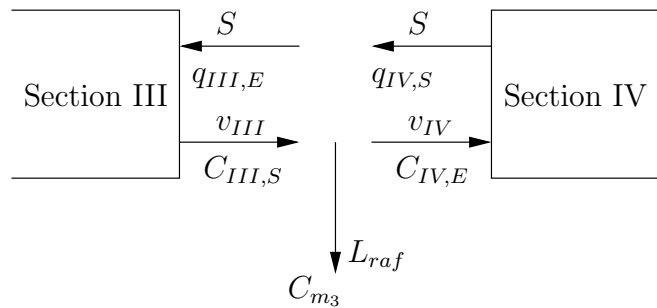


Figure 2.5 – Conditions au point de soutirage de raffinat.

2.3 Lit mobile simulé

En pratique, le mouvement du solide dans le LMV a pour conséquences la dégradation de l'adsorbant solide et la production de particules fines. Afin de remédier à ce problème, le lit mobile à contre-courant simulé a été conçu. Dans ce dernier, l'adsorbant est disposé dans un lit fixe .

Le lit mobile simulé est réalisé en reliant plusieurs colonnes chromatographiques simples en série. A la différence du lit mobile vrai, le solide ne circule pas dans le lit mobile simulé (Figure 2.6). Le mouvement du solide est simulé par une commutation cyclique des vannes d'entrée et de sortie des différents courants; cette commutation se faisant dans la direction de l'écoulement de la phase mobile. De cette manière, la position physique des courants d'entrée et de sortie dépend de l'instant considéré.

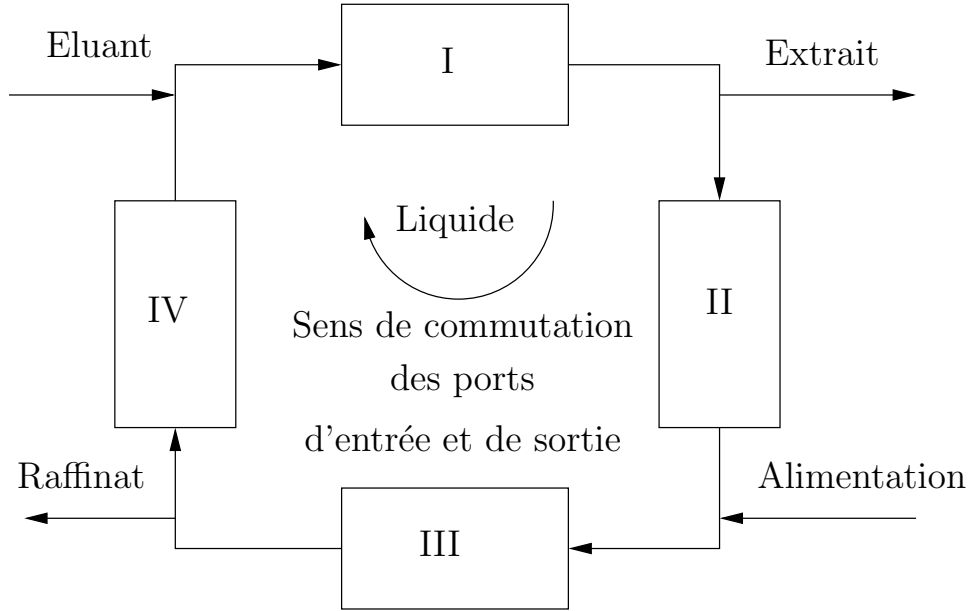


Figure 2.6 – Schéma d'un lit mobile simulé.

2.3.1 Modèle du Lit Mobile Simulé

L'équation de bilan de matière dans une section j pour un composé i est modifiée par rapport au bilan matière (2.1) du lit mobile vrai en annulant la vitesse de solide v_s selon :

$$\epsilon \frac{\partial C_j^i}{\partial t} + (1 - \epsilon) \frac{\partial q_j^i}{\partial t} + \epsilon v_j \frac{\partial C_j^i}{\partial z} - \epsilon \mathcal{D} \frac{\partial^2 C_j^i}{\partial z^2} = 0 \quad (2.13)$$

où v_j est la vitesse de liquide dans la section j (reliée au débit L_j par la relation $L_j = \epsilon \Omega u_j$), Ω la section de colonne, ϵ la porosité, \mathcal{D} le coefficient de dispersion axiale.

De manière identique au cas du lit mobile vrai, ce bilan doit être complété par l'équation de conservation de la matière dans la phase poreuse :

$$\frac{\partial q_j^i}{\partial t} = k_i (q_j^{i*} - q_j^i) \quad (2.14)$$

où q_j^{i*} est la concentration du composé i adsorbé qui serait en équilibre avec le composé i dans la phase liquide, k_i le coefficient de transfert de matière.

A nouveau, pour exprimer la concentration q_j^{i*} dans la phase solide d'adsorbant, on pourra utiliser selon le cas une isotherme d'équilibre linéaire (2.3) ou non linéaire de Langmuir (2.4) ou autre.

Les équations de transfert dans la phase poreuse (2.14) et d'isotherme d'équilibre (2.3) sont valables à tout instant t . Contrairement au lit mobile vrai pour lequel un état permanent peut être défini, dans le lit mobile simulé, des commutations de vannes ont lieu à des instants t_c^k non nécessairement régulièrement espacés. Considérons l'intervalle de temps $[t_c^k, t_c^{k+1}[$ entre deux instants successifs de commutation. A l'instant t_c^{k+1} , une commutation se produit, si bien que le débit de fluide dans une colonne devient celui qui existait dans la colonne précédente avant la commutation (Figure 2.7).

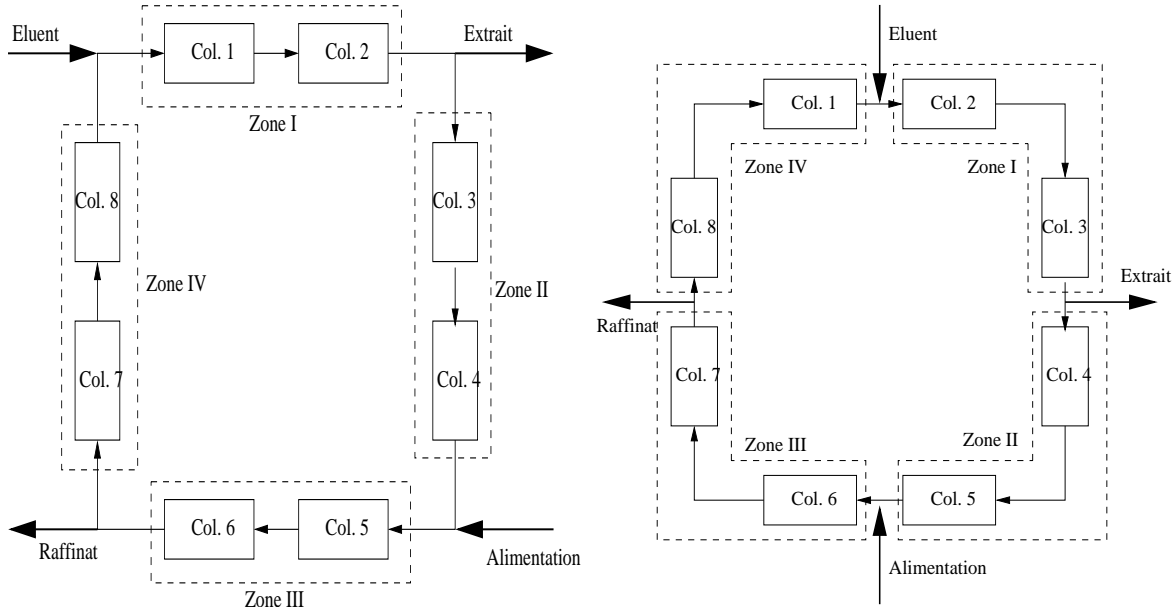


Figure 2.7 – Chronogramme de commutation d'un LMS dans une configuration 2/2/2/2; dans lequel les colonnes sont fixes mais la position des points d'alimentation et de soutirage varie au cours du temps

Pour pouvoir comparer le lit mobile simulé et le lit mobile vrai, la vitesse relative du liquide par rapport au solide doit être conservée. De ce fait, les débits internes de liquide seront :

$$L_j^{lms} = L_j^{lmv} + \frac{\epsilon}{1 - \epsilon} L_s \quad (j = 1, 2, 3, 4) \quad (2.15)$$

où L_j^{lms} désigne le débit de liquide dans la section j du LMS, L_j^{lmv} le débit de liquide dans la section j du LMV, L_s le débit de solide circulant dans le LMV. Dans la suite, nous dénommerons par L_j les débits de liquide internes L_j^{lms} dans la section j du lit mobile simulé.

2.3.2 Conditions aux limites

Les conditions aux limites pour le LMS sont semblables à celles mentionnées pour le LMV, sauf qu'il n'existe plus de solide circulant. Pour le composé i , sur un intervalle $[t_c^k, t_c^{k+1}[$ entre deux instants successifs de commutation, les conditions aux limites entre deux sections adjacentes s'écrivent :

- Au point d'entrée d'éluant :

$$L_{elu} + v_{IV} \epsilon \Omega = v_I \epsilon \Omega \quad (2.16)$$

et :

$$v_{IV} c_{IV,S}^i = v_I c_{I,E}^i \quad (2.17)$$

- Au point de soutirage d'extrait :

$$L_{ext} + v_{II} \epsilon \Omega = v_I \epsilon \Omega \quad (2.18)$$

et :

$$c_{I,S}^i = c_{II,E}^i \quad (2.19)$$

- Au point d'entrée de l'alimentation :

$$L_{alim} + v_{II} \epsilon \Omega = v_{III} \epsilon \Omega \quad (2.20)$$

et :

$$L_{alim} c_{alim}^i + v_{II} \epsilon \Omega c_{II,S}^i = v_{III} \epsilon \Omega c_{III,E}^i \quad (2.21)$$

- Au point de soutirage de raffinat :

$$L_{raff} + v_{IV} \epsilon \Omega = v_{III} \epsilon \Omega \quad (2.22)$$

et :

$$c_{III,S}^i = c_{IV,E}^i \quad (2.23)$$

2.3.3 Définition de configuration

La configuration d'un lit mobile est définie par le nombre des colonnes dans chacune des sections.

Les différentes sections du lit mobile vrai et simulé ont des caractéristiques spécifiques dans le procédé (Ching et al., 1992; Ludemann-Hombourger et al., 2002). La zone I située entre l'entrée d'éluant et la sortie à l'extrait est une zone de désorption des composés les plus adsorbés, il s'agit d'une zone de régénération de la phase solide. La zone II située entre la sortie à l'extrait et l'entrée de l'alimentation est une zone de désorption des composés les moins retenus, il s'agit d'une zone d'enrichissement de la phase solide. La zone III située entre l'entrée de l'alimentation et la sortie au raffinat est une zone d'adsorption des composés les plus retenus, il s'agit d'une zone de purification de la phase liquide. La zone IV située entre la sortie au raffinat et l'entrée d'éluant est une zone d'adsorption des composés les moins retenus, il s'agit d'une zone de recyclage de la phase liquide.

Suivant les composés mis en présence et la difficulté de la séparation, il peut être intéressant que certaines zones aient une contribution plus importante dans le fonctionnement du procédé, on attribuera alors à cette zone une longueur plus grande et donc plus de colonnes. Ainsi, il est commode de caractériser un lit mobile simulé par sa configuration, c'est-à-dire le nombre de colonnes attribuées respectivement dans les zones I à IV.

Une configuration de lit mobile simulé 1/2/2/1 correspond donc à un lit mobile simulé où 1 seule colonne est attribuée à la zone I, 2 sont réservées au fonctionnement de la zone II, 2 autres pour la zone III et finalement 1 dernière colonne sera utilisée pour la zone IV. L'exemple du procédé de lit mobile simulé à 12 colonnes dans une configuration 2/4/3/3, sera donc un système avec 2 colonnes pour la zone I, 4 pour la zone II, 3 pour la zone III et 3 pour la zone IV.

2.4 Modélisation selon un modèle discret

2.4.1 Généralités

Les équations aux dérivées partielles (EDP) par rapport aux variables de temps et d'espace du type (2.1) et (2.13) sont difficilement utilisables en simulation et en commande des procédés. En commande, elles sont rarement utilisées sous la forme d'EDP (Christofides, 2001). En simulation, par discrétisation de la variable d'espace, les EDP sont transformées en équations différentielles ordinaires par rapport au temps. Cela présente l'inconvénient de faire intervenir un grand nombre d'états dans le système, d'autant plus grand que la finesse de la représentation est recherchée. Toutefois, il faut remarquer que sous forme d'EDP la dimension de l'état est infinie et que les difficultés mathématiques sont considérables.

Deux classes de méthodes différentes par l'approche choisie sont utilisées le plus souvent : la discrétisation numérique des dérivées spatiales ou la représentation de type génie chimique selon un modèle de mélangeurs en série (Dünnebier and Klatt, 2000; Dünnebier et al., 1998).

Discrétisation spatiale

Dünnebier et al. (1998) ont comparé différentes méthodes de discrétisation des variables spatiales afin de pouvoir utiliser le modèle général. Dünnebier and Klatt (2000) définissent le modèle idéal en négligeant tous les effets non idéaux (dispersion axiale, cinétique de transfert dans les pores) et particulièrement en supposant l'état d'équilibre entre la phase liquide et la phase solide sur l'intégralité du procédé. Dünnebier and Klatt (2000) présentent alors une résolution en utilisant ce modèle idéal. Strube and Schmidt-Traub (1998), Dünnebier et al. (1998) recensent différents modèles chromatographiques : le modèle de réacteur piston à paramètres distribués (Pais et al., 1997), le modèle à flux dispersé (Klatt et al., 2002), le modèle d'équilibre (Couenne et al., 2002; Oh and Pantelidest, 1996), ou le modèle des réacteurs parfaitement agités en cascade.

Modèle des mélangeurs en série

Charton and Nicoud (1995) modélisent le modèle chromatographique du lit mobile simulé par une discrétisation des variables spatiales en utilisant le modèle des mélangeurs en cascade.

Un mélangeur indicé k est modélisé selon le schéma de la Figure 2.8 dans le cas du lit mobile vrai. La représentation serait identique pour le lit mobile simulé, sauf qu'il ne faudrait pas indiquer le débit solide circulant. La phase liquide porte l'indice du mélangeur k dont elle est issue.

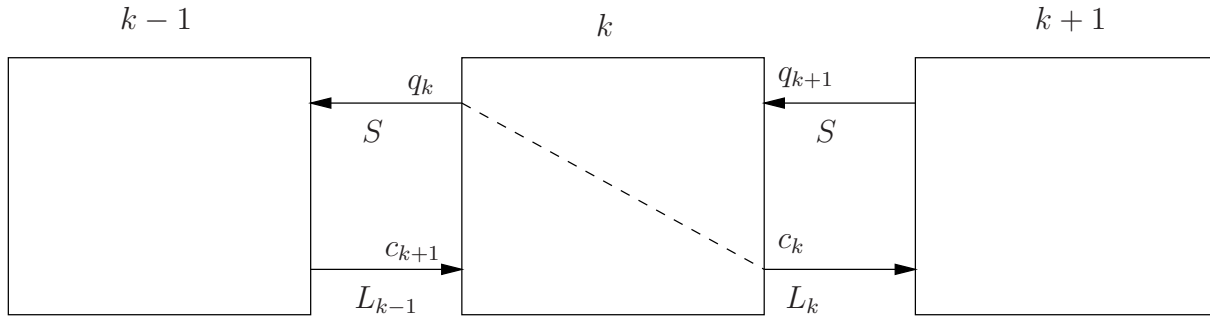


Figure 2.8 – Schéma des mélangeurs en cascade pour le lit mobile vrai.

Le nombre de mélangeurs nécessaire pour obtenir des résultats de simulation représentant correctement la réalité est de l'ordre de N avec le temps de passage dans un mélangeur égal à :

$$\tau = \frac{Long}{u N} \quad (2.24)$$

où $Long$ est la longueur d'une colonne et u la vitesse de la phase liquide. Le modèle de dispersion axiale fournit le nombre adimensionnel de Péclet Pe égal à :

$$Pe = \frac{u Long}{\mathcal{D}} \quad (2.25)$$

Le modèle de mélangeurs en cascade et celui de dispersion axiale sont équivalents si :

$$Pe = 2 N \quad (2.26)$$

2.4.2 Généralisation sur une classe de procédé

Les procédés de lit mobile vrai et de lit mobile simulé peuvent être considérés comme étant un procédé unique de lit mobile vrai, dont les entrées et sorties vont commuter selon le principe de fonctionnement du lit mobile simulé.

Caractéristiques du lit mobile simulé

La caractéristique principale de ce procédé est une vitesse de mouvement de la phase solide nulle. Afin de simuler ce mouvement de solide, on réalise à un intervalle de temps t_c

la commutation des entrées et sorties des colonnes du système dans le sens de déplacement du liquide (Figure 2.6).

Le temps de commutation t_c est calculé comme étant le temps que mettrait une particule de solide du lit mobile vrai pour parcourir la longueur d'une colonne :

$$t_c = \frac{(1 - \epsilon) V_{col}}{Q_s} \quad (2.27)$$

où V_{col} est le volume d'une colonne, ϵ sa porosité et Q_s le débit de solide du LMV équivalent au LMS étudié.

A la fin de chaque période de commutation t_c , les états commutent du nombre de mélangeurs par colonne dans le sens de circulation du liquide (2.9).

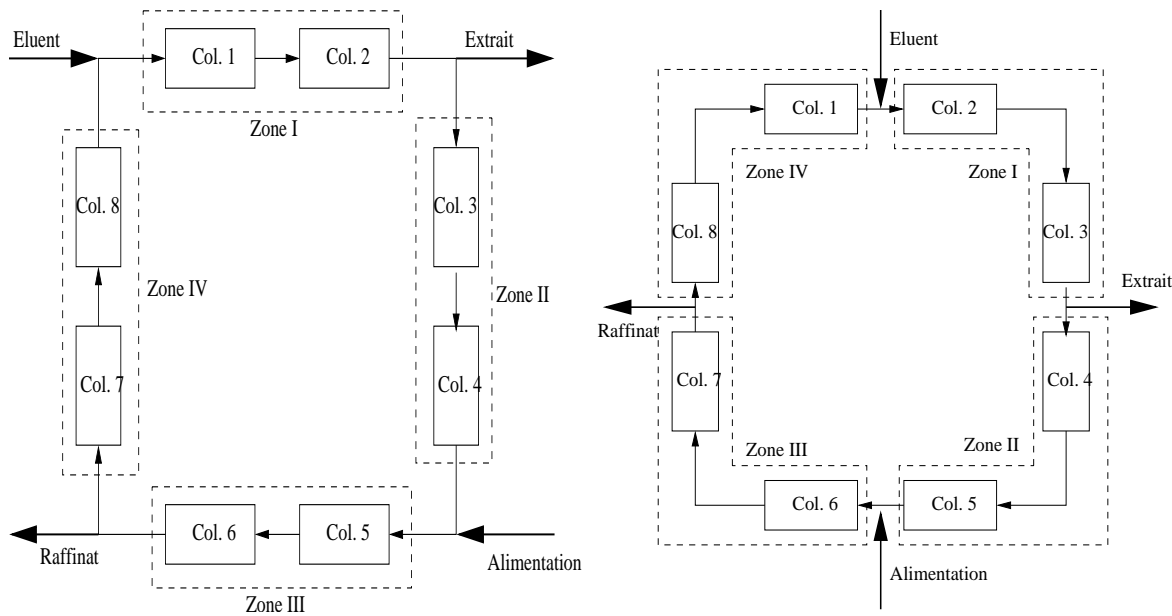


Figure 2.9 – Chronogramme de commutation d'un LMV équivalent au LMS dans une configuration 2/2/2/2

Caractéristique du lit mobile vrai

Le lit mobile vrai pourrait se caractériser par un procédé de vitesse de déplacement de solide non nulle mais dont le temps de commutation serait infini : $t_c = \infty$.

Remarque

Par la suite, afin de généraliser l'étude de la simulation, nous considérerons le procédé étudié doté de l'une ou l'autre des caractéristiques précédentes. De plus, les différentes relations données précédemment montrent que ces deux procédés sont analogues.

2.4.3 Modèle des mélangeurs en cascade

On suppose que l'équilibre est réalisé entre la phase solide (concentrations q_k^i) et la phase liquide (concentrations C_k^i) au sein d'un mélangeur k de volume constant V_k . En utilisant les notations de la figure 2.8, le bilan de matière sur ce mélangeur k fournit :

$$V_k \epsilon \frac{dC_k^i}{dt} + V_k (1 - \epsilon) \frac{dq_k^i}{dt} = S q_{k+1}^i + L_{k-1} C_{k-1}^i - S q_k^i - L_k C_k^i \quad i = 1, \dots, n_c \quad (2.28)$$

A l'intérieur d'une section, le débit liquide est conservé. Par souci de simplicité, dans la suite, les débits seront notés : $L_{k-1} = L_k = L$, tout en gardant en mémoire qu'ils dépendent de la section considérée.

Les concentrations dans la phase solide sont reliées aux concentrations en phase liquide par la relation :

$$\frac{dq_k^i}{dt} = \sum_{j=1}^{n_c} \zeta_{ij}^k \frac{dC_k^j}{dt} \quad \text{avec :} \quad \zeta_{ij}^k = \frac{\partial q_k^i}{\partial C_k^j} \quad (2.29)$$

Les mélangeurs sont supposés parfaitement agités et les transferts d'adsorption à l'équilibre, soit : $q^i = q^{i*}$ où q^{i*} est la concentration du composé i dans la phase solide en équilibre avec les composés de la phase mobile.

Pour des raisons de simplicité d'écriture, considérons un mélange binaire ($n_c = 2$) et une relation d'équilibre non linéaire selon l'isotherme de Langmuir :

$$\begin{aligned} q_k^1 &= q_k^{m,1} \frac{K_1 C_k^1}{1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2} \\ q_k^2 &= q_k^{m,2} \frac{K_2 C_k^2}{1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2} \end{aligned} \quad (2.30)$$

En utilisant les relations générales (2.29) dans le cas particulier du système (2.30), on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{dq_k^1}{dt} &= \zeta_{11}^k \frac{dC_k^1}{dt} + \zeta_{12}^k \frac{dC_k^2}{dt} \\ \frac{dq_k^2}{dt} &= \zeta_{21}^k \frac{dC_k^1}{dt} + \zeta_{22}^k \frac{dC_k^2}{dt} \end{aligned} \quad (2.31)$$

avec les dérivées partielles :

$$\begin{aligned} \zeta_{11}^k &= \frac{\partial q_k^1}{\partial C_k^1} = q_m^1 \frac{K_1(1 + K_2 C_k^2)}{(1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2)^2} \\ \zeta_{12}^k &= \frac{\partial q_k^1}{\partial C_k^2} = -q_m^1 \frac{K_1 K_2 C_k^1}{(1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2)^2} \\ \zeta_{21}^k &= \frac{\partial q_k^2}{\partial C_k^1} = -q_m^2 \frac{K_1 K_2 C_k^2}{(1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2)^2} \\ \zeta_{22}^k &= \frac{\partial q_k^2}{\partial C_k^2} = q_m^2 \frac{K_2(1 + K_1 C_k^1)}{(1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2)^2} \end{aligned} \quad (2.32)$$

En introduisant les paramètres suivants :

$$a_j = q_m^j K_j \quad ; \quad D_k = 1 + K_1 C_k^1 + K_2 C_k^2 \quad (2.33)$$

qui transforme les relations (2.30) selon :

$$q_k^1 = \frac{a_1 C_k^1}{D_k} \quad \text{et} \quad q_k^2 = \frac{a_2 C_k^2}{D_k} \quad (2.34)$$

la relation (2.28) devient :

$$\begin{aligned} V_k \left[(\epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{11}) \frac{dC_k^1}{dt} + (1 - \epsilon) \zeta_{12} \frac{dC_k^2}{dt} \right] &= S \left(\frac{a_1 C_{k+1}^1}{D_{k+1}} - \frac{a_1 C_k^1}{D_k} \right) + L (C_{k-1}^1 - C_k^1) \\ V_k \left[(\epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{22}) \frac{dC_k^2}{dt} + (1 - \epsilon) \zeta_{21} \frac{dC_k^1}{dt} \right] &= S \left(\frac{a_2 C_{k+1}^2}{D_{k+1}} - \frac{a_2 C_k^2}{D_k} \right) + L (C_{k-1}^2 - C_k^2) \end{aligned} \quad (2.35)$$

On définit le vecteur d'état \mathbf{x} comme :

$$x(n_c(k-1) + i) = C_k^i \quad , \quad i = 1, \dots, n_c \quad (2.36)$$

avec n_c le nombre de constituants, k le numéro du mélangeur et i le numéro du constituant considéré. Dans le cas binaire où $n_c = 2$, le vecteur d'état s'exprime selon :

$$\begin{aligned} C_{k-1}^1 &= x(2k-3) \\ C_{k-1}^2 &= x(2k-2) \\ C_k^1 &= x(2k-1) \\ C_k^2 &= x(2k) \\ C_{k+1}^1 &= x(2k+1) \\ C_{k+1}^2 &= x(2k+2) \end{aligned} \quad (2.37)$$

Les équations (2.35) s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} V_k \left[(\epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{11}) \frac{dx_{2k-1}}{dt} + (1 - \epsilon) \zeta_{12} \frac{dx_{2k}}{dt} \right] &= \\ S \left(\frac{a_1 x_{2k+1}}{D_{k+1}} - \frac{a_1 x_{2k-1}}{D_k} \right) + L (x_{2k-3} - x_{2k-1}) & \\ V_k \left[(\epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{22}) \frac{dx_{2k}}{dt} + (1 - \epsilon) \zeta_{21} \frac{dx_{2k-1}}{dt} \right] &= \\ S \left(\frac{a_2 x_{2k+2}}{D_{k+1}} - \frac{a_2 x_{2k}}{D_k} \right) + L (x_{2k-2} - x_{2k}) & \end{aligned} \quad (2.38)$$

ou :

$$\begin{aligned} \frac{dx_{2k-1}}{dt} [\epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{11}] + \frac{dx_{2k}}{dt} [(1 - \epsilon) \zeta_{12}] &= \\ \frac{S}{V_k} a_1 \left(\frac{x_{2k+1}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k-1}}{D_k} \right) + \frac{L}{V_k} (x_{2k-3} - x_{2k-1}) & \\ \frac{dx_{2k}}{dt} [\epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{22}] + \frac{dx_{2k-1}}{dt} [(1 - \epsilon) \zeta_{21}] &= \\ \frac{S}{V_k} a_2 \left(\frac{x_{2k+2}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k}}{D_k} \right) + \frac{L}{V_k} (x_{2k-2} - x_{2k}) & \end{aligned} \quad (2.39)$$

On introduit de nouvelles variables :

$$\begin{aligned}
 \alpha_{11} &= \epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{11} \epsilon + \frac{(1 - \epsilon) a_1}{D_k^2} (1 + K_2 x_{2k}) \\
 \alpha_{12} &= (1 - \epsilon) \zeta_{12} - \frac{(1 - \epsilon) a_1}{D_k^2} K_2 x_{2k-1} \\
 \alpha_{21} &= (1 - \epsilon) \zeta_{21} - \frac{(1 - \epsilon) a_2}{D_k^2} K_1 x_{2k} \\
 \alpha_{22} &= \epsilon + (1 - \epsilon) \zeta_{22} \epsilon + \frac{(1 - \epsilon) a_2}{D_k^2} (1 + K_1 x_{2k-1}) \\
 \beta_1 &= \frac{S}{V_k} a_1 \left(\frac{x_{2k+1}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k-1}}{D_k} \right) + \frac{L}{V_k} (x_{2k-3} - x_{2k-1}) \\
 \beta_2 &= \frac{S}{V_k} a_2 \left(\frac{x_{2k+2}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k}}{D_k} \right) + \frac{L}{V_k} (x_{2k-2} - x_{2k})
 \end{aligned} \tag{2.40}$$

si bien que le système s'écrit la forme simplifiée d'un système couplé de deux équations différentielles de premier ordre pour chaque mélangeur k considéré :

$$\begin{aligned}
 \alpha_{11} \frac{dx_{2k-1}}{dt} + \alpha_{12} \frac{dx_{2k}}{dt} &= \beta_1 \\
 \alpha_{21} \frac{dx_{2k-1}}{dt} + \alpha_{22} \frac{dx_{2k}}{dt} &= \beta_2
 \end{aligned} \tag{2.41}$$

que l'on peut expliciter facilement dans le cas binaire :

$$\frac{dx_{2k-1}}{dt} = \frac{\beta_1 \alpha_{22} - \beta_2 \alpha_{12}}{\alpha_{11} \alpha_{22} - \alpha_{21} \alpha_{12}} \quad ; \quad \frac{dx_{2k}}{dt} = \frac{\beta_2 \alpha_{11} - \beta_1 \alpha_{21}}{\alpha_{11} \alpha_{22} - \alpha_{21} \alpha_{12}} \tag{2.42}$$

2.4.4 Conditions aux frontières

Les conditions aux frontières dépendent du mélangeur considéré. Au système d'équations (2.42), il faut ajouter les conditions aux frontières entre sections.

On considérera les notations suivantes :

- Nombre de mélangeurs par section : m_{sect} ,
- Nombre total de mélangeurs dans le lit : m_{tot}

et les conventions :

- Section 1 : mélangeurs indicés de 1 à m_1 ,
- Section 2 : mélangeurs indicés de $m_1 + 1$ à m_2 ,
- Section 3 : mélangeurs indicés de $m_2 + 1$ à m_3 ,
- Section 4 : mélangeurs indicés de $m_3 + 1$ à m_4 ,

ainsi que les débits de liquide par section :

- Débit de liquide dans le section 1 : L_1 ,
- Débit de liquide dans le section 2 : L_2 ,
- Débit de liquide dans le section 3 : L_3 ,
- Débit de liquide dans le section 4 : L_4

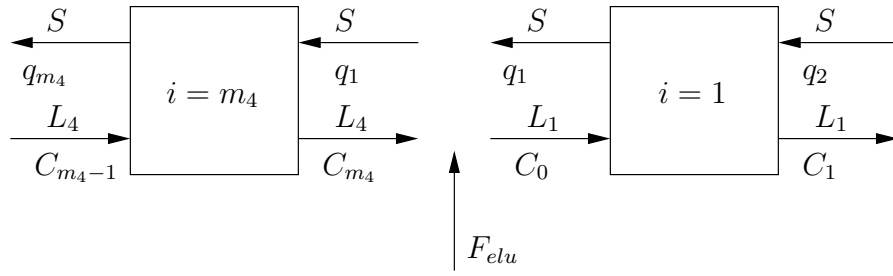


Figure 2.10 – Conditions au point d'entrée de l'éluant.

Entrée dans la section I (Figure 2.10).

Les équations de bilan sont :

$$\begin{aligned} L &= L_1 = L_4 + L_{elu} \\ (L_4 + L_{elu}) C_o^1 &= L_4 C_{m_4}^1 \\ (L_4 + L_{elu}) C_o^2 &= L_4 C_{m_4}^2 \end{aligned} \quad (2.43)$$

d'où :

$$\begin{aligned} C_o^1 = x_{-1} &= \frac{L_4}{L_4 + L_{elu}} x_{2m_4-1} \\ C_o^2 = x_0 &= \frac{L_4}{L_4 + L_{elu}} x_{2m_4} \end{aligned} \quad (2.44)$$

Les coefficients β_i sont modifiés ($k = 1$) :

$$\begin{aligned} \beta_1 &= \frac{S}{V_k} a_1 \left(\frac{x_{2k+1}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k-1}}{D_k} \right) + \frac{L_1}{V_k} \left(\frac{L_4}{L_4 + L_{elu}} x_{2m_4-1} - x_{2k-1} \right) \\ &= \frac{S}{V_k} a_1 \left(\frac{x_{2k+1}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k-1}}{D_k} \right) + \frac{1}{V_k} (L_4 x_{2m_4-1} - L_1 x_{2k-1}) \\ \beta_2 &= \frac{S}{V_k} a_2 \left(\frac{x_{2k+2}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k}}{D_k} \right) + \frac{L_1}{V_k} \left(\frac{L_4}{L_4 + L_{elu}} x_{2m_4} - x_{2k} \right) \\ &= \frac{S}{V_k} a_2 \left(\frac{x_{2k+2}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k}}{D_k} \right) + \frac{1}{V_k} (L_4 x_{2m_4} - L_1 x_{2k}) \end{aligned} \quad (2.45)$$

Passage de la section 1 à la section 2 (Figure 2.11).

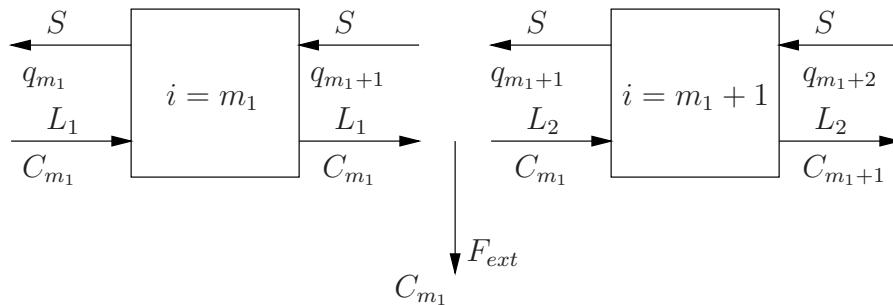


Figure 2.11 – Conditions au point de soutirage d'extrait.

Le bilan est :

$$L_2 = L_4 + L_{elu} - L_{ext} \quad (2.46)$$

La concentration de sortie du mélangeur m_1 est celle dans l'extrait et celle à l'entrée du mélangeur ($m_1 + 1$).

Passage de la section 2 à la section 3 (Figure 2.12).

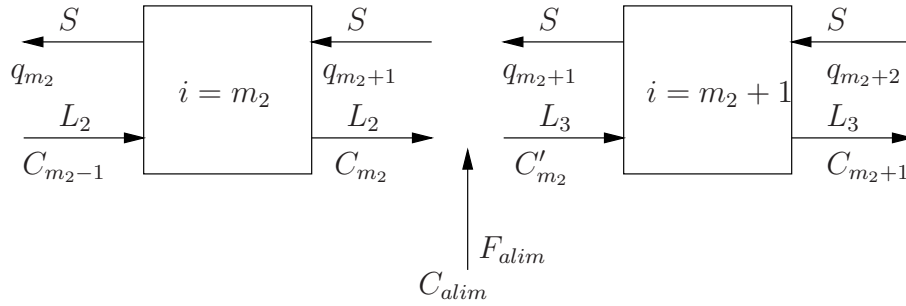


Figure 2.12 – Conditions au point d'entrée de l'alimentation.

Les équations de bilan sont :

$$\begin{aligned} L_3 &= L_4 + L_{elu} - L_{ext} + L_{alim} \\ L_2 C'_{m_2} + L_{alim} C'_{alim} &= L_3 C'_{m_2} \\ L_2 C^2_{m_2} + L_{alim} C^2_{alim} &= L_3 C^2_{m_2} \end{aligned} \quad (2.47)$$

où C'_{m_2} est la concentration du composé 1 entrant dans le mélangeur m_2 . On en tire :

$$\begin{aligned} C'_{m_2} &= x'_{2m_2-1} = \frac{L_2 x_{2m_2-1} + L_{alim} x^1_{alim}}{L_3} \\ C^2_{m_2} &= x'_{2m_2} = \frac{L_2 x_{2m_2} + L_{alim} x^2_{alim}}{L_3} \end{aligned} \quad (2.48)$$

Les coefficients β_i sont modifiés ($k = m_2 + 1$) :

$$\begin{aligned} \beta_1 &= \frac{S}{V_k} a_1 \left(\frac{x_{2k+1}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k-1}}{D_k} \right) + \frac{L_3}{V_k} (x'_{2m_2-1} - x_{2k-1}) \\ \beta_2 &= \frac{S}{V_k} a_2 \left(\frac{x_{2k+2}}{D_{k+1}} - \frac{x_{2k}}{D_k} \right) + \frac{L_3}{V_k} (x'_{2m_2} - x_{2k}) \end{aligned} \quad (2.49)$$

Passage de la section 3 à la section 4 (Figure 2.13).

Le bilan est :

$$L_4 = L_3 - L_{raf} \quad (2.50)$$

La concentration de sortie du mélangeur m_3 est celle dans le raffinat et celle à l'entrée du mélangeur ($m_3 + 1$).

Dernier mélangeur de la section 4 (Figure 2.14).

On peut définir une concentration fictive en solide q_{m_4+1} telle que :

$$q_{m_4+1} = q_1 \quad (2.51)$$

où q_1 provient de la section 1. On en déduit les relations :

$$\begin{aligned} \frac{q_m^1 K_1 x_{2m_4+1}}{1 + K_1 x_{2m_4+1} + K_2 x_{2m_4+2}} &= \frac{q_m^1 K_1 x_1}{1 + K_1 x_1 + K_2 x_2} \\ \frac{q_m^2 K_2 x_{2m_4+2}}{1 + K_1 x_{2m_4+1} + K_2 x_{2m_4+2}} &= \frac{q_m^2 K_2 x_2}{1 + K_1 x_1 + K_2 x_2} \end{aligned} \quad (2.52)$$

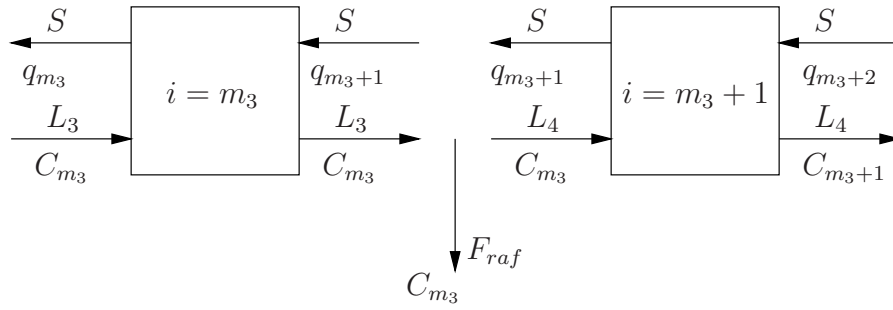


Figure 2.13 – Conditions au point de soutirage de raffinat.

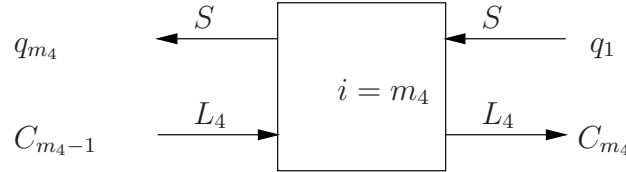


Figure 2.14 – Dernier mélangeur de la section 4.

soit :

$$x_{2m_4+1} = x_1 \quad \text{et} : \quad x_{2m_4+2} = x_2 \quad (2.53)$$

Les coefficients β_i sont modifiés ($k = m_4$) :

$$\begin{aligned} \beta_1 &= \frac{S}{V_k} a_1 \left(\frac{x_1}{D_1} - \frac{x_{2k-1}}{D_k} \right) + \frac{L_4}{V_k} (x_{2k-3} - x_{2k-1}) \\ \beta_2 &= \frac{S}{V_k} a_2 \left(\frac{x_2}{D_1} - \frac{x_{2k}}{D_k} \right) + \frac{L_4}{V_k} (x_{2k-2} - x_{2k}) \end{aligned} \quad (2.54)$$

Dans le cas binaire, pour l'isotherme non linéaire de Langmuir, l'ensemble des équations différentielles du type (2.42) et des équations algébriques constituées par les conditions aux limites ainsi que les isothermes d'équilibre permet de simuler complètement un lit mobile vrai ou un lit mobile simulé. Dans le cas d'un système à n_c composés et pour une isotherme différente, la démarche est analogue.

2.5 Domaine de fonctionnement acceptable

Le domaine de fonctionnement dit acceptable est le domaine correspondant à des caractéristiques de fonctionnement en boucle ouverte permettant d'obtenir des performances convenables du point de vue de l'utilisateur final. Typiquement, il s'agit de l'ensemble des paramètres expérimentaux permettant d'obtenir un composé pur au raffinat et un composé pur à l'extrait.

L'exposé qui suit est largement inspiré des travaux de (Mazzotti et al., 1994, 1996b; Storti et al., 1993). Il est particulièrement important pour le problème de la commande du lit mobile simulé car il permet de fixer des choix raisonnables d'entrées manipulées, de sorties commandées ainsi que d'imposer des contraintes de fonctionnement.

De très nombreux articles traitent des caractéristiques du lit mobile simulé en fonctionnement optimal en régime stationnaire cyclique, cependant il est plus pratique de réfléchir sur le régime stationnaire du lit mobile vrai en considérant une équivalence parfaite entre les deux procédés (Giovanni et al., 2001; Mazzotti et al., 1997).

Les articles de la littérature traitant du fonctionnement optimal du lit mobile vrai (donc par extension du fonctionnement optimal du lit mobile simulé) diffèrent, entre autres, par la nature de l'isotherme d'adsorption qui est utilisée pour modéliser les phénomènes de sorption. La nature de l'isotherme dépend fortement des propriétés physico-chimiques des composés, or l'étendue des domaines de fonctionnement ainsi que la position du point de fonctionnement optimale dépendront de l'isotherme choisie. Par conséquent, si les phénomènes d'adsorption et désorption sont modélisés par des isothermes linéaires (Storti et al., 1993), le point de fonctionnement optimal sera différent du point de fonctionnement optimal selon que ces mêmes phénomènes sont modélisés par des isothermes de Langmuir (Giovanni et al., 2001; Mazzotti et al., 1996a,b; Migliorini et al., 1998, 2001), des isothermes de Langmuir modifiées (Mazzotti et al., 1997) ou des isothermes bi-Langmuir (Migliorini et al., 2000). La nature de l'isotherme est donc très importante puisque à chaque type d'isotherme correspond un point de fonctionnement optimal différent ; il est même possible que le point de fonctionnement optimal pour un type d'isotherme donné soit dans un domaine de fonctionnement sous-optimal pour un autre type d'isotherme.

2.5.1 Rappel du système

Le système de colonne chromatographique est soumis au bilan de matière (2.55a) ainsi qu'à la relation d'équilibre (2.55b) :

$$\frac{\partial}{\partial t} [\epsilon^* c f q_i^j + (1 - \epsilon^*) q_i^j] + (1 - \epsilon_p) \frac{\partial}{\partial x} (m_j c_i^j - q_i^j) = 0 \quad (2.55a)$$

$$q_i^j = f(\mathbf{c}_k^j; k = 1, \dots, n_c) \quad (2.55b)$$

où m_j est le rapport des débits dans la section j défini par :

$$\begin{aligned} m_j &= \frac{\text{Débit net de liquide}}{\text{Débit de la phase solide}} \\ m_j^{lmv} &= \frac{Q_j^{lmv} - \epsilon_p Q_s}{Q_s (1 - \epsilon_p)} \\ m_j^{lms} &= \frac{Q_j^{lms} \cdot T_s - V \epsilon^*}{V (1 - \epsilon^*)} \end{aligned} \quad (2.56)$$

En définissant ϵ comme la porosité du lit, ϵ_p la porosité intraparticulaire, ϵ^* est la porosité globale (Mazzotti et al., 1996b) :

$$\epsilon^* = \epsilon + \epsilon_p (1 - \epsilon) \quad (2.57)$$

Notons que le rapport des débits est une variable importante et qu'elle est utilisée par exemple également pour la commande de colonnes de distillations (Corriou, 2003).

Dans un premier temps, nous allons étudier le domaine acceptable de fonctionnement du lit mobile vrai. Ensuite, nous présenterons le domaine de fonctionnement acceptable du lit mobile simulé. Considérons deux composés ($n_c = 2$) A et B à séparer (notés respectivement avec les indices 1 et 2) avec A préférentiellement adsorbé par la phase solide ($K_2 < K_1$).

Définissons les concentrations adimensionnelles par les relations :

$$\gamma_i^j = \frac{c_i^j}{\rho_f} \quad ; \quad \theta_i^j = \frac{q_i^j}{\Gamma^\infty} \quad (2.58)$$

où ρ_f est la masse volumique du fluide, c_i^j la concentration massique du composé i dans la phase liquide de la section j , Γ^∞ est la concentration massique maximale adsorbable et q_i^j la concentration massique du composé i dans la phase solide de la section j . Définissons le débit de sorption adimensionnel f_i^j par la relation suivante (Storti et al., 1993) :

$$f_i^j = m_j \gamma_i^j - \theta_i^j \quad (2.59)$$

Le fonctionnement d'un lit mobile dépend directement des isothermes d'adsorption (la fonction f de l'équation (2.55b)). Étudions ces différents domaines suivant la nature de cette fonction.

2.5.2 Cas des isothermes linéaires

Les isothermes linéaires (section 1.2.2) caractérisent le comportement limite des phénomènes d'adsorption aux faibles concentrations selon une loi de type Henry :

$$q_i^j = H_i c_i^j \quad (2.60)$$

Sous forme adimensionnelle, la relation (2.60) devient (Storti et al., 1993) :

$$\theta_i^j = K_i \gamma_i^j \quad (2.61)$$

Théoriquement, ces isothermes sont utilisables uniquement lorsque les concentrations dans la phase liquide sont faibles. Fréquemment dans le cas de procédés de séparation comme le lit mobile vrai ou le lit mobile simulé, cette condition n'est pas réalisée. Cependant, il est intéressant de traiter le cas linéaire car il permet une première approche de la notion de domaine de fonctionnement.

Description du fonctionnement

En fonctionnement normal, la zone I est une zone de régénération de la phase solide, il y a donc désorption du composé A ($f_1^1 > 0$) et désorption du composé B ($f_2^1 > 0$). La zone II est une zone de purification de la phase solide (concentration de la phase solide en composé A), il y a donc désorption du composé B ($f_2^2 > 0$) et adsorption du composé A ($f_1^2 < 0$). La zone III est une zone de purification de la phase liquide (concentration de

la phase liquide en composé B), il y a adsorption du composé A ($f_1^3 < 0$) et désorption du composé B ($f_2^3 > 0$). La zone IV est une zone de régénération de la phase liquide, il y a adsorption du composé B ($f_2^4 < 0$) et adsorption du composé A ($f_1^4 < 0$). (Ching et al., 1992)

Nous pouvons traduire la description des phénomènes de sorption mis en jeu par le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned}
 \text{Zone I :} & \quad f_1^1 > 0, f_2^1 > 0 \\
 \text{Zone II :} & \quad f_1^2 < 0 < f_2^2 \\
 \text{Zone III :} & \quad f_1^3 < 0 < f_2^3 \\
 \text{Zone IV :} & \quad f_1^4 < 0, f_2^4 < 0
 \end{aligned} \tag{2.62}$$

En utilisant la définition des débits de sorption selon par l'équation (2.59) le système (2.62) peut s'écrire de la manière suivante :

$$\text{Zone I :} \quad m_1 > \frac{\theta_1^1}{\gamma_1^1}, \quad m_1 > \frac{\theta_2^1}{\gamma_2^1} \tag{2.63a}$$

$$\text{Zone II :} \quad \frac{\theta_2^2}{\gamma_2^2} < m_2 < \frac{\theta_1^2}{\gamma_1^2} \tag{2.63b}$$

$$\text{Zone III :} \quad \frac{\theta_2^3}{\gamma_2^3} < m_3 < \frac{\theta_1^3}{\gamma_1^3} \tag{2.63c}$$

$$\text{Zone IV :} \quad m_4 < \frac{\theta_1^4}{\gamma_1^4}, m_4 < \frac{\theta_2^4}{\gamma_2^4} \tag{2.63d}$$

Dans le cadre d'un fonctionnement normal, les débits d'alimentation, de solvant de raffinat et d'extrait sont tous positifs. Nous avons donc également les relations suivantes :

$$\begin{aligned}
 m_1 & > m_4 \\
 m_2 & < m_1 \\
 m_3 & > m_2 \\
 m_4 & < m_3
 \end{aligned} \tag{2.64}$$

Considérons les zones II et III qui sont les zones de purification du procédé. Compte tenu des conditions de fonctionnement (2.63) et (2.64), ainsi que des relations entre les constantes de Langmuir K_i , nous pouvons écrire les conditions de fonctionnement normal sur les zones II et III de la manière suivante :

$$K_2 < m_2 < m_3 < K_1 \tag{2.65}$$

Modes de fonctionnement

Ces inégalités définissent des régions dans le plan (m_2, m_3) représenté sur la figure (Fig. 2.15)

Les caractéristiques de ces différents secteurs traduisent le mode de fonctionnement du procédé (Mazzotti et al., 1997).

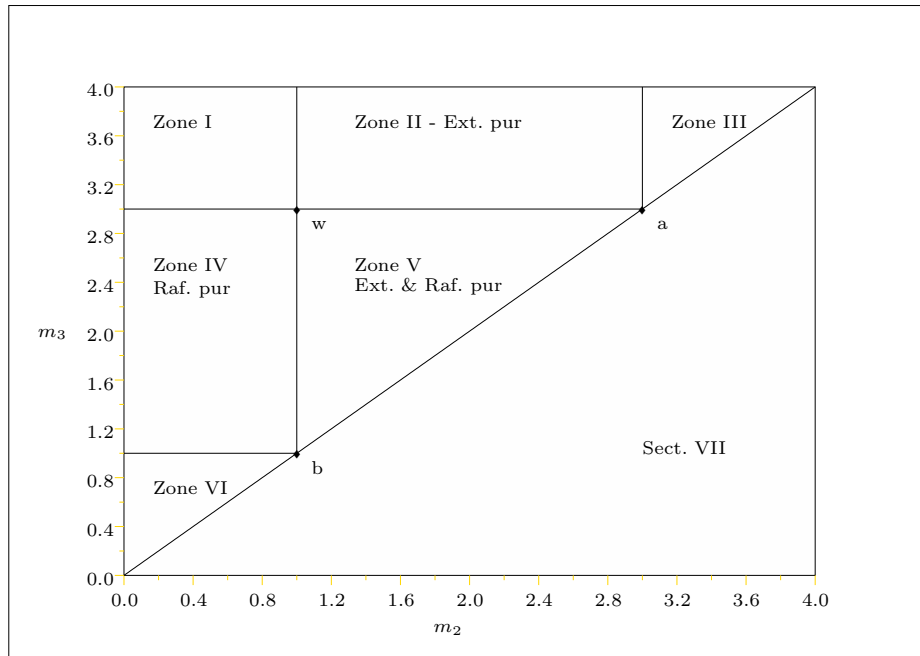


Figure 2.15 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents régimes de séparation dans le cas d'isothermes linéaires : $K_1 = 3$; $K_2 = 1$.

secteur I : $m_2 < K_2$ et $K_1 < m_3$

Ce secteur définit une adsorption du composé B dans la zone II : si les conditions (2.63a) sont remplies, il y aura désorption de B dans la zone I du procédé et donc une pollution de l'extrait.

Ce secteur définit également la désorption du composé A dans la zone III et donc pollution du raffinat.

secteur II : $K_2 < m_2 < K_1$ et $K_1 < m_3$

Ce secteur répond parfaitement aux conditions (2.63b) : la zone II fonctionne donc de façon normale. En revanche, les conditions (2.63c) ne sont pas remplies. En effet, dans la zone III, une désorption de A a lieu et donc une pollution du raffinat.

secteur III : $K_1 < m_2$ et $K_1 < m_3$

Ce secteur définit une désorption du composé A dans la zone III et donc une pollution du raffinat. De plus ce secteur définit la désorption de A dans la zone II. Compte-tenu du fonctionnement normal du procédé ($m_2 < m_3$), cette désorption du composé A dans la zone II engendre également une pollution du raffinat. Mais de plus, étant donné que A est préférentiellement adsorbé par la phase solide ($K_2 < K_1$), il y a désorption de A et de B dans la zone II. Cette zone fonctionne donc comme une zone de régénération de la phase solide. L'extrait sera donc de d'éluant parfaitement pur.

secteur IV : $m_2 < K_2$ et $K_2 < m_3 < K_1$

Ce secteur répond parfaitement aux conditions (2.63c) : la zone III fonctionne donc de façon normale et le raffinat sera pur. Cependant ce secteur définit également l'adsorption du composé B dans la zone II. Si les conditions (2.63a) sont remplies, il y aura désorption de B dans la zone I du procédé et donc une pollution de l'extrait.

secteur V : $K_2 < m_2 < K_1$ $K_2 < m_3 < K_1$

Ce secteur répond parfaitement aux conditions (2.63b) et (2.63c) : les zones II et III fonctionnent donc de façon adéquate, les sorties au raffinat et à l'extrait sont parfaitement pures.

secteur VI : $m_2 < K_2$ $m_3 < K_2$

Ce secteur définit l'adsorption du composé B dans la zone II. Si les conditions (2.63a) sont remplies, il y aura désorption de B dans la zone I du procédé et donc une pollution de l'extrait. De plus, ce secteur définit l'adsorption du composé B dans la zone III : étant donné que A est préférentiellement adsorbé par la phase solide ($K_2 < K_1$), il y a adsorption de A et de B dans la zone III. Cette zone fonctionne donc comme une zone de régénération de la phase liquide. Le raffinat sera donc de d'éluant parfaitement pur.

secteur VII : $m_2 > m_3$

Ce secteur est caractéristique d'un fonctionnement impossible car il implique un débit d'alimentation négatif.

Conclusions

Le mode de fonctionnement de chacun de ces secteurs est exprimé en termes de transfert de matière, il apparaît donc que la description de ces secteurs est indépendante de l'isotherme utilisé.

Il faut souligner que l'utilisation d'isothermes linéaires n'est pas adaptée au cas des procédés de séparation à contre-courant, premièrement, car l'hypothèse de concentrations faibles est rarement validée, deuxièmement, nous avons utilisé cette isotherme sous l'hypothèse des définitions des variables normalisées (2.58), c'est-à-dire entre autres en supposant que le liquide est homogène dans le procédé (ρ_f constant).

En appliquant un gradient de pression sur les différentes zones du procédé, ces hypothèses ne sont plus vérifiées. Pour résoudre ce problème, Giovanni et al. (2001) définit une constante de Henry pour chaque zone du procédé.

2.5.3 Isothermes stoechiométriques

Les isothermes linéaires sont une approximation mathématique pratique, mais non réaliste car elles ne tiennent pas compte de deux phénomènes de transfert, à savoir la compétition de l'adsorption des espèces de la phase liquide et la limitation de l'adsorption par la saturation de la phase solide. Les isothermes stoechiométriques (section 1.2.2) tiennent compte de ces phénomènes. En variables adimensionnelles, l'équation (1.3) de

vient :

$$\theta_i^j = \frac{K_i \gamma_i^j}{\sum_{k=1}^{N_c} K_k \gamma_k^j} \quad (2.66)$$

avec N_c le nombre total de constituants, défini par le nombre de composés à séparer, plus l'éluant $N_c = n_c + 1$. Le dernier composé K_{N_c} (ici dans le cas d'une séparation binaire K_3 noté également K_D) est lié à l'éluant.

Description du fonctionnement

La résolution des conditions de fonctionnement (2.63) dans le cas d'isothermes stoechiométriques (2.66) donne lieu au système d'inégalités suivantes (Storti et al., 1993) :

$$b_2 - \sqrt{b_2^2 - 4c_2} > b_1 - \sqrt{b_1^2 - 4c_1} \quad (2.67a)$$

$$b_2 + \sqrt{b_2^2 - 4c_2} > b_1 + \sqrt{b_1^2 - 4c_1} \quad (2.67b)$$

$$b_2^2 - 4c_2 > 0 \quad (2.67c)$$

$$b_1^2 - 4c_1 > 0 \quad (2.67d)$$

avec :

$$b_1 = K_B + K_D m_3 - (K_D - K_B) y_B^F (m_3 - m_2) \quad (2.68a)$$

$$c_1 = K_B K_D m_3 \quad (2.68b)$$

$$b_2 = K_A + K_D m_2 - (K_A - K_D) y_A^F (m_3 - m_2) \quad (2.68c)$$

$$c_2 = K_A K_D m_2 \quad (2.68d)$$

Les inégalités (2.67c), (2.67d) permettent d'assurer l'existence des inégalités (2.67a, 2.67b). De plus, compte tenu de la méthode de résolution (Storti et al., 1993), les constantes (2.68) sont positives.

Afin de définir la région de fonctionnement, la théorie de l'équilibre introduit le paramètre Ω^F caractéristique de l'alimentation, défini de la manière suivante (Storti et al., 1993) :

$$\Omega^F = \frac{K_A K_B}{K_A \gamma_A^F + K_B \gamma_B^F} \quad (2.69)$$

Ces inégalités (2.67) définissent des régions dans le plan (m_2, m_3) représentées sur la figure 2.16.

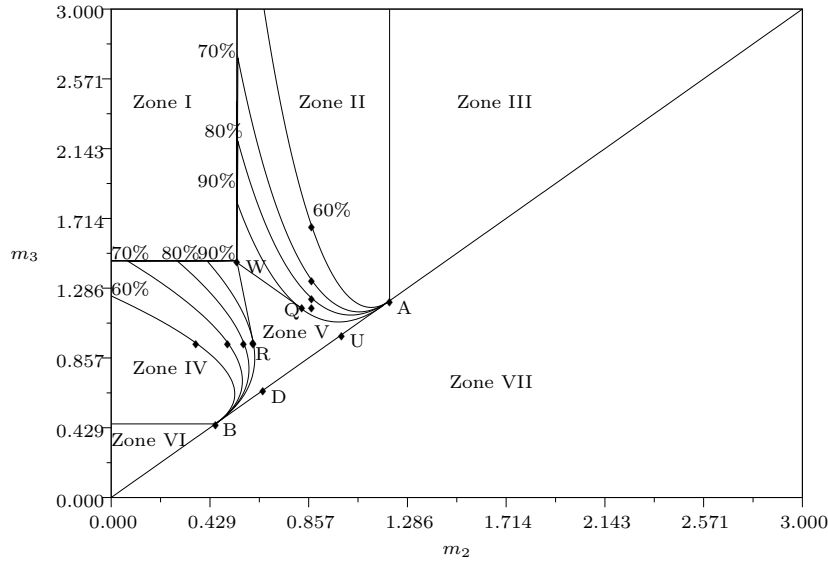


Figure 2.16 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents régimes de séparation dans le cas d'isothermes stoechiométriques : $K_1 = 2.67$; $K_2 = 1$; $K_3 = 2.21$; $\gamma_1^F = 0.5$.

Modes de fonctionnement

Nous retrouvons ici les mêmes secteurs de fonctionnement que dans le cas linéaire, certains sous une allure déformée. Pour les raisons expliquées dans la section 2.5.2, le mode de fonctionnement est résumé dans la liste suivante (Storti et al., 1995) :

Zone I : $m_2 < \Omega^F/K_A$; $m_3 > \Omega^F/K_B$

Les sorties à l'extract et au raffinat sont polluées.

Zone II : $\Omega^F/K_A < m_2 < K_A/K_D$; $m_3 > C_{WA}$

La sortie à l'extract est pure, mais la sortie au raffinat est polluée.

Zone III : $K_A/K_D < m_2 < m_3$

La sortie à l'extract est pure, mais il ne s'agit que d'éluant pur.

Zone IV : $m_2 < C_{WB}$; $K_B/K_D < m_3 < \Omega^F/K_B$

La sortie au raffinat est pure, mais la sortie à l'extract est polluée.

Zone V : $C_{WB} < m_2 < m_3 < C_{WA}$

C'est le mode de fonctionnement normal, les sorties à l'extract et au raffinat sont pures et les productivités à l'extract et au raffinat sont non nulles.

Zone VI : $m_2 < m_3 K_B/K_D$

La sortie au raffinat est pur, mais il s'agit d'éluant pur.

Zone VII : $m_2 > m_3$

Mode de fonctionnement impossible, car il implique un débit d'alimentation négatif.

Conclusions

Il faut souligner que le cas de séparation considéré est simple car l'éluant est considéré comme un composé neutre. A est préférentiellement adsorbé par le solide que ce soit devant B, mais également devant l'éluant : $K_D < K_A$. Mais nous avons également supposé que B est le composé le moins adsorbé par la phase solide vis-à-vis de A, mais également de l'éluant : $K_B < K_D$. Une telle hypothèse n'est pas restrictive ; en effet, si l'éluant est un composé fort ($K_i < K_D$) ou un composé faible ($K_D < K_i$), le système d'équations définissant les régions de fonctionnement diffère, mais reste analogue (Mazzotti et al., 1994).

De plus la définition des domaines de fonctionnement acceptables en fonction des puretés ou des productivités permet d'apporter une certaine souplesse au système, puisque autoriser des conditions de fonctionnement moins restrictives permet d'élargir le domaine acceptable.

2.5.4 Isothermes de Langmuir

Les isothermes de Langmuir sont des isothermes non linéaires, non stoechiométriques. Ces isothermes introduisent la notion de phénomènes d'adsorptions compétitives pour un système à sélectivité constante (Giovanni et al., 2001; Mazzotti et al., 1996a,b; Migliorini et al., 1998, 2001).

L'équation dimensionnelle (1.4) devient sous forme adimensionnelle :

$$\theta_i^j = \frac{\Gamma_i K_i \gamma_i^j}{1 + \sum_{k=1}^{n_c} K_k \gamma_k^j} \quad (2.70)$$

Description du fonctionnement

Par rapport aux hypothèses considérées pour les isothermes stoechiométriques (section 2.5.3), l'éluant est considéré comme un composé thermodynamiquement non adsorbable : $K_D = 0$ et $\Gamma_D = 0$, mais dont la concentration est infinie : $\gamma_D = \infty$. Par définition, on suppose que le produit de ces deux constantes est unitaire : $K_D \gamma_D = 1$.

Le paramètre caractéristique Ω^F est racine de l'équation suivante (Rhee et al., 1971) :

$$\sum_{i=1}^{N_C} \frac{K_i \gamma_i}{\Gamma_i K_i - \Omega} = 0 \quad (2.71)$$

Dans le cas binaire, l'équation (2.71) s'écrit sous la forme :

$$\frac{K_1 \gamma_1}{\Gamma_1 K_1 - \Omega} + \frac{K_2 \gamma_2}{\Gamma_2 K_2 - \Omega} + \frac{K_D \gamma_D}{\Gamma_D K_D - \Omega} = 0 \quad (2.72)$$

qui devient :

$$\frac{K_1 \gamma_1}{\Gamma_1 K_1 - \Omega} + \frac{K_2 \gamma_2}{\Gamma_2 K_2 - \Omega} + \frac{1}{-\Omega} = 0 \quad (2.73)$$

ou finalement :

$$\Omega^2(1 + K_1\gamma_1 + K_2\gamma_2) - \Omega(K_1\Gamma_1(K_2\gamma_2 + 1) + K_2\Gamma_2(K_1\gamma_1 + 1)) + K_1\Gamma_1K_2\Gamma_2 = 0 \quad (2.74)$$

L'équation (2.74) admet deux racines Ω_w^F et Ω_s^F avec $0 < \Omega_w^F < \Omega_s^F$.

La résolution des conditions de fonctionnement (2.63) dans le cas d'isothermes de Langmuir (2.70) est analogue aux cas précédents (Mazzotti et al., 1997). Puisqu'en pratique seul le domaine de séparation complète est intéressant, nous ne délimiterons que cette zone (Figure 2.17).

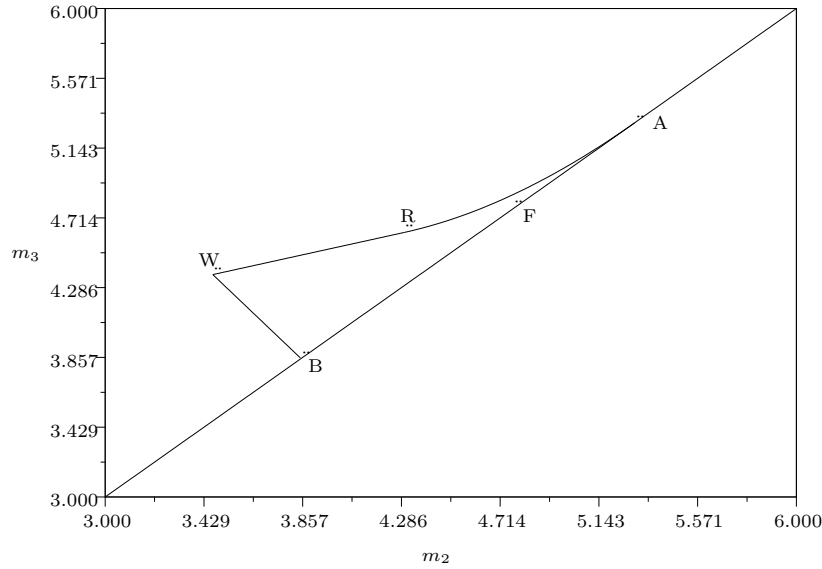


Figure 2.17 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents régimes de séparation dans le cas d'isothermes de Langmuir : $K_1 = 0.0321\text{ml/mg}$; $K_2 = 0.0175\text{ml/mg}$; $H_1 = 5.30$; $H_2 = 3.85$; $C_1^F = 5\text{mg/ml}$; $C_2^F = 5\text{mg/ml}$.

Le secteur $WRAB$ de la figure 2.17 représente le domaine de fonctionnement pour une séparation complète avec une productivité non nulle. Par rapport aux isothermes linéaires, ce domaine est considérablement déformé.

Conclusions

Mazzotti et al. (1997) soulignent le fait que dans le cas des isothermes de Langmuir, la sélectivité S_{AB} définie par :

$$S_{AB} = \frac{\frac{\theta_a^j}{\theta_b^j}}{\frac{\gamma_a^j}{\gamma_b^j}} = \frac{\Gamma_a K_a}{\Gamma_b K_b} \quad (2.75)$$

est indépendante de la composition. De plus, Mazzotti et al. (1997) précisent également que pour des concentrations faibles, les isothermes de Langmuir adoptent un comportement proche des isothermes linéaires, ce qui confère aux isothermes de Langmuir un bon compromis entre isothermes linéaires et isothermes non linéaires.

2.5.5 Isothermes de Langmuir modifiées

L'équation dimensionnelle (1.6) devient sous forme adimensionnelle :

$$\theta_i^j = \frac{\Gamma_i K_i \gamma_i^j}{n_c} + \Lambda_i \gamma_i^j \quad (2.76)$$

$$1 + \sum_{k=1} K_k \gamma_k^j$$

La caractéristique des isothermes de Langmuir qui lui donne une sélectivité indépendante de la composition peut se révéler inadaptée, notamment dans le cas des séparations complexes comme la séparation des énantiomères (Gentilini et al., 1998; Mazzotti et al., 1997). Pour ce type de séparation, un terme linéaire est ajouté.

Les isothermes de Langmuir modifiées décrivent plus finement les adsorptions en couche. De plus, si en principe ces paramètres Λ_i sont différents pour un couple d'énantiomères donné, il apparaît qu'en pratique, pour un énantiomère dextrogyre ou lévogyre, ces valeurs ne diffèrent pas (Mazzotti et al., 1997). On peut donc considérer qu'ils sont égaux à une constante dépendant de l'énantiomère considéré : $\Lambda_i = \Lambda$.

De ce fait, le bilan de matière (2.55a) peut s'écrire sous la forme modifiée :

$$\frac{\partial}{\partial t} [\epsilon^* c_i^j + (1 - \epsilon^*) q_i^j] + (1 - \epsilon_p) \frac{\partial}{\partial x} (m_j c_i^j - q_i^j - \Lambda c_i^j) = 0 \quad (2.77)$$

avec une pseudo-relation d'équilibre nouvelle faisant intervenir une concentration q' en phase solide définie par :

$$q_i^j = \frac{\Gamma_i K_i c_i^j}{n_c} \quad (2.78)$$

$$1 + \sum_{k=1} K_k c_k^j$$

En introduisant le rapport m'_j par :

$$m'_j = m_j - \Lambda \quad (2.79)$$

le bilan de matière peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{\partial}{\partial t} [\epsilon^* c_i^j + (1 - \epsilon^*) q_i^j] + (1 - \epsilon_p) \frac{\partial}{\partial x} (m'_j c_i^j - q_i^j) = 0 \quad (2.80)$$

Après ces différentes transformations, le problème est analogue au problème précédent sous la forme des isothermes de Langmuir de la section 2.5.4. Grâce au changement de variable (2.79), nous retrouvons des domaines similaires comme le montre la figure 2.18.

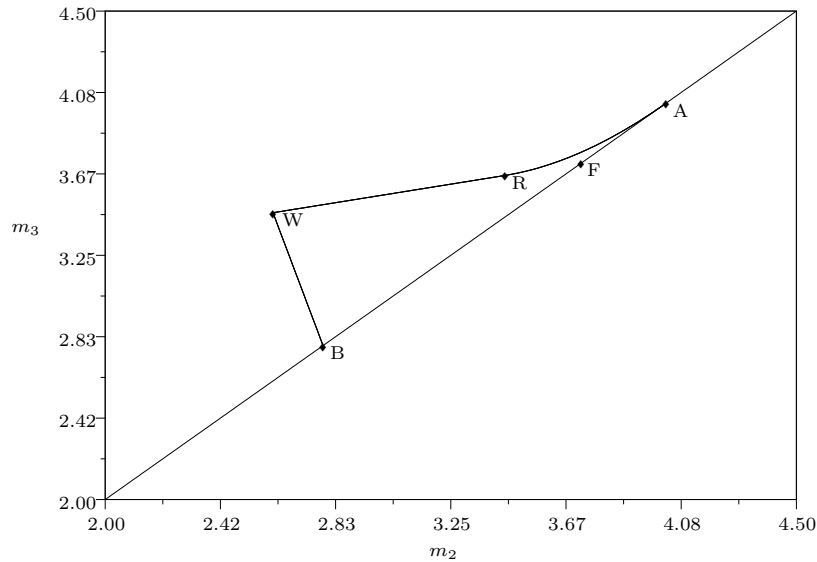


Figure 2.18 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents régimes de séparation dans le cas d’isotherme de Langmuir modifiée (paramètres tirés de Charton and Nicoud (1995))

2.5.6 Isothermes de type bi-Langmuir

Les isothermes de type bi-Langmuir (eq. 2.81), sont utilisées dans le cas de la séparation d’énantiomères. Elles constituent une extension des isothermes de Langmuir et de Langmuir modifiées (section 1.2.2). L’équation (1.7) devient sous forme adimensionnelle (Migliorini et al., 2000) :

$$\theta_i^j = \frac{\Gamma_i K_i \gamma_i^j}{1 + \sum_{k=1}^{n_c} K_k \gamma_k^j} + \frac{\Lambda_i \gamma_i^j}{1 + \sum_{k=1}^{n_c} L_k \gamma_k^j} \quad (2.81)$$

En utilisant la méthode généralisée développée par Migliorini et al. (1998, 2000), il est possible de déterminer le domaine de fonctionnement du procédé comme le montre la figure 2.19

2.5.7 Comparatif des domaines en fonction des isothermes

Comme cela a déjà été mentionné précédemment, les différents modèles d’isothermes (linéaire, stoechiométrique, Langmuir, Langmuir modifiées, bi-Langmuir) correspondent à une volonté de représentation approfondie des comportements et de respect des hypothèses

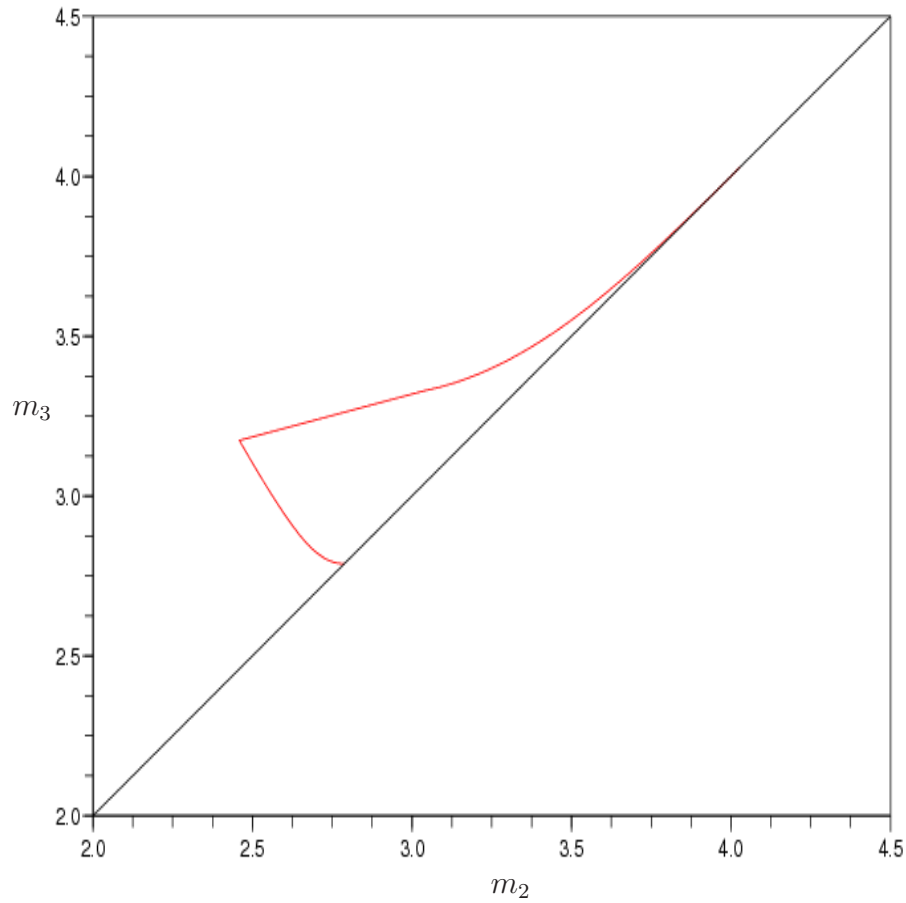


Figure 2.19 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents régimes de séparation dans le cas d’isothermes de bi-Langmuir (paramètres tirés de Gentilini et al. (1998)).

sur les phénomènes d’adsorption. La figure 2.20 représente dans un même plan (m_2, m_3) les domaines de séparation complète pour chacune de ces isothermes.

Comme l’expression de ces isothermes diffèrent du point de vue mathématique, des constantes de même nature auront des valeurs différentes.

On constate une déformation du domaine de fonctionnement optimal d’un lit mobile et que le respect de ce domaine entraîne l’introduction de contraintes non linéaires.

2.5.8 Régime de fonctionnement sous-optimal

Comme le domaine de fonctionnement optimal d’un lit mobile simulé peut être très réduit, nous pouvons chercher à élargir ce domaine en autorisant temporairement un

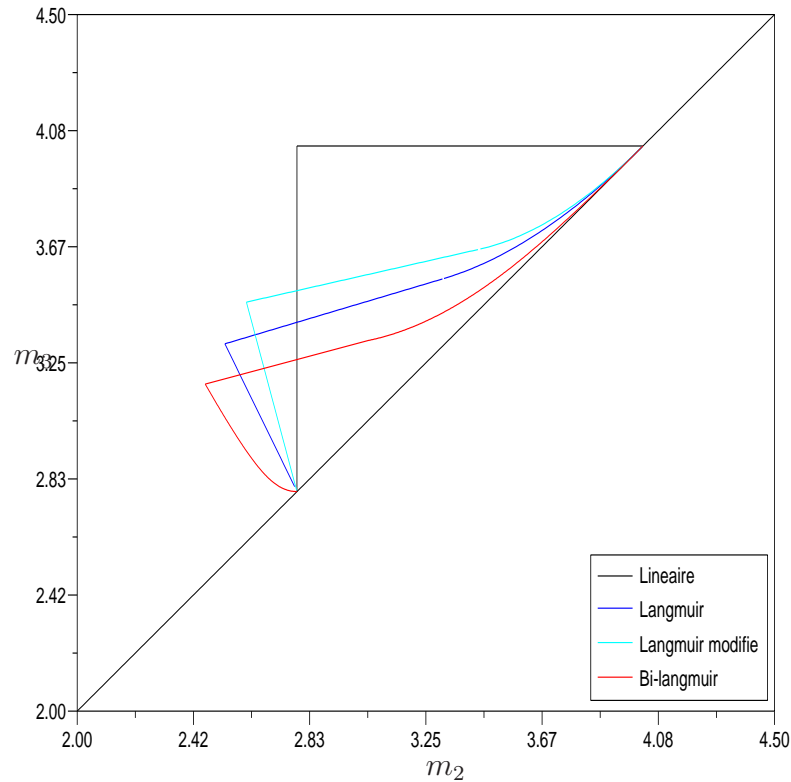


Figure 2.20 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents régimes de séparation dans le cas d’isothermes linéaires ($H_a = 4.028$, $H_b = 2.788$); isothermes de Langmuir ($H_a = 4.028$, $H_b = 2.788$, $K_a = 0.0503$, $K_b = 0.0348$, $c_a^F = 2.9$, $c_b^F = 2.9$); isothermes de Langmuir modifiées ($H_a = 3.028$, $H_b = 1.788$, $\Lambda = 0.5$, $K_a = 0.0503$, $K_b = 0.0348$, $c_a^F = 2.9$, $c_b^F = 2.9$); isothermes de bi-Langmuir ($H_a = 3.728$, $H_b = 2.688$, $K_a = 0.0466$, $K_b = 0.0336$, $\Lambda_a = 0.3$, $\Lambda_b = 0.1$, $L_a = 3$, $L_b = 1$ (paramètres tirés de Gentilini et al. (1998))

fonctionnement en séparation non complète. En prenant le cas d’une isotherme stoechiométrique, nous pouvons nous interroger sur l’étendue du domaine de fonctionnement en régime de séparation non complète (Storti et al., 1995).

Les définitions qui suivent et les notions de pureté et de productivité sont essentielles pour définir les sorties commandées, les critères à considérer, les contraintes dans le problème de commande.

Définitions

Rapport des débits volumiques On définit le rapport des débits volumiques μ_j dans la section j comme le rapport de la vitesse de fluide dans cette section sur la vitesse de solide équivalent :

$$\mu_j = \frac{v_j}{v_s} \quad (2.82)$$

Les hypothèses de travail sont :

- A est préférentiellement adsorbé par la phase solide
- La zone I est une zone de désorption de A (régénération de la phase solide)
- La zone IV est une zone d'adsorption de B (régénération de la phase liquide)

Productivités (ou taux de récupération)

$$\begin{aligned} R_E &= \frac{y_A^E / \mu_{ext}}{y_A^F / \mu_F} \\ R_R &= \frac{y_B^R / \mu_R}{y_B^F / \mu_F} \end{aligned} \quad (2.83)$$

où l'exposant E indique l'extrait, R le raffinat, F l'alimentation. L'utilisateur recherche un taux de récupération élevé de A à l'extrait et de B au raffinat.

Puretés Les puretés importantes sont définies de manière parallèle aux productivités.

$$\begin{aligned} P_E &= \frac{y_A^E}{y_A^E + y_B^E} \\ P_R &= \frac{y_B^R}{y_A^R + y_B^R} \end{aligned} \quad (2.84)$$

Puretés de l'alimentation De manière analogue aux puretés en A à l'extrait et en B au raffinat, on définit des "puretés" en A et B à l'alimentation.

$$\begin{aligned} P_{F,A} &= \frac{y_A^F}{y_A^F + y_B^F} \\ P_{F,B} &= \frac{y_B^F}{y_A^F + y_B^F} \end{aligned} \quad (2.85)$$

Bilan de matière global

Un bilan de matière global sur le lit mobile simulé nous fournit les équations suivantes sur les fractions molaires y de A et B :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\mu_F} y_A^F &= \frac{1}{\mu_E} y_A^E + \frac{1}{\mu_R} y_A^R \\ \frac{1}{\mu_F} y_B^F &= \frac{1}{\mu_E} y_B^E + \frac{1}{\mu_R} y_B^R \end{aligned} \quad (2.86)$$

où l'exposant F indique l'alimentation, R le raffinat, E l'extrait.

De l'hypothèse sur l'adsorption préférentielle de A par rapport à B, on déduit :

$$\begin{aligned} 0 &\leq y_B^E \leq y_A^E \\ 0 &\leq y_A^R \leq y_B^R \end{aligned} \quad (2.87)$$

Par définition des productivités (2.83) et compte-tenu du système (2.87) :

$$\begin{aligned} R_E = 0 &\Rightarrow y_A^E = 0 \Rightarrow y_B^E = 0 \\ R_R = 0 &\Rightarrow y_B^R = 0 \Rightarrow y_A^R = 0 \end{aligned} \quad (2.88)$$

Dans le cas où $R_E = 0$ et $R_R = 0$, les puretés seraient indéfinies. Nous définissons alors la pureté comme un paramètre caractéristique de la présence de polluant :

$$R_E = 0 \Rightarrow P_E = 1 \quad \text{et} : \quad R_R = 0 \Rightarrow P_R = 1 \quad (2.89)$$

En adoptant cette définition, nous étendons la définition de la pureté au système suivant :

$$\begin{aligned} P_E &= \begin{cases} 1 & \text{si } y_A^E = 0 \text{ et } y_B^E = 0 \\ \frac{y_A^E}{y_A^E + y_B^E} & \text{sinon} \end{cases} \\ P_R &= \begin{cases} 1 & \text{si } y_A^R = 0 \text{ et } y_B^R = 0 \\ \frac{y_B^R}{y_A^R + y_B^R} & \text{sinon} \end{cases} \end{aligned} \quad (2.90)$$

Lien entre puretés et productivités

La définition des puretés (2.90) ainsi que le bilan de matière global (2.86) définissent le système :

$$\begin{aligned} y_B^E &= y_A^E \frac{1 - P_E}{P_E} \\ y_A^R &= y_B^R \frac{1 - P_R}{P_R} \end{aligned} \quad (2.91)$$

On substitue les définitions des puretés (2.91) dans le bilan matière (2.86)

$$\begin{aligned} \frac{y_A^E}{\mu_E} &= \frac{y_A^F}{\mu_F} - \frac{y_B^R}{\mu_R} \frac{1 - P_R}{P_R} \\ \frac{y_B^R}{\mu_R} &= \frac{y_B^F}{\mu_F} - \frac{y_A^E}{\mu_E} \frac{1 - P_E}{P_E} \end{aligned} \quad (2.92)$$

On substitue les définitions des productivités (2.83) dans le système précédent (2.92) d'où l'on tire :

$$\begin{aligned} \frac{R_E y_A^F}{\mu_F} &= \frac{y_A^F}{\mu_F} - \frac{y_B^R}{\mu_R} \frac{1 - P_R}{P_R} \\ \frac{R_R y_B^F}{\mu_F} &= \frac{y_B^F}{\mu_F} - \frac{y_A^E}{\mu_E} \frac{1 - P_E}{P_E} \end{aligned} \quad (2.93)$$

On en déduit le système suivant :

$$\begin{aligned}
 R_E &= 1 - \frac{\mu_F y_B^R}{\mu_R y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R} = 1 - R_R \frac{y_B^F}{y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R} = \frac{1 - \frac{y_B^F}{y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R}}{1 - \frac{P_R}{1 - P_R} \frac{P_E}{1 - P_E}} \\
 R_R &= 1 - \frac{\mu_F y_A^E}{\mu_E y_B^F} \frac{1 - P_E}{P_E} = 1 - R_E \frac{y_A^F}{y_B^F} \frac{1 - P_E}{P_E} = \frac{1 - \frac{y_A^F}{y_B^F} \frac{1 - P_E}{P_E}}{1 - \frac{P_E}{1 - P_E} \frac{P_R}{1 - P_R}}
 \end{aligned} \tag{2.94}$$

Discussion sur les puretés et productivités acceptables

Par définition des puretés et productivités, nous avons les contraintes suivantes :

$$\begin{aligned}
 0 \leq R_E \leq 1 \quad \text{et} : \quad 0 \leq R_R \leq 1 \\
 0 \leq P_E \leq 1 \quad \text{et} : \quad 0 \leq P_R \leq 1
 \end{aligned} \tag{2.95}$$

Productivité à l'extrait Puisque la productivité à l'extrait est positive, le numérateur et le dénominateur de l'équation (2.94) sont du même signe.

Supposons que ce numérateur soit positif :

$$1 - \frac{y_B^F}{y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R} > 0 \quad \Rightarrow \quad P_R > P_{F,B} \tag{2.96}$$

Afin de respecter les contraintes (2.95), il faut également que ce dénominateur soit supérieur au numérateur (ce qui assure également la positivité du dénominateur) :

$$1 - \frac{1 - P_R}{P_R} \frac{1 - P_E}{P_E} > 1 - \frac{y_B^F}{y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R} > 0 \quad \Rightarrow \quad P_E > P_{F,A} \tag{2.97}$$

Supposons que ce numérateur soit négatif :

$$1 - \frac{y_B^F}{y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R} < 0 \quad \Rightarrow \quad P_R < P_{F,B} \tag{2.98}$$

Toujours pour respecter les contraintes (2.95), il faut également que le dénominateur soit inférieur au numérateur (ce qui assure également la négativité du dénominateur et donc la positivité de la productivité R_E) :

$$1 - \frac{1 - P_R}{P_R} \frac{1 - P_E}{P_E} < 1 - \frac{y_B^F}{y_A^F} \frac{1 - P_R}{P_R} < 0 \quad \Rightarrow \quad P_E < P_{F,A} \tag{2.99}$$

En supposant $P_E < P_{F,A}$ et $P_R < P_{F,B}$, cela signifie que majoritairement B sort à l'extrait et A sort majoritairement au raffinat ; cela signifie donc que le procédé de séparation

binaire fonctionne à l'envers, les hypothèses de travail ne sont plus respectées, ce cas de figure n'est donc pas possible.

En respectant les hypothèses de travail décrites précédemment, nous concluons donc sur le domaine d'existence des productivités et puretés respectant les contraintes suivantes :

$$\begin{aligned} 0 \leq R_E \leq 1 & \quad \text{et} : & \quad 0 \leq R_R \leq 1 \\ P_{F,A} \leq P_E \leq 1 & \quad \text{et} : & \quad P_{F,B} \leq P_R \leq 1 \end{aligned} \quad (2.100)$$

Bilans de matière aux sorties

Entrée de la zone II Le bilan de matière sur le composé A à l'entrée de la zone II du procédé (après la sortie à l'extrait) s'écrit (Storti et al., 1993) : Dans l'équation (27) de Storti93

$$y_A^E - y_A^2(1 - \epsilon\mu_2) = \mu_2(\epsilon y_A^{ES} + (1 - \epsilon)\sigma\theta_A^{ES}) - \mu_2(1 - \epsilon)\sigma\theta_A^2 \quad (2.101)$$

$$y_A^E - y_A^2(1 - \epsilon\mu_2) = \mu_2 \frac{y_A^E}{\mu_1} - \mu_2(1 - \epsilon)\sigma\theta_A^2 \quad (2.102)$$

$$y_A^E \left(1 - \frac{\mu_2}{\mu_1}\right) - y_A^2(1 - \epsilon\mu_2) = -\mu_2(1 - \epsilon)\sigma\theta_A^2 \quad (2.103)$$

$$-\frac{y_A^E \mu_F \left(1 - \frac{\mu_2}{\mu_1}\right) \frac{1}{\mu_F}}{\mu_2(1 - \epsilon)\sigma} + \frac{y_A^2(1 - \epsilon\mu_2)}{\mu_2(1 - \epsilon)\sigma} = \theta_A^2 \quad (2.104)$$

$$y_A^2 \frac{\frac{1}{\mu_2} - \epsilon}{(1 - \epsilon)\sigma} = \theta_A^2 + y_A^E \mu_F \frac{\left(1 - \frac{\mu_2}{\mu_1}\right) \frac{1}{\mu_F}}{\mu_2(1 - \epsilon)\sigma} \quad (2.105)$$

$$y_A^2 m_2 = \theta_A^2 + y_A^E \mu_F \frac{\left(1 - \frac{\mu_2}{\mu_1}\right) \frac{1}{\mu_F}}{\mu_2(1 - \epsilon)\sigma} \sigma (1 - \epsilon) (m_3 - m_2) \quad (2.106)$$

$$y_A^2 m_2 = \theta_A^2 + y_A^E \mu_F \left(\frac{1}{\mu_2} - \frac{1}{\mu_1} \right) (m_3 - m_2) \quad (2.107)$$

$$y_A^2 m_2 = \theta_A^2 - \frac{y_A^E \mu_F}{\mu_E} (m_3 - m_2) \quad (2.108)$$

Sortie de la zone III Le bilan de matière sur le composé B à la sortie de la zone III du procédé (avant la sortie au raffinat) s'écrit (Storti et al., 1993) :

$$y_B^3 m_3 = \theta_B^3 - \frac{y_B^R \mu_F}{\mu_R} (m_2 - m_3) \quad (2.109)$$

Équation des bornes de fonctionnement

Nous pouvons ainsi représenter le domaine de fonctionnement pour un couple de productivité ou un couple de pureté donné.

Domaine de fonctionnement à pureté donnée La figure 2.21 montre le domaine de fonctionnement à pureté donnée. Les frontières entre les secteurs II et V et les secteurs IV et V sont issues des équations (2.108) et (2.109) où l'on substitue la deuxième partie du système (2.94).

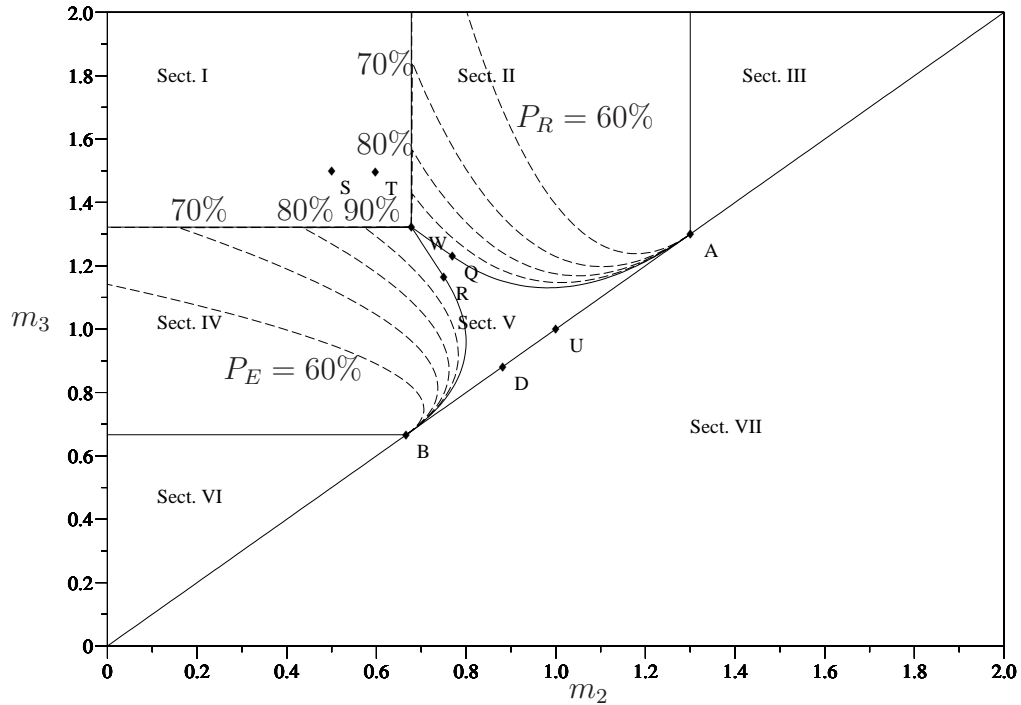


Figure 2.21 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents domaines de séparation à pureté donnée : $K_1 = 1.95$; $K_2 = 1$; $K_3 = 1.5$; $y_A^F = 0.5$; $y_B^F = 0.5$

Domaine de fonctionnement à productivité donnée La figure 2.22 montre le domaine de fonctionnement à productivité donnée. Les frontières entre les secteurs II et V et les secteurs IV et V sont données par l'équation (2.109) où l'on substitue la première partie de l'équation (2.94).

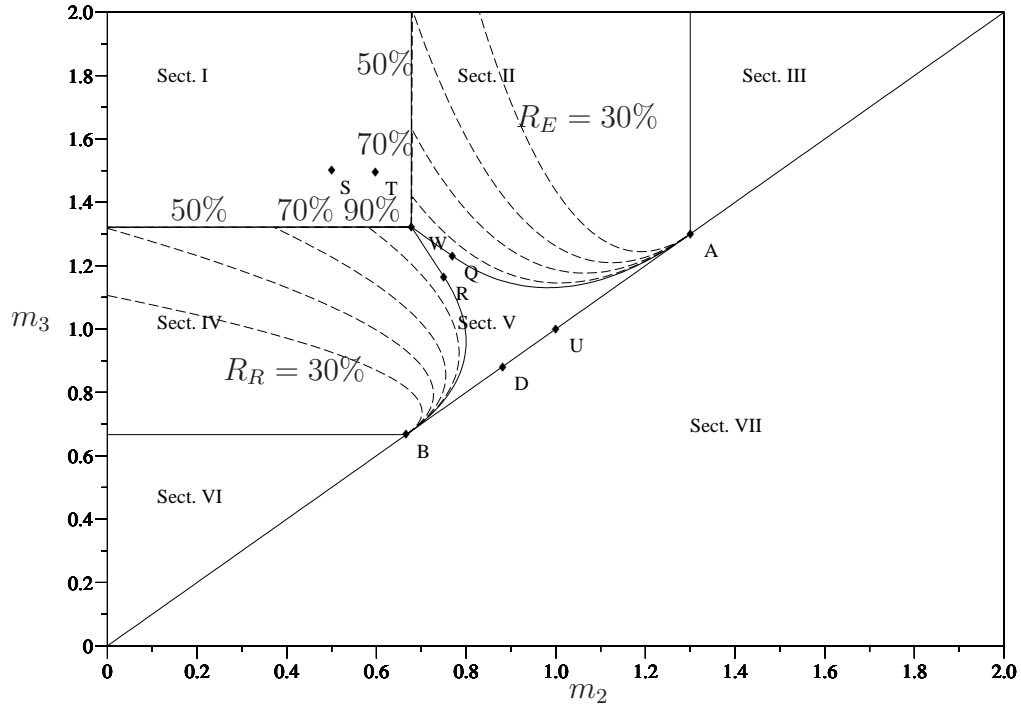


Figure 2.22 – Régions du plan (m_2, m_3) représentant les différents domaines de séparation à productivité donnée : $K_1 = 1.95$; $K_2 = 1$; $K_3 = 1.5$; $y_A^F = 0.5$; $y_B^F = 0.5$

2.6 Simulation du Lit Mobile Simulé en boucle ouverte

Dans cette section, nous allons présenter les caractéristiques principales concernant le fonctionnement du lit mobile simulé pour un point opératoire donné.

Les paramètres de simulation utilisés pour cette partie sont fournis dans le tableau 2.1. Il faut cependant noter que la période de commutation t_c a été déterminée selon l'équation (2.27) et est égale à $t_c = 30s$

Pour réaliser la simulation du Lit Mobile Simulé soumis à l'équivalence du modèle de mélangeurs en cascade et le modèle de dispersion axiale, l'équation (2.26) fournit un nombre arrondi de mélangeurs à l'état stationnaire cyclique égale à 17 pour la zone I, 11 pour la zone II, 11 pour la zone III et 8 pour la zone IV. Nous avons donc arrondi le nombre de mélangeurs par colonne à 20. Lors de cette simulation du Lit Mobile Simulé, qui comporte donc un total de 160 mélangeurs, on fait l'hypothèse que l'entrée d'éluant se fait entre les mélangeurs 160 et 1, la sortie d'extrait entre les mélangeurs 40 et 41, l'entrée d'alimentation entre les mélangeurs 80 et 81, la sortie du raffinat entre les mélangeurs 120

Paramètres du système	
Nombre de composés à séparer	: 2
Nombre de colonnes par section	: 2
Nombre de mélangeurs par colonne	: 20
Volume d'une colonne	: 0,001(m ³)
Porosité du lit ϵ	: 0,4
Paramètres opératoires	
Débit d'alimentation	: 5,62 10 ⁻⁶ (m ³ /s)
Débit de solvant	: 106,44 10 ⁻⁶ (m ³ /s)
Débit de recyclage	: 103,56 10 ⁻⁶ (m ³ /s)
Débit d'extrait	: 75,14 10 ⁻⁶ (m ³ /s)
Débit de raffinat	: 36,92 10 ⁻⁶ (m ³ /s)
Débit de solide	: 20,00 10 ⁻⁶ (m ³ /s)
Concentration en A dans l'alimentation	: 0,5 (kg/m ³)
Concentration en B dans l'alimentation	: 0,5 (kg/m ³)
Constante de Langmuir K_1 pour A	: 1,5 (m ³ /kg)
Constante de Langmuir K_2 pour B	: 2,0 (m ³ /kg)
Constante de Langmuir q_1^{max} pour A	: 5
Constante de Langmuir q_2^{max} pour B	: 5
Durée de simulation	: 7200 (s)

Table 2.1 – Paramètres de simulation du Lit Mobile Simulé.

et 121.

2.6.1 Évolution temporelle des profils de concentration

L'évolution des profils de concentrations durant un intervalle $[t_c^k, t_c^{k+1}]$ entre deux instants successifs de commutation permet de mettre en évidence que la séparation se déroule de manière classique comme il en serait dans une colonne chromatographique simple classique.

On peut noter sur cette figure (2.23) un pic de concentration au niveau du mélangeur 81, ce pic est dû à l'entrée d'alimentation. On peut noter également que le déplacement du front de concentration se fait dans la direction d'écoulement de la phase liquide.

2.6.2 Évolution temporelle des puretés sur plusieurs périodes de commutation

Le lit mobile simulé ne présente pas de régime permanent à cause de la permutation des vannes qui influence les positions des courants entrants et sortants. Au bout d'un certain nombre de périodes de commutation, il est possible de mettre en évidence un comportement cyclique. De ce fait, la caractérisation des concentrations dans les courants

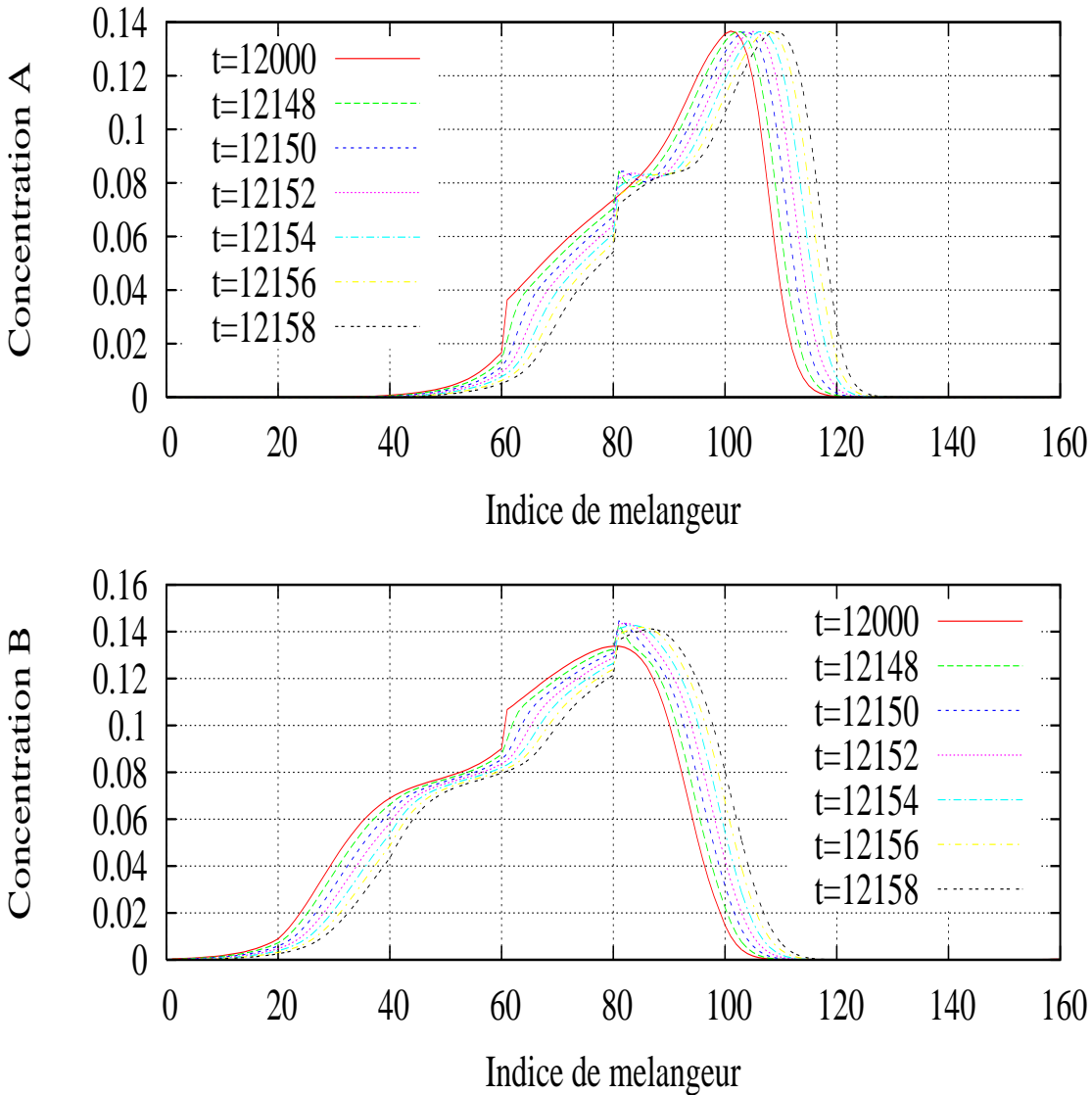


Figure 2.23 – Déplacement des fronts de concentration au cours d’une période de commutation [12000, 12030].

de sortie ne peut se faire par les valeurs instantanées, mais par des valeurs moyennes prises sur une période de commutation.

La figure (2.24) représente les puretés instantanées sur 3 périodes de commutation sur l’intervalle [11970, 12060]. On peut clairement noter sur cette courbe d’une part l’aspect périodique du procédé. De plus même si la grande performance de la séparation est évidente (numériquement la pureté maximale au raffinat obtenue est de 99.998% et la pureté maximale à l’extrait obtenue est de 99.834%), on peut noter cependant lors de la commutation une chute brutale des puretés.

D’après les concentrations instantanées de composés, il est possible de calculer les

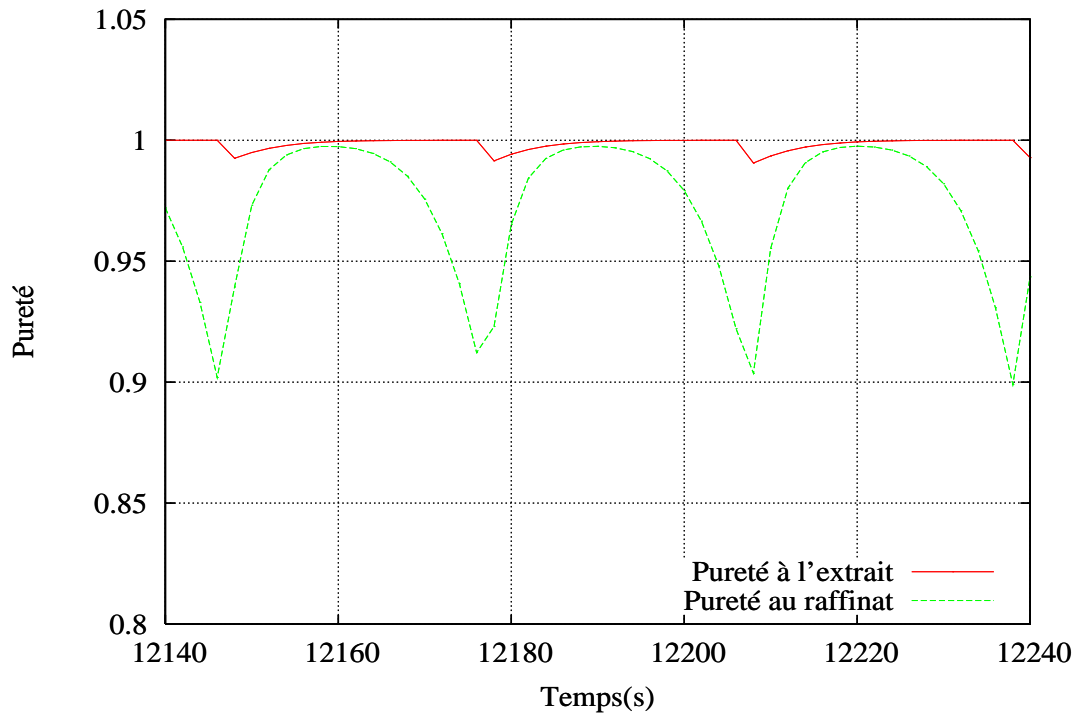


Figure 2.24 – Évolution dans le temps des puretés instantanées à l'extrait et au raffinat.

concentrations moyennes sur une période de commutation et ensuite de calculer la pureté moyenne. Pour le raffinat, on obtient :

$$\begin{aligned}
 \overline{c_1^{raf}} &= \int_{t_c^k}^{t_c^{k+1}} c_1^{raf}(t) dt \\
 \overline{c_2^{raf}} &= \int_{t_c^k}^{t_c^{k+1}} c_2^{raf}(t) dt \\
 \overline{Y_{raf}} &= \frac{\overline{c_1^{raf}}}{\overline{c_1^{raf}} + \overline{c_2^{raf}}}
 \end{aligned} \tag{2.110}$$

Il en serait de même au niveau de l'extrait.

2.6.3 Comparaison du Lit Mobile Vrai et du Lit Mobile Simulé

Comme cela a été décrit dans la section 2.3, il est possible de définir un lit mobile vrai équivalent à un lit mobile simulé donné. Cette partie montre la différence qui existe entre les deux approches pour des conditions opératoires équivalentes.

La figure 2.25 compare les profils internes de concentration d'un lit mobile vrai en régime permanent et d'un lit mobile simulé en régime stationnaire cyclique. En raison du fonctionnement discontinu du procédé de lit mobile simulé, il faut préciser que les profils

de concentration du lit mobile simulé sont tracés à la fin d'une période de commutation, juste avant l'instant de commutation.

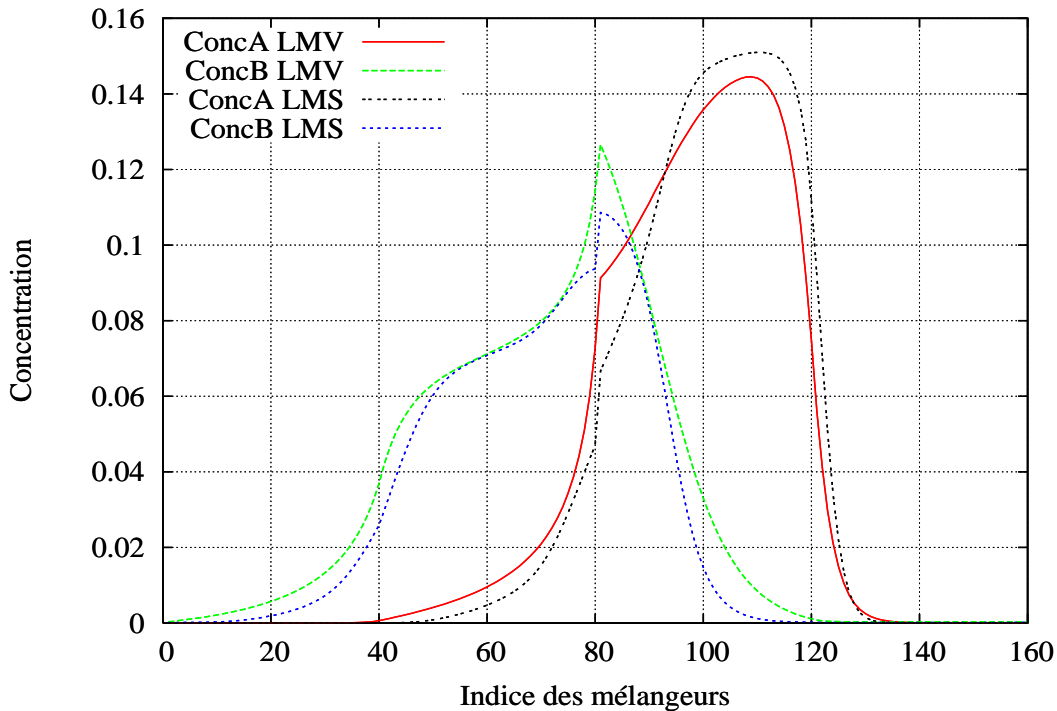


Figure 2.25 – Profils des concentrations internes d'un lit mobile vrai et d'un lit mobile simulé soumis à des caractéristiques identiques.

La figure 2.25 montre un bon accord entre le procédé de lit mobile simulé et le procédé de lit mobile vrai, notamment aux sorties à l'extrait (mélangeur 40) et au raffinat (mélangeur 120) où les concentrations des deux composés sont graphiquement très proches.

Numériquement, le tableau 2.2 fournit les concentrations et puretés aux sorties au raffinat et à l'extrait, instantanées pour le lit mobile vrai, moyennes pour le lit mobile simulé. Ce tableau montre que les valeurs numériques sont proches, toutefois le lit mobile simulé présente une meilleure efficacité que le lit mobile vrai à la fois en termes de concentration et de pureté.

2.6.4 Mise en évidence des non-linéarités

Le lit mobile vrai et le lit mobile simulé est tous deux fortement non linéaires. Cette particularité aura une grande influence du point de vue de la commande. Une étude en boucle ouverte s'impose donc pour mettre en évidence l'importance et le rôle des non linéarités. Dans le cadre de la commande, des entrées manipulées sont définies. Les entrées concernées sont respectivement (dans l'ordre de u_1 à u_4) : débits d'éluant, d'extrait, de recyclage, équivalent de solide. Ce choix des entrées manipulées et des sorties commandées

		LMV	LMS
Concentration à l'extrait	Concentration en A	$0.60 \cdot 10^{-3}$	$0.01 \cdot 10^{-3}$
	Concentration en B	$36.86 \cdot 10^{-3}$	$30.16 \cdot 10^{-3}$
Concentration au raffinat	Concentration en A	$74.89 \cdot 10^{-3}$	$88.90 \cdot 10^{-3}$
	Concentration en B	$1.09 \cdot 10^{-3}$	$0.16 \cdot 10^{-3}$
Pureté	A l'extrait	98.40%	99.97%
	Au raffinat	98.57%	99.79%

Table 2.2 – Valeurs numériques des concentrations et puretés aux sorties à l'extrait et raffinat pour un lit mobile vrai en régime permanent et un lit mobile simulé en régime stationnaire cyclique.

du problème de commande est reporté dans le tableau 2.3. Afin de mettre en évidence les non linéarités du le lit mobile simulé, le procédé est soumis à des échelons d'amplitude variable pour chacune des entrées précitées et les sorties sont enregistrées.

Entrée manipulée u_i	Sortie commandée y_j
débit d'éluant	pureté à l'extrait
débit d'extrait	pureté au raffinat
débit de recyclage	rendement à l'extrait
débit équivalent de solide	rendement au raffinat

Table 2.3 – Choix effectif des entrées et sorties du problème de commande

Un système linéaire montrerait une proportionnalité entre la variation de la sortie et l'amplitude de l'échelon d'entrée ainsi qu'une constante de temps identique par couple entrée-sortie.

Gain asymptotique

Les figures 2.26 à 2.33 montrent pour les entrées successives u_1 à u_4 et pour chacun des composés A et B la variation du gain asymptotique :

$$K_\infty = h_{step}^\infty = \frac{\Delta y_\infty}{\Delta u} \quad (2.111)$$

en fonction de l'amplitude de l'échelon d'entrée. Si le procédé était linéaire, le gain asymptotique serait indépendant de l'amplitude de l'échelon d'entrée. On peut constater que ce gain varie fortement et peut même changer de signe, démontrant ainsi les non linéarités du procédé. Ces non linéarités du système imposent donc d'utiliser des méthodes de commande plus performantes que les méthodes habituelles.

Réponses en boucle ouverte

Pour la commande prédictive, la réponse en boucle ouverte des sorties du système à des échelons ou impulsions des entrées joue un rôle très important. En effet, les réponses en boucle ouverte constituent le modèle (linéaire ou non linéaire) du procédé par l'information qu'elles contiennent.

Les figures 2.34 à 2.41 montrent qualitativement que le gain et la constante de temps de la réponse en boucle ouverte dépendent de l'amplitude de l'échelon appliqué. On peut constater sur la figure 2.41 que la réponse est positive ou négative selon l'amplitude de l'échelon d'entrée, ce qui est confirmé par le fait que le gain asymptotique de la figure 2.33 change de signe.

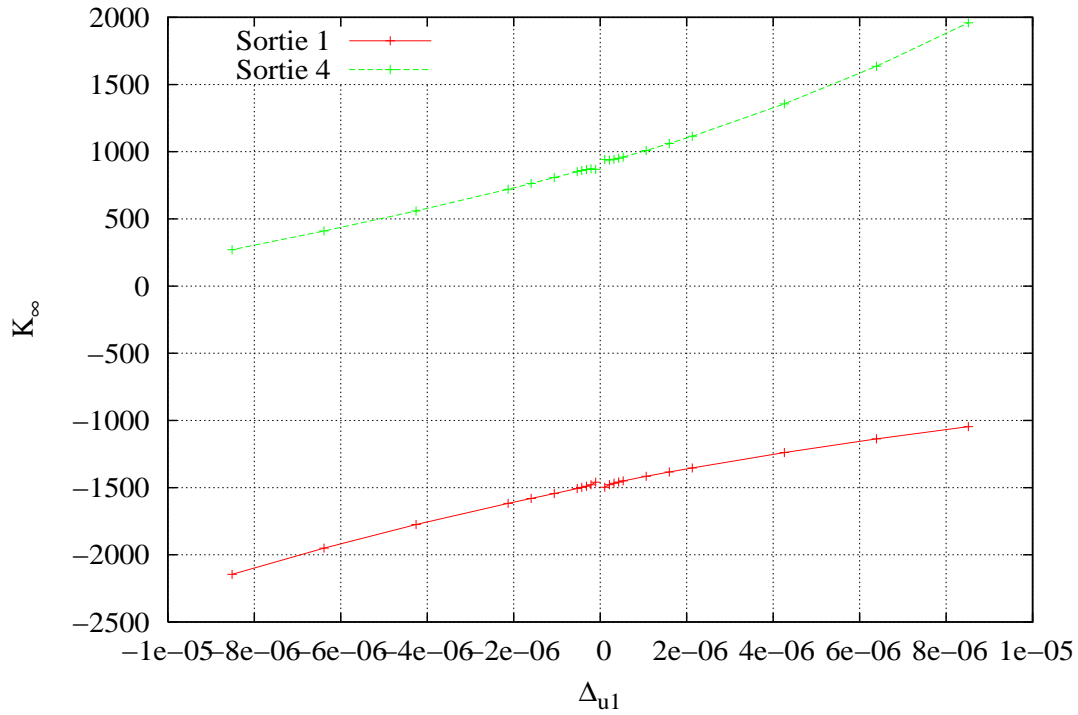


Figure 2.26 – Gain asymptotique pour l’influence de l’entrée u_1 sur la pureté à l’extract du composé A en fonction de l’amplitude de l’échelon d’entrée.

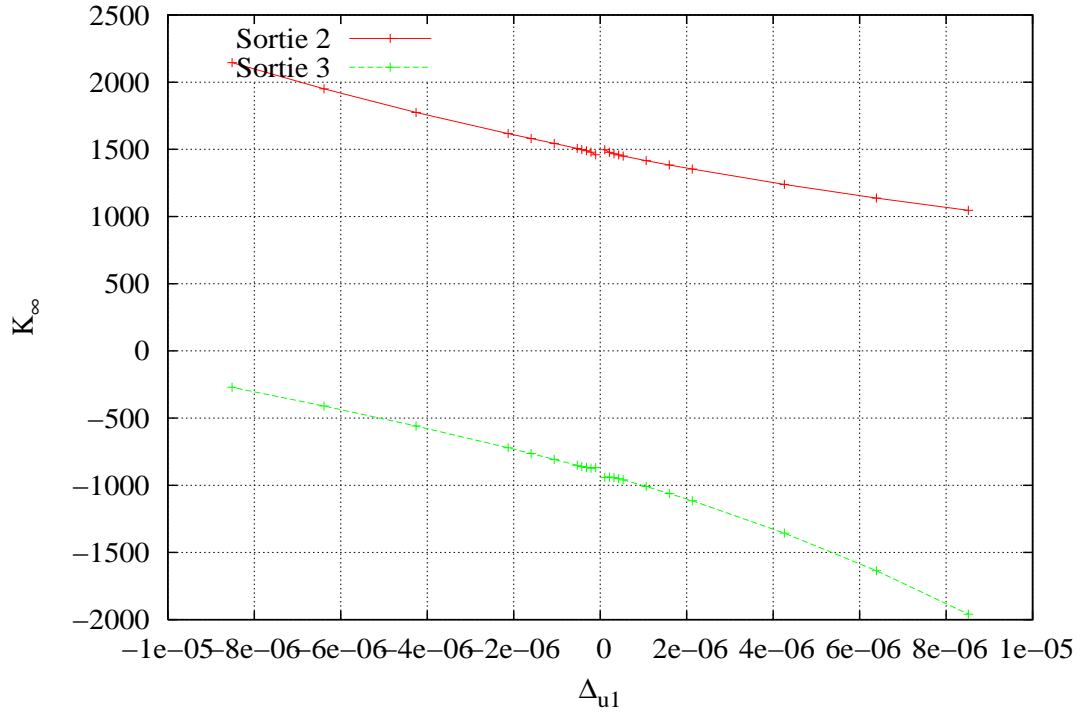


Figure 2.27 – Gain asymptotique pour l’influence de l’entrée u_1 sur la pureté au raffinat du composé B en fonction de l’amplitude de l’échelon d’entrée.

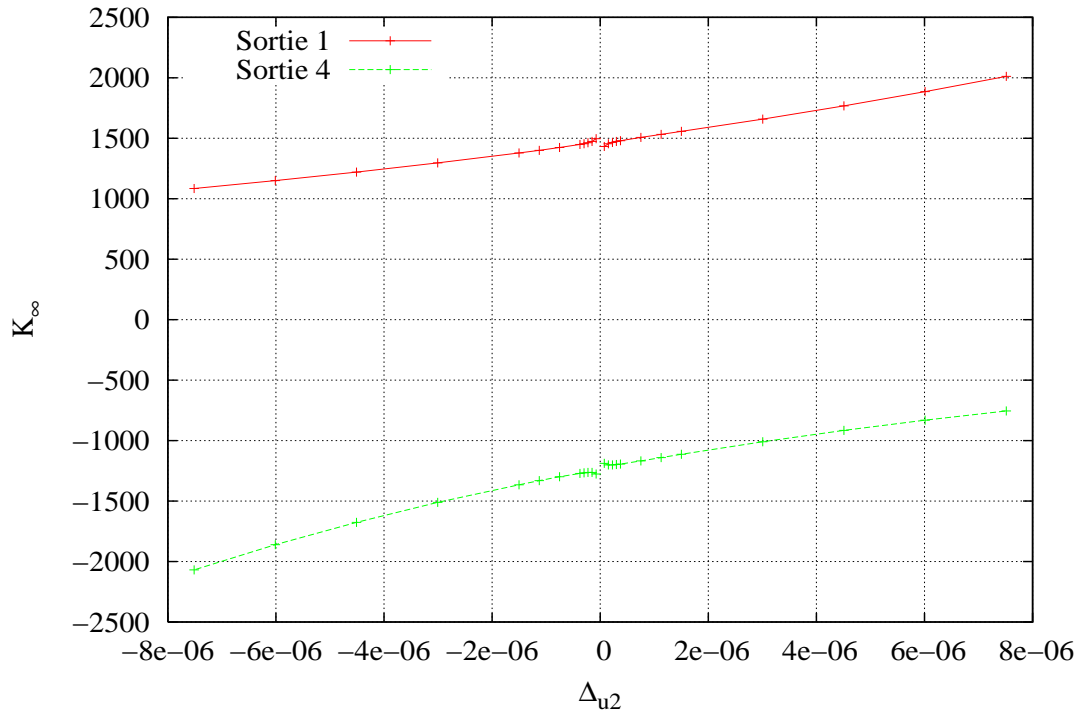


Figure 2.28 – Gain asymptotique pour l’influence de l’entrée u_2 sur la pureté à l’extrait du composé A en fonction de l’amplitude de l’échelon d’entrée.

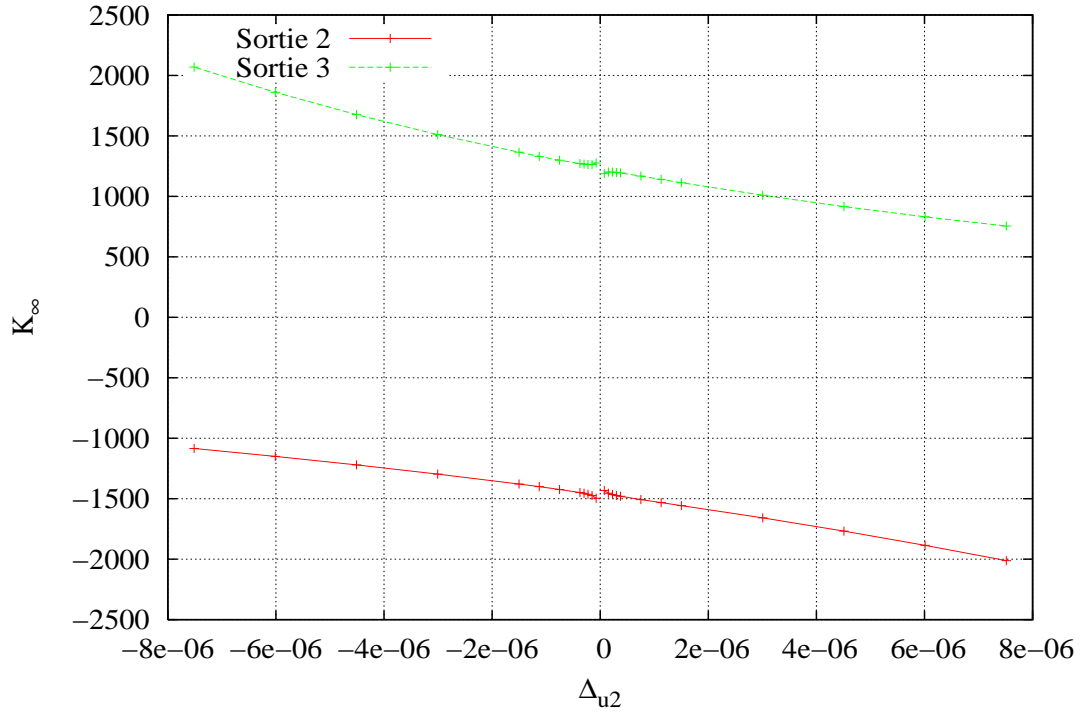


Figure 2.29 – Gain asymptotique pour l’influence de l’entrée u_2 sur la pureté au raffinat du composé B en fonction de l’amplitude de l’échelon d’entrée.

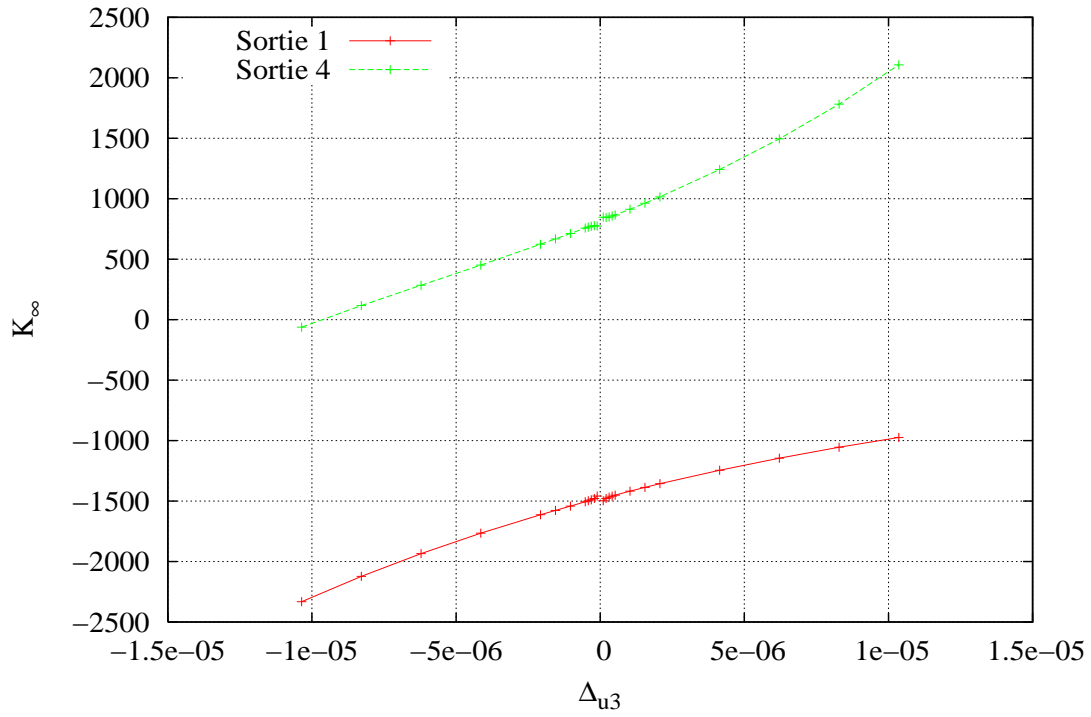


Figure 2.30 – Gain asymptotique pour l'influence de l'entrée u_3 sur la pureté à l'extrait du composé A en fonction de l'amplitude de l'échelon d'entrée.

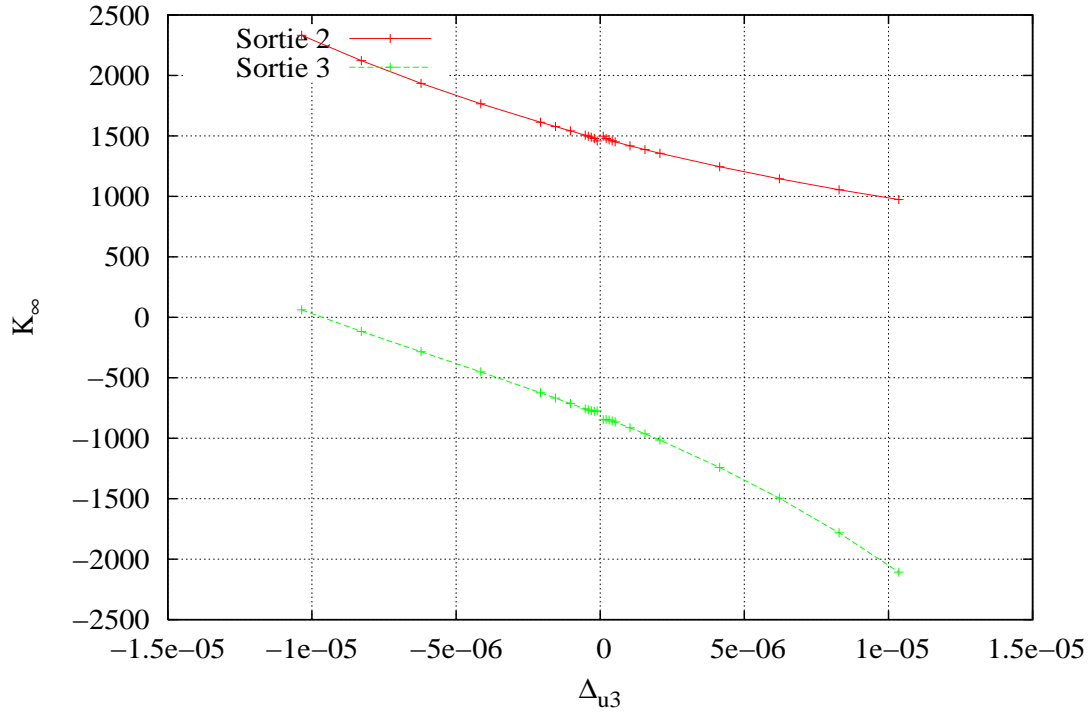


Figure 2.31 – Gain asymptotique pour l'influence de l'entrée u_3 sur la pureté au raffinat du composé B en fonction de l'amplitude de l'échelon d'entrée.

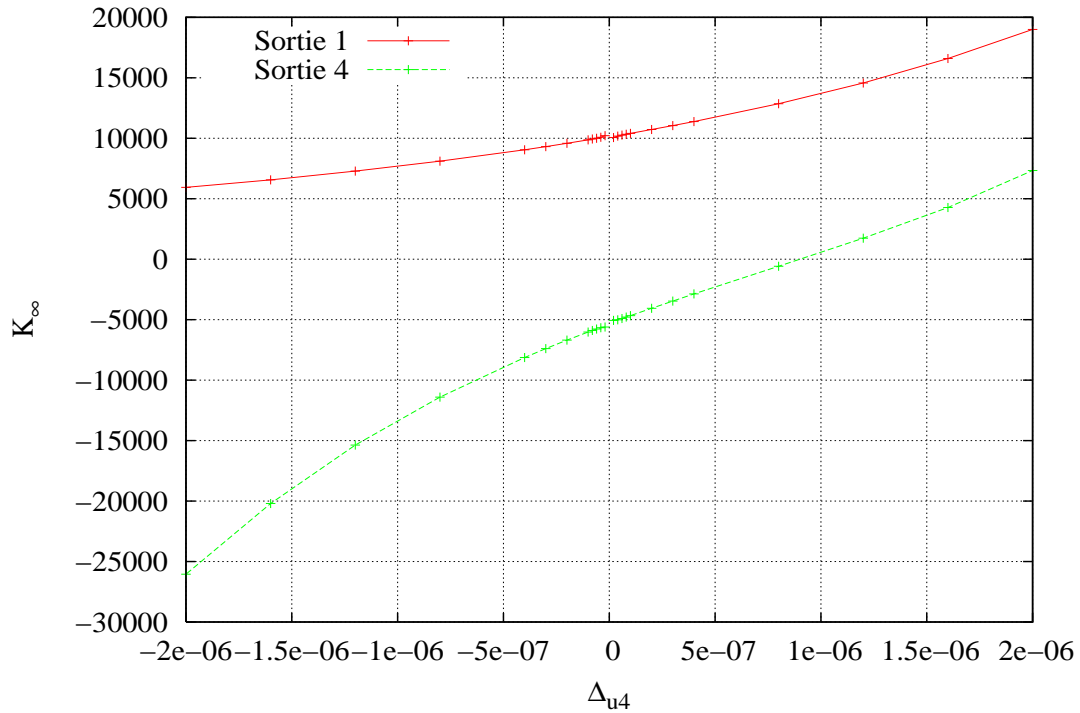


Figure 2.32 – Gain asymptotique pour l'influence de l'entrée u_4 sur la pureté à l'extrait du composé A en fonction de l'amplitude de l'échelon d'entrée.

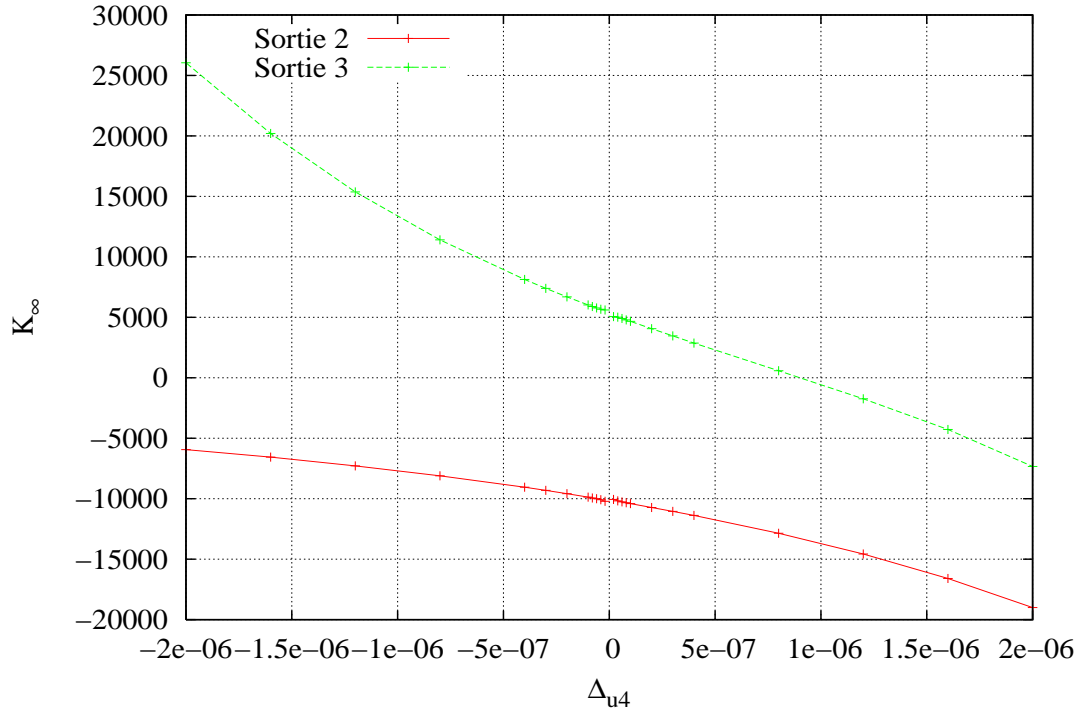


Figure 2.33 – Gain asymptotique pour l'influence de l'entrée u_4 sur la pureté au raffinat du composé B en fonction de l'amplitude de l'échelon d'entrée.

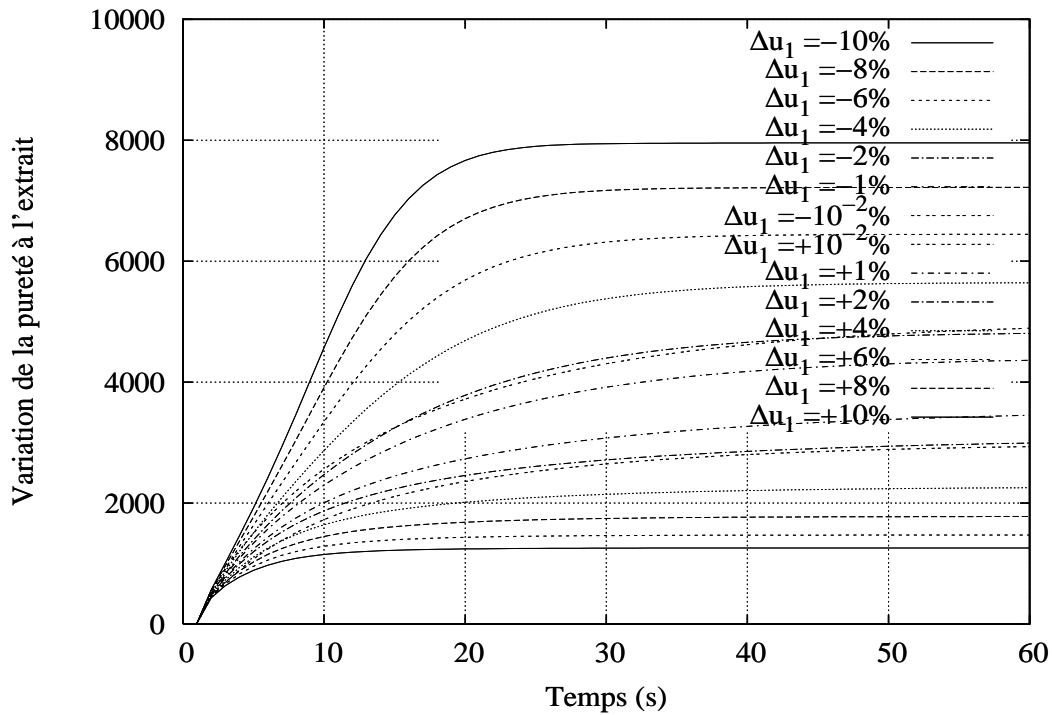


Figure 2.34 – Réponse en boucle ouverte de la pureté à l'extract du composé A pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit de solvant (entrée u_1)

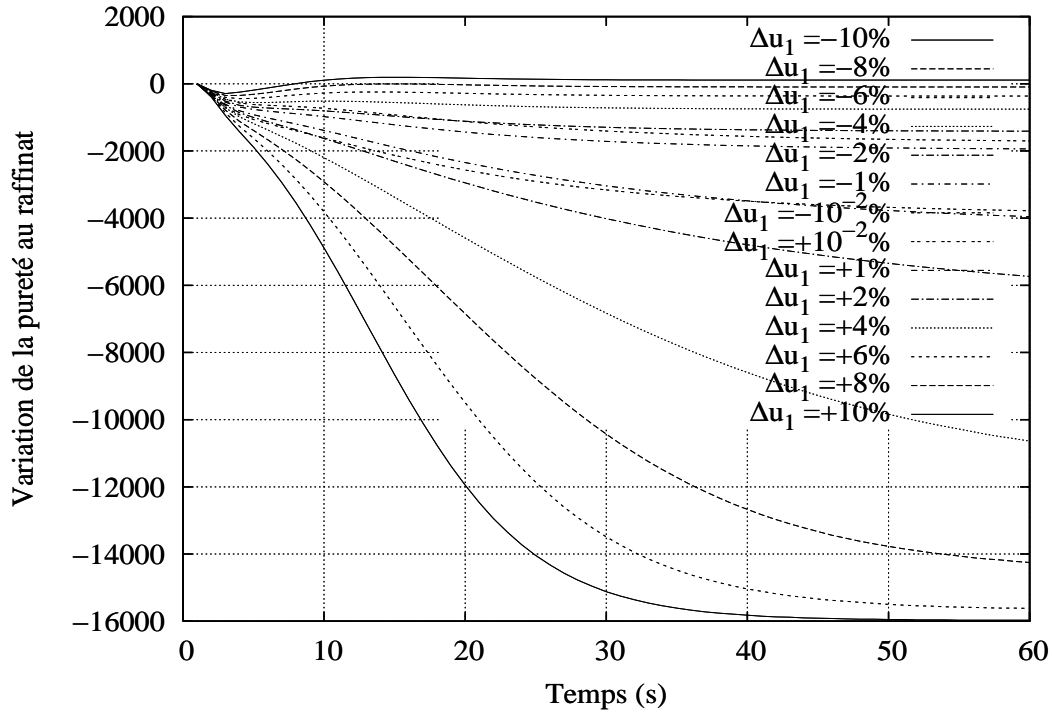


Figure 2.35 – Réponse en boucle ouverte de la pureté au raffinat du composé B pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit de solvant (entrée u_1)

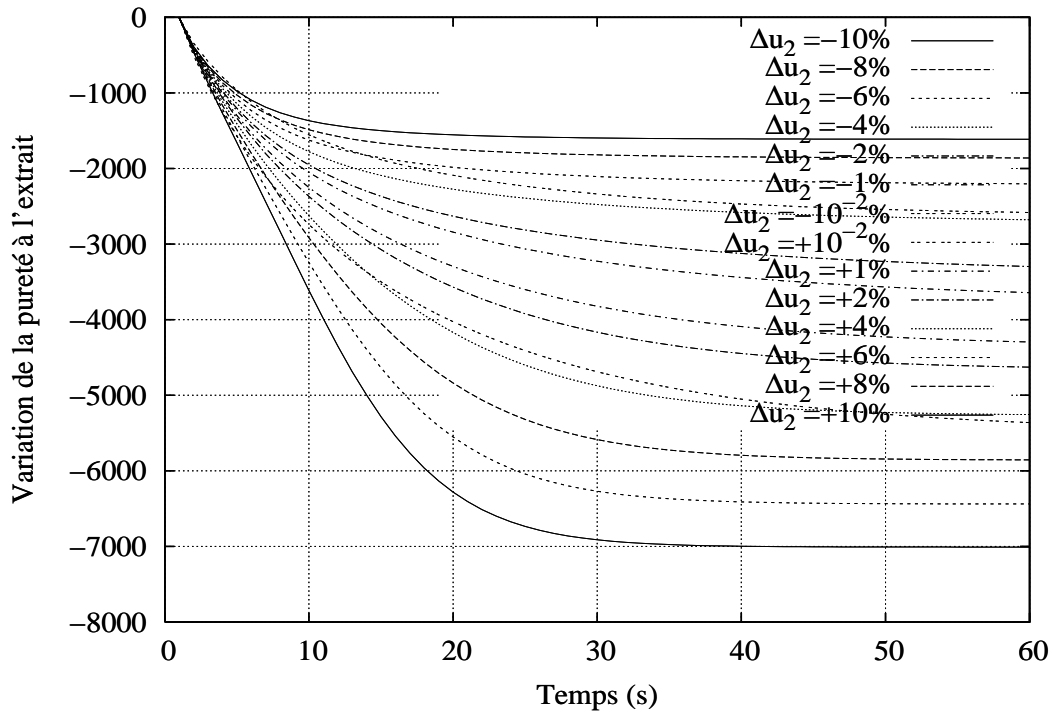


Figure 2.36 – Réponse en boucle ouverte de la pureté à l'extract du composé A pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit à l'extract (entrée u_2)

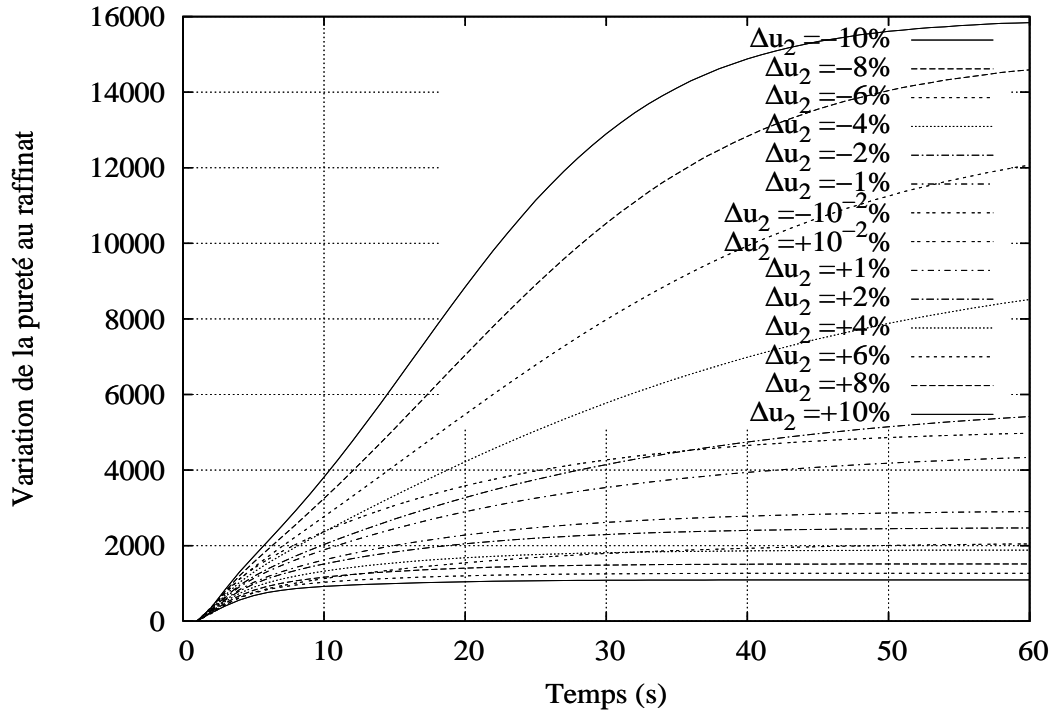


Figure 2.37 – Réponse en boucle ouverte de la pureté au raffinat du composé B pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit à l'extract (entrée u_2)

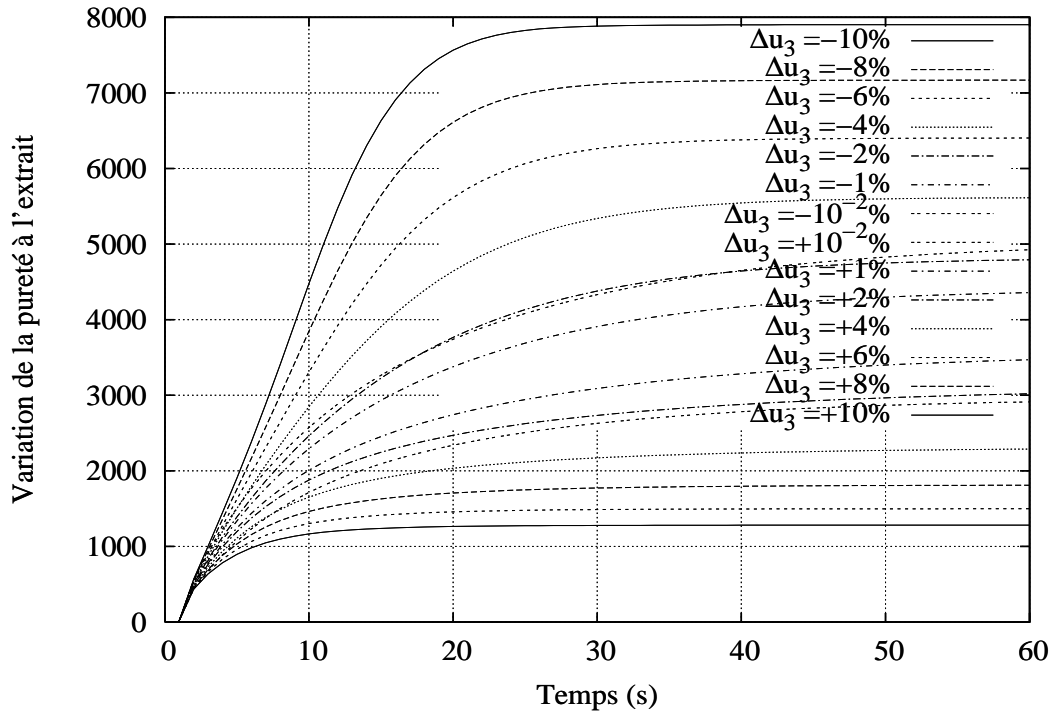


Figure 2.38 – Réponse en boucle ouverte de la pureté à l'extract du composé A pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit de recyclage (entrée u_3)

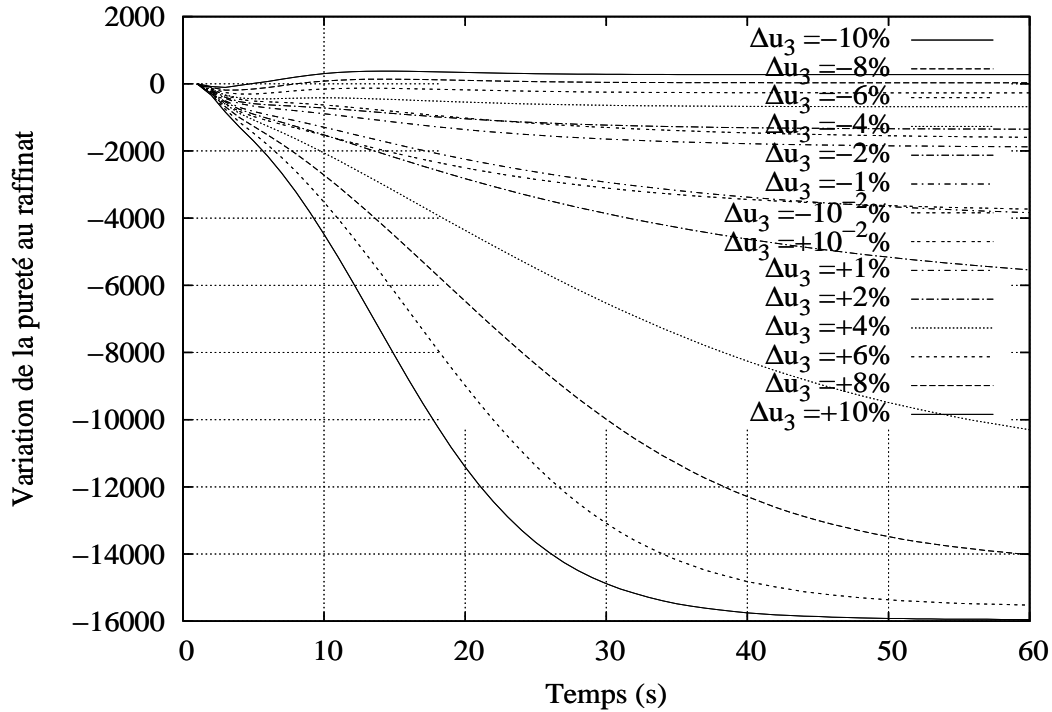


Figure 2.39 – Réponse en boucle ouverte de la pureté au raffinat du composé B pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit de recyclage (entrée u_3)

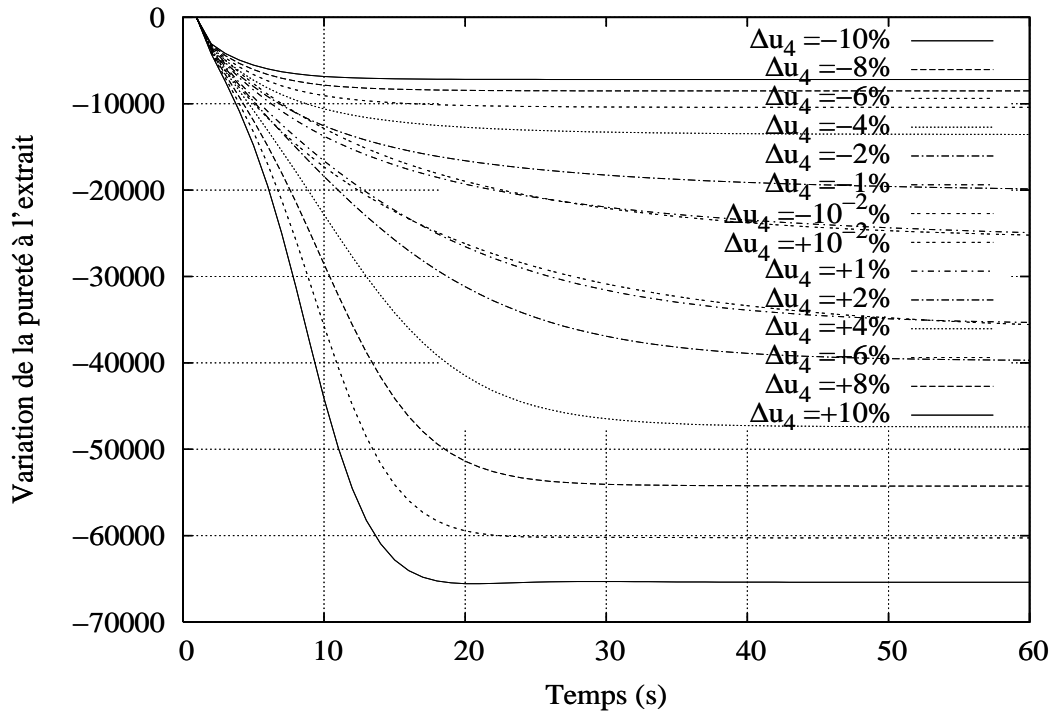


Figure 2.40 – Réponse en boucle ouverte de la pureté à l'extract du composé A pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit équivalent de solide (entrée u_4)

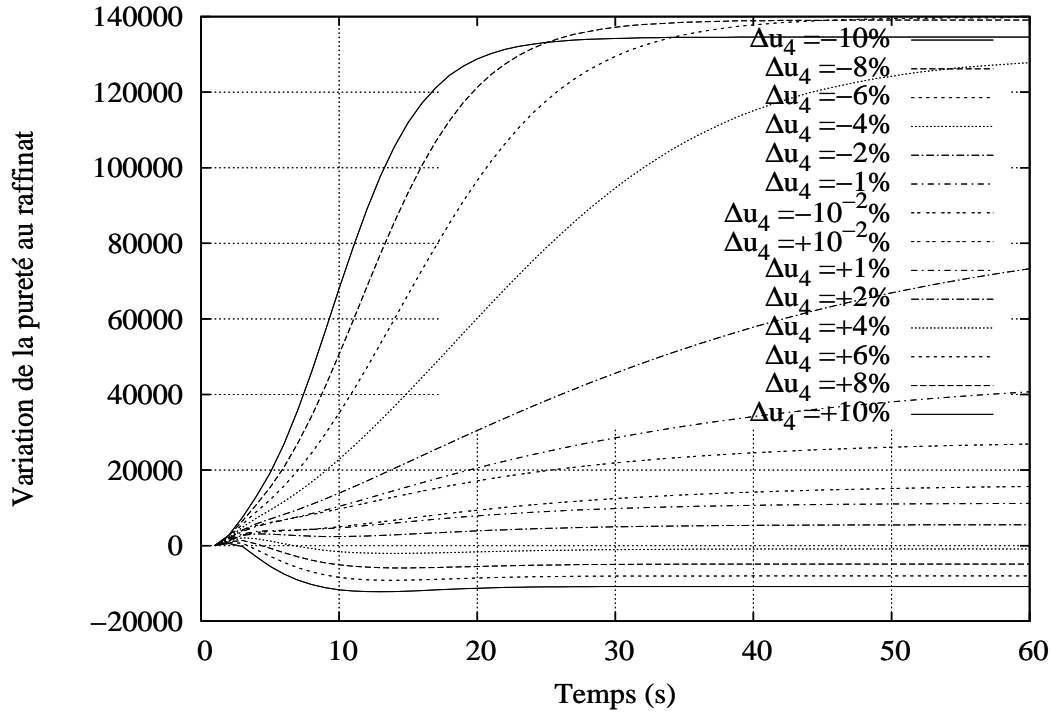


Figure 2.41 – Réponse en boucle ouverte de la pureté au raffinat du composé B pour différentes amplitudes d'un échelon sur le débit équivalent de solide (entrée u_4)

Chapitre 3

Commande Prédicative basée sur le Modèle

3.1 Généralités

La Commande Prédicative basée sur le Modèle (Model Predictive Control : MPC) est fréquemment utilisée dans l'industrie de procédés à cause de sa capacité à traiter des systèmes multivariables, même de grande taille, y compris en tenant compte des contraintes portant sur les variables commandées et manipulées en particulier. La commande prédictive basée sur le modèle a d'abord été introduite par (Richalet et al., 1978) (Adersa) comme Commande Algorithmique basée sur le Modèle (MAC) à travers IDCOM (IDentification-COMmand) où l'accent était mis sur le rôle clef du calcul numérique et de la modélisation ; plusieurs applications industrielles étaient rapportées pour bien montrer l'intérêt de la méthode proposée. Peu de temps après, Dynamic Matrix Control (DMC) a été publié (Cutler and Ramaker, 1979) et implanté à Shell comme un algorithme multivariable de commande sur ordinateur.

De nombreux articles de synthèse ont été consacrés à l'évolution de la commande prédictive basée sur le modèle (Garcia et al., 1989; Keyser et al., 1988; Lee, 1996; Mayne, 1996; Morari and Lee, 1991, 1999; Muske and Rawlings, 1993; Rawlings et al., 1994; Ricker, 1991), y compris des ouvrages (Bitmead et al., 1990; Camacho and Bordons, 1995; Sanchez and Rodellar, 1996; Soeterboek, 1992) et de nombreux papiers relatent des développements industriels et des applications de MPC (Froisy, 1994; Qin and Badgwell, 1996). En particulier, (Soeterboek, 1992) compare à travers une approche unifiée différents types de schémas MPC comme Dynamic Matrix Control (DMC) (Cutler and Ramaker, 1979), PCA, AC, GPC (Generalized Predictive Control) (Clarke et al., 1987a,b), EPSAC (Extended Prediction Self-Adaptive Control) (Keyser and Cauwenberghe, 1985) et Extended Horizon Adaptive Control (EHAC) (Ydstie, 1984).

3.1.1 En absence de contraintes

La commande par modèle interne (IMC) (Garcia and Morari, 1982) développée sous forme continue et discrète, monovariante et multivariante, peut également être considérée comme une variante de MPC.

En absence de contraintes, sur un horizon de temps fini, la commande prédictive généralisée (GPC) est une forme monovariante de MPC (Bitmead et al., 1990; Clarke et al., 1987a,b) qui a été développée en utilisant des fonctions de transfert discrètes. Un équivalent continu de la commande prédictive discrète précédente a été développé par (Demircioglu and Gawthrop, 1991, 1992).

Sur un horizon de temps infini, la commande linéaire quadratique (LQ) et la commande linéaire quadratique gaussienne (LQG) sont formulées dans l'espace d'état et sont fondamentalement multivariantes. LQG est une méthode puissante capable de traiter des systèmes de grande taille, à non minimum de phase.

Cependant, le principal inconvénient des méthodes de commande précédemment mentionnées est qu'elles ne tiennent aucun compte de quel que type de contrainte que ce soit, que cela concerne les variables commandées ou les variables manipulées.

3.1.2 En présence de contraintes

La Commande Prédictive basée sur le Modèle (MPC) peut être définie comme une classe d'algorithmes de commande qui calculent sur un horizon de temps futur une suite de profils des variables manipulées en utilisant un modèle linéaire ou non linéaire du procédé afin d'optimiser un critère le plus souvent quadratique soumis à des contraintes linéaires ou non linéaires.

(Qin and Badgwell, 1996) décrivent les objectifs généraux de la commande prédictive par ordre décroissant d'importance :

1. éviter la violation des contraintes d'entrée et de sortie
2. amener les variables manipulées vers leurs valeurs stationnaires optimales (optimisation dynamique par rapport aux entrées),
3. amener les variables commandées vers leurs valeurs stationnaires optimales en prenant en compte les degrés de liberté restants (optimisation dynamique par rapport aux sorties),
4. éviter des variations excessives des variables manipulées,
5. lorsque les signaux et les actionneurs sont en défaut, commander une aussi grande partie du procédé que possible.

Les codes commerciaux de MPC s'adaptent de différentes manières à ces règles.

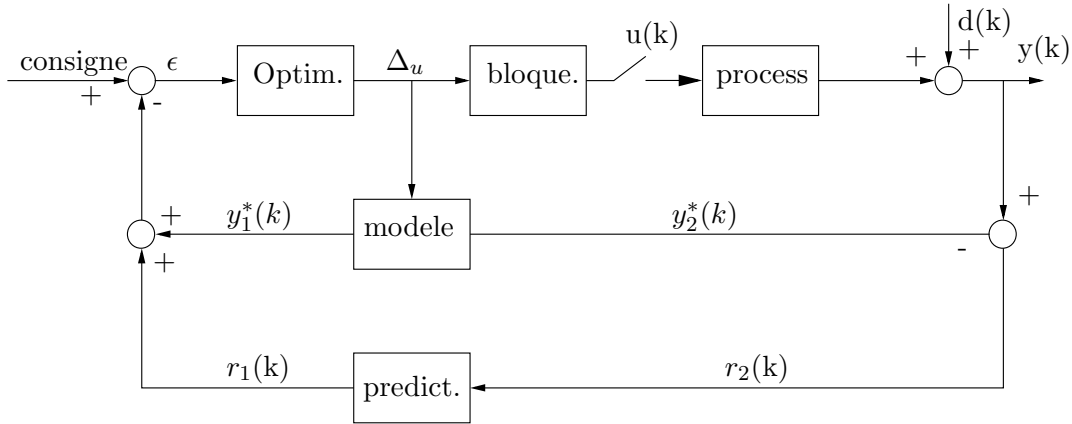


Figure 3.1 – Diagramme schéma-bloc d'un contrôle par modèle prédictif

3.2 Équations de commande prédictive

3.2.1 Cas d'un système à une entrée et une sortie

La commande prédictive sera introduite de manière théorique à travers la commande dynamique matricielle (Dynamic Matrix Control DMC) qui a été l'une des premières commandes prédictives introduites et pour laquelle des références bibliographiques sont disponibles (Cutler and Ramaker, 1979; Garcia and Morshedi, 1986).

Dans DMC, un système monovarié est représenté par son modèle de réponse indicelle tronqué :

$$y(j+1) = y_{ss} + \sum_{i=1}^M h_i \Delta u(j+1-i) + d(j+1) \quad (3.1)$$

où h_i sont les coefficients de réponse indicelle unitaire au $i^{\text{ème}}$ instant, y_{ss} est la sortie initiale stationnaire (ici, y n'est pas une variable d'écart) et \mathbf{d} représente les facteurs non modélisés affectant les sorties. D'autre part $\Delta u(k) = u(k) - u(k-1)$. M est le nombre de périodes d'échantillonnage nécessaire pour atteindre l'état stationnaire et est appelé horizon du modèle ou nombre de troncature (ainsi $h_i = h_M$ si $i \geq M$).

Remarquons que les coefficients \bar{g}_i de la réponse impulsionnelle unitaire pourraient également être utilisés selon :

$$y(j+1) = y_{ss} + \sum_{i=1}^M \bar{g}_i u(j+1-i) + d(j+1) \quad (3.2)$$

comme dans HIECON développé par la société ADERSA. Les coefficients de réponse indicelle h_i sont liés aux coefficients de réponse impulsionnelle \bar{g}_i par les relations :

$$\bar{g}_i = h_i - h_{i-1} \quad \text{et :} \quad h_i = \sum_{j=1}^i \bar{g}_j \quad (3.3)$$

En considérant un horizon de prédiction H_p et la consigne y^s , l'objectif est de calculer les entrées futures de telle manière que les sorties futures soient proches de la consigne. Donc, à l'instant $k + l$, la prédiction de sortie basée sur les entrées passées et futures est décomposée selon :

$$\hat{y}(k + l|k) = \underbrace{y_{ss} + \sum_{i=l+1}^{M-1} h_i \Delta u(k + l - i) + h_M (u(k + l - M) - u_{ss})}_{\text{effet des entrées passées}} + \underbrace{\sum_{i=1}^l h_i \Delta u(k + l - i)}_{\text{effet des entrées futures}} + \underbrace{\hat{d}(k + l|k)}_{\text{effet des perturbations prédites}} \quad (3.4)$$

A chaque instant k , seules H_c variations des entrées futures sont calculées d'où :

$$\Delta u(j) = 0 \quad \forall j \geq k + H_c \quad (3.5)$$

Ainsi, au-delà de l'horizon de commande H_c , i.e. après l'instant $k + H_c$, l'entrée manipulée est supposée constante.

D'après l'équation (3.4), on définit $y^*(k + l|k)$ comme la prédiction de sortie correspondant à l'influence des variations des entrées passées égale à :

$$y^*(k + l|k) = y_{ss} + \sum_{i=l+1}^{M-1} h_i \Delta u(k + l - i) + h_M (u(k + l - M) - u_{ss}) \quad (3.6)$$

Si $l \geq M - 1$, l'équation (3.6) se simplifie selon :

$$y^*(k + l|k) = y_{ss} + h_M (u(k - 1) - u_{ss}) \quad (3.7)$$

et l'équation (3.4) se réduit à :

$$\hat{y}(k + l|k) = y_{ss} + h_M (u(k - 1) - u_{ss}) + \sum_{i=l-H_c+1}^l h_i \Delta u(k + l - i) + \hat{d}(k + l|k) \quad (3.8)$$

Sur un horizon de prédiction donné H_p , et en supposant $M > H_c$, le vecteur des

prédictions de sortie peut être décomposé comme :

$$\begin{aligned}
 \hat{y}(k+1|k) &= h_1 \Delta u(k) \\
 &\quad + y_{ss} + h_2 \Delta u(k-1) + \dots + h_{M-1} \Delta u(k-M+2) \\
 &\quad + h_M (u(k+1-M) - u_{ss}) + \hat{d}(k+1|k) \\
 &= h_1 \Delta u(k) + y^*(k+1|k) + \hat{d}(k+1|k) \\
 \hat{y}(k+2|k) &= h_1 \Delta u(k+1) + h_2 \Delta u(k) \\
 &\quad + y_{ss} + h_3 \Delta u(k-1) + \dots + h_{M-1} \Delta u(k-M+3) \\
 &\quad + h_M (u(k+2-M) - u_{ss}) + \hat{d}(k+2|k) \\
 &= h_1 \Delta u(k+1) + h_2 \Delta u(k) + y^*(k+2|k) + \hat{d}(k+2|k) \\
 &\vdots \\
 \hat{y}(k+H_c|k) &= h_1 \Delta u(k+H_c-1) + h_2 \Delta u(k+H_c-2) + \dots + h_{H_c} \Delta u(k) \\
 &\quad + y_{ss} + h_{H_c+1} \Delta u(k-1) + \dots + h_{M-1} \Delta u(k+H_c-M+1) \\
 &\quad + h_M (u(k+H_c-M) - u_{ss}) + \hat{d}(k+H_c|k) \\
 &= h_1 \Delta u(k+H_c-1) + \dots + h_{H_c} \Delta u(k) + y^*(k+H_c|k) + \hat{d}(k+H_c|k) \\
 \\
 \hat{y}(k+H_c+1|k) &= h_2 \Delta u(k+H_c-1) + \dots + h_{H_c+1} \Delta u(k) \\
 &\quad + y^*(k+H_c+1|k) + \hat{d}(k+H_c+1|k) \\
 &\vdots \\
 \hat{y}(k+M|k) &= h_{M-H_c+1} \Delta u(k+H_c-1) + \dots + h_M \Delta u(k) \\
 &\quad + y^*(k+M|k) + \hat{d}(k+M|k) \\
 \hat{y}(k+M+1|k) &= h_{M-H_c+2} \Delta u(k+H_c-1) + \dots + h_M \Delta u(k+1) + h_M \Delta u(k) \\
 &\quad + y^*(k+M+1|k) + \hat{d}(k+M+1|k) \\
 &\vdots \\
 \hat{y}(k+H_p|k) &= h_M \Delta u(k+H_c-1) + \dots + h_M \Delta u(k) \\
 &\quad + y^*(k+H_p|k) + \hat{d}(k+H_p|k) \\
 &\quad \text{si } H_p \geq H_c + M - 1
 \end{aligned} \tag{3.9}$$

d'où :

$$\begin{bmatrix} \hat{y}(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{y}(k+H_p|k) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} y^*(k+1|k) \\ \vdots \\ y^*(k+H_p|k) \end{bmatrix} + \mathcal{A} \begin{bmatrix} \Delta u(k) \\ \vdots \\ \Delta u(k+H_c-1) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \hat{d}(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{d}(k+H_p|k) \end{bmatrix} \tag{3.10}$$

où \mathcal{A} est la matrice de dimension $H_p \times H_c$ (appelée Matrice Dynamique de Commande :

Dynamic Matrix Control DMC) du système égale à :

$$\mathbf{A} = \left[\begin{array}{cccc} h_1 & 0 & \dots & 0 \\ h_2 & h_1 & & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \\ h_{H_c} & h_{H_c-1} & \dots & h_1 \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ h_M & h_{M-1} & \dots & h_{M-H_c+1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ h_M & h_M & \dots & h_M \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ h_M & h_M & \dots & h_M \end{array} \right] \left. \begin{array}{l} \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \end{array} \right\} \begin{array}{l} H_c \text{ lignes} \\ \\ \\ \\ \\ (M-1) \text{ lignes} \\ \\ (H_p - H_c - M + 1) \text{ lignes} \end{array} \quad (3.11)$$

L'équation (3.10) montre donc l'influence des entrées futures. La matrice dynamique \mathbf{A} de l'équation (3.11) est exactement semblable à la matrice \mathbf{G} de l'équation (15.23) définie dans la commande prédictive généralisée (Corriou, 2003).

Le vecteur des prédictions de sortie $y^*(k+l|k)$ correspondant à l'influence des variations des entrées passées peut être lui-même calculé (en supposant $H_p \geq M$) selon :

$$\begin{bmatrix} y^*(k+1|k) \\ \vdots \\ y^*(k+M-1|k) \\ y^*(k+M|k) \\ \vdots \\ y^*(k+H_p|k) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} y_{ss} \\ \vdots \\ y_{ss} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} h_{M-1} & h_{M-2} & \dots & h_2 \\ 0 & h_{M-1} & & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \\ 0 & 0 & \dots & h_{M-1} \\ 0 & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta u(k-M+2) \\ \vdots \\ \Delta u(k-1) \end{bmatrix} \\ + h_M \begin{bmatrix} u(k-M+1) - u_{ss} \\ \vdots \\ u(k-1) - u_{ss} \\ u(k-1) - u_{ss} \\ \vdots \\ u(k-1) - u_{ss} \end{bmatrix} \quad (3.12)$$

La combinaison des équations (3.1) pour $j = k-1$ et (3.4) pour $l = 0$ donne l'influence des effets non modélisés :

$$d(k) = y(k) - y^*(k|k) \quad (3.13)$$

Par conséquent, en se basant sur une sortie mesurée $y^m(k)$, une estimation de $d(k)$ est

donnée par :

$$\begin{aligned}\hat{d}(k+l|k) &= \hat{d}(k|k) = y^m(k) - y^*(k|k) \quad \forall l = 1, \dots, H_p \\ &= y^m(k) - [y_{ss} + \sum_{i=1}^{M-1} h_i \Delta u(k-i) + h_M(u(k-M) - u_{ss})]\end{aligned}\quad (3.14)$$

donc les perturbations prédites sont toutes égales à la perturbation actuelle estimée.

Définissons un critère quadratique prenant en compte la différence entre la sortie estimée et la référence sur l'horizon de prédiction selon :

$$J = \sum_{i=1}^{H_p} (\hat{y}(k+i|k) - y^{\text{ref}}(k+i))^2 \quad (3.15)$$

D'après les équations précédentes, cela revient à calculer le vecteur des variations des entrées futures :

$$\Delta \mathbf{u}(k) = [\Delta u(k) \dots \Delta u(k+H_c-1)]^T \quad (3.16)$$

qui est la solution au sens des moindres carrés du système linéaire suivant résultant de l'équation (3.10) :

$$\begin{bmatrix} y^{\text{ref}}(k+1) - y^*(k+1|k) - \hat{d}(k|k) = e(k+1) \\ \vdots \\ y^{\text{ref}}(k+H_p) - y^*(k+H_p|k) - \hat{d}(k|k) = e(k+H_p) \end{bmatrix} = \mathbf{e}(k+1) = \mathcal{A} \Delta \mathbf{u}(k) \quad (3.17)$$

La solution au sens des moindres carrés de (3.17) est :

$$\Delta \mathbf{u}(k) = (\mathcal{A}^T \mathcal{A})^{-1} \mathcal{A}^T \mathbf{e}(k+1) \quad (3.18)$$

Seule la première variation du vecteur d'entrée (3.16) égal à (3.18) est implantée réellement. Selon (Garcia and Morshedi, 1986), le choix de l'horizon de prédiction H_p tel que : $H_p = H_c + M$ fournit en général un régulateur stable. (Garcia et al., 1989) stipulent simplement que pour H_c suffisamment petit et pour H_p suffisamment grand tel que $H_p > H_c + M - 1$, le système en boucle fermée est stable. La loi de commande (3.18) fournit une action de commande trop forte et est améliorée par la suite par l'introduction des termes de pondération comme dans (3.29). Cependant, (Li et al., 1989) supposent $M \geq H_p$ et (Camacho and Bordons, 1998) choisit $M \gg H_p$. (Soeterboek, 1992) montre que l'horizon de prédiction doit être choisi plus grand lorsque les contraintes sont présentes.

3.2.2 Cas d'un système multivariable

D'une manière analogue, un système multivariable (n_u entrées, n_y sorties) est représenté par :

$$\mathbf{y}(k+1) = \mathbf{y}_0 + \sum_{i=1}^M \mathbf{a}_i \Delta \mathbf{u}(k-i+1) + \mathbf{d}(k+1) \quad (3.19)$$

où \mathbf{a}_i est une matrice $n_y \times n_u$ de coefficients de la réponse indicielle unitaire au i^{eme} instant, \mathbf{y}_0 est le vecteur de sortie initial et \mathbf{d} représente les facteurs non modélisés affectant les sorties.

Une paire entrée-sortie $i - j$ quelconque peut être représentée par une matrice \mathcal{A}_{ij} de coefficients h en tous points semblable à l'équation (3.11) si bien que le système complet est finalement représenté par une matrice dynamique multivariable composée de matrices élémentaires \mathcal{A}_{ij} du type (3.11) telle que :

$$\mathcal{A} = \begin{bmatrix} \mathcal{A}_{11} & \dots & \mathcal{A}_{1n_u} \\ \vdots & & \vdots \\ \mathcal{A}_{n_y 1} & \dots & \mathcal{A}_{n_y n_u} \end{bmatrix} \quad (3.20)$$

Pour un système 2×2 , la représentation du système équivalent à l'équation (3.10) serait :

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \hat{y}_1(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{y}_1(k+H_p|k) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} y_1^*(k+1|k) \\ \vdots \\ y_1^*(k+H_p|k) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \hat{d}_1(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{d}_1(k+H_p|k) \end{bmatrix} \\ &+ \mathcal{A}_{11} \begin{bmatrix} \Delta u_1(k) \\ \vdots \\ \Delta u_1(k+H_c-1) \end{bmatrix} + \mathcal{A}_{12} \begin{bmatrix} \Delta u_2(k) \\ \vdots \\ \Delta u_2(k+H_c-1) \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} \hat{y}_2(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{y}_2(k+H_p|k) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} y_2^*(k+1|k) \\ \vdots \\ y_2^*(k+H_p|k) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \hat{d}_2(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{d}_2(k+H_p|k) \end{bmatrix} \\ &+ \mathcal{A}_{21} \begin{bmatrix} \Delta u_1(k) \\ \vdots \\ \Delta u_1(k+H_c-1) \end{bmatrix} + \mathcal{A}_{22} \begin{bmatrix} \Delta u_2(k) \\ \vdots \\ \Delta u_2(k+H_c-1) \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (3.21)$$

ou finalement :

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \hat{y}_1(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{y}_1(k+H_p|k) \\ \hat{y}_2(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{y}_2(k+H_p|k) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} y_1^*(k+1|k) \\ \vdots \\ y_1^*(k+H_p|k) \\ y_2^*(k+1|k) \\ \vdots \\ y_2^*(k+H_p|k) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \hat{d}_1(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{d}_1(k+H_p|k) \\ \hat{d}_2(k+1|k) \\ \vdots \\ \hat{d}_2(k+H_p|k) \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} \mathcal{A}_{11} & \mathcal{A}_{12} \\ \mathcal{A}_{21} & \mathcal{A}_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta u_1(k) \\ \vdots \\ \Delta u_1(k+H_c-1) \\ \Delta u_2(k) \\ \vdots \\ \Delta u_2(k+H_c-1) \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (3.22)$$

Définissons le vecteur des variations des entrées futures comme dans (3.16) :

$$\Delta \mathbf{u}(k) = [\Delta \mathbf{u}_1(k)^T \dots \Delta \mathbf{u}_{n_u}(k)^T]^T \quad (3.23)$$

et également le vecteur des écarts comme dans (3.17) :

$$\mathbf{e}(k+1) = [\mathbf{e}_1(k+1)^T \dots \mathbf{e}_{n_y}(k+1)^T]^T \quad (3.24)$$

La solution au sens des moindres carrés du régulateur multivariable DMC est également donnée par (3.18). A nouveau, (Garcia and Morshedi, 1986) recommande le choix $H_p = H_c + M$ pour obtenir un régulateur stable. Une grande valeur de l'horizon de prédiction H_p améliore la stabilité même si elle n'améliore pas significativement la performance (Shridar and Cooper, 1998). L'horizon de commande H_c devrait être choisi plus grand que 1.

Certaines variations des entrées peuvent être supprimées en formulant la DMC multivariable selon :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{e}(k+1) \\ \mathbf{0} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathcal{A} \\ \Lambda \end{bmatrix} \Delta \mathbf{u}(k) \quad (3.25)$$

où Λ est une matrice diagonale égale à :

$$\Lambda = \text{diag}(\underbrace{\lambda_1 \dots \lambda_1}_{H_c \text{ valeurs}} \lambda_2 \dots \lambda_2 \dots \lambda_{n_u} \dots \lambda_{n_u}) \quad (3.26)$$

Il est également possible de pondérer sélectivement les variables commandées en multipliant les équations telles que (3.17). La matrice des poids est alors :

$$\Gamma = \text{diag}(\underbrace{\gamma_1 \dots \gamma_1}_{H_p \text{ valeurs}} \gamma_2 \dots \gamma_2 \dots \gamma_{n_y} \dots \gamma_{n_y}) \quad (3.27)$$

La matrice Γ définie dans (3.27) pour la pondération sélective des variables commandées et la matrice Λ définie dans (3.26) pour la suppression de certaines variations des entrées sont alors incorporées dans le critère. Le critère quadratique suivant à minimiser par rapport à $\Delta \mathbf{u}(k)$ en résulte :

$$\begin{aligned} J &= \frac{1}{2} [\hat{\mathbf{y}}(k) - \mathbf{y}^{ref}(k)]^T \Gamma^T \Gamma [\hat{\mathbf{y}}(k) - \mathbf{y}^{ref}(k)] + \frac{1}{2} \Delta \mathbf{u}^T(k) \Lambda^T \Lambda \Delta \mathbf{u}(k) \\ &= \frac{1}{2} [\mathcal{A} \Delta \mathbf{u}(k) - \mathbf{e}(k+1)]^T \Gamma^T \Gamma [\mathcal{A} \Delta \mathbf{u}(k) - \mathbf{e}(k+1)] + \frac{1}{2} \Delta \mathbf{u}^T(k) \Lambda^T \Lambda \Delta \mathbf{u}(k) \end{aligned} \quad (3.28)$$

En absence de contraintes, la solution de (3.28) est :

$$\Delta \mathbf{u}(k) = (\mathcal{A}^T \Gamma^T \Gamma \mathcal{A} + \Lambda^T \Lambda)^{-1} \mathcal{A}^T \Gamma^T \Gamma \mathbf{e}(k+1) \quad (3.29)$$

A nouveau, la loi de commande de DMC en absence de contraintes fournies par l'équation (3.29) est semblable à la loi de la commande prédictive généralisée donnée par l'équation (15.26) dans (Corriou, 2003).

(Shridar and Cooper, 1998) proposent une stratégie de réglage pour la DMC multivariable non contrainte. Ils notent que l'horizon de prédiction H_p doit être en accord

avec le temps de réponse du procédé. De plus, l'augmentation de l'horizon de commande H_c de 2 à 6 ne modifie pas beaucoup la performance en boucle fermée, mais il devrait être supérieur ou égal au nombre de modes instables du système (Rawlings and Muske, 1993). (Al-Ghazzawi et al., 2001) présentent une stratégie de réglage en ligne basée sur l'utilisation de fonctions de sensibilité pour la réponse en boucle fermée par rapport aux paramètres de réglage de la commande prédictive basée sur le modèle.

3.2.3 Commande matricielle dynamique quadratique : Quadratic Dynamic Matrix Control (QDMC)

La maîtrise des contraintes n'était pas complètement satisfaisante dans la DMC d'origine ce qui a motivé (Garcia and Morshedi, 1986) pour une solution de programmation quadratique du problème DMC. Différents types de contraintes (douces qui peuvent être violées et dures) sont couramment rencontrés :

- contraintes affectant les variables manipulées comme des saturations de vannes :

$$\mathbf{u}_{\min} \leq \mathbf{u} \leq \mathbf{u}_{\max} \quad (3.30)$$

- contraintes affectant les variables commandées : par exemple, éviter les dépassements,
- contraintes affectant d'autres variables qui doivent être maintenues à l'intérieur de limites.
- contraintes ajoutées au procédé afin d'éviter des réponses inverses provoquant un comportement à non-minimum de phase.
- contraintes terminales sur l'état.

Toutes ces contraintes peuvent être résumées comme un système d'inégalités linéaires incorporant l'information dynamique concernant la projection des contraintes :

$$\mathbf{B} \Delta \mathbf{u}(k) \leq \mathbf{c}(k+1) \quad (3.31)$$

où \mathbf{B} contient l'information dynamique sur les contraintes et $\mathbf{c}(k+1)$ contient les écarts projetés des variables contraintes et leurs limites : (Garcia and Morshedi, 1986), (Soeterboek, 1992), (Camacho and Bordons, 1998) détaillent comment représenter les cas précédemment mentionnés de contraintes ; notons que $\Delta \mathbf{u}(k)$ contient également la prédiction des variations des entrées futures.

En présence de contraintes (3.30) et (3.31), le problème peut alors être formulé du point de vue programmation quadratique comme :

$$\min_{\Delta \mathbf{u}(k)} \left[\frac{1}{2} \Delta \mathbf{u}(k)^T \mathbf{H} \Delta \mathbf{u}(k) - \mathbf{g}(k+1)^T \Delta \mathbf{u}(k) \right] \quad (3.32)$$

soumis aux contraintes (3.30) et (3.31). \mathbf{H} est la matrice hessienne (fixe en général) égale à :

$$\mathbf{H} = \mathbf{A}^T \mathbf{\Gamma}^T \mathbf{\Gamma} \mathbf{A} + \mathbf{\Lambda}^T \mathbf{\Lambda} \quad (3.33)$$

et $\mathbf{g}(k+1)$ est le vecteur gradient égal à :

$$\mathbf{g}(k+1) = \mathbf{A}^T \mathbf{\Gamma}^T \mathbf{\Gamma} \mathbf{e}(k+1) \quad (3.34)$$

Ce problème quadratique peut être résolu efficacement par des programmes numériques disponibles basés par exemple sur la méthode de Rosen (Soeterboek, 1992), des gradients conjugués ou de quasi-Newton (Fletcher, 1991), (Camacho and Bordons, 1998).

Dans QDMC, le choix de l'intervalle de projection à contraindre est important, parce que tout l'horizon H_p n'a pas nécessairement besoin d'être contraint. Par exemple, pour un système à non-minimum de phase (retard pur ou réponse inverse), le déplacement de la fenêtre de contrainte vers la fin de l'horizon est favorable.

Une autre version de DMC appelée LDMC où le critère concerne la somme des valeurs absolues des erreurs a été développée (Morshedi, 1986). Dans ce cas, le problème d'optimisation est résolu par programmation linéaire.

Dans certains cas, la stabilité due aux contraintes de sortie peut être obtenue par QDMC (Muske and Rawlings, 1993) pour des systèmes instables en boucle ouverte.

3.2.4 Formulation dans l'espace d'état de MPC

La commande prédictive peut aussi être développée dans l'espace d'état où l'on considère un modèle linéaire de la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{x}(k+1) &= \mathbf{A}\mathbf{x}(k) + \mathbf{B}\mathbf{u}(k) \\ \mathbf{y}(k) &= \mathbf{C}\mathbf{x}(k) \end{aligned} \quad (3.35)$$

(Li et al., 1989) ont proposé une première formulation dans l'espace d'état pour la commande prédictive linéaire basée sur le modèle. (Lee et al., 1994; Lundström et al., 1995; Ricker, 1990) ont développé une commande prédictive linéaire dans l'espace d'état dans un esprit semblable. Dans ces articles, deux étapes sont utilisées pour la prédiction du modèle : d'abord un prédicteur de la sortie est construit, puis un observateur d'état est utilisé pour estimer les états.

La commande prédictive basée sur le modèle avec observateur (Observer Based Model Predictive Control : OBMPC) développée par (Lee et al., 1994), reprise par (Lundström et al., 1995), est exposée dans (Corriou, 2003).

La commande prédictive peut être vue comme un problème d'optimisation générale où l'on recherche la minimisation du critère J :

$$\min_{\mathbf{u}} J = \mathbf{x}(H_p)^T S_0 \mathbf{x}(H_p) + \sum_{i=0}^{H_p-1} \mathbf{x}(i)^T Q \mathbf{x}(i) + \sum_{i=0}^{H_c-1} \mathbf{u}(i)^T R \mathbf{u}(i) \quad (3.36)$$

soumis au modèle (3.35) et aux contraintes (3.37)

$$\mathbf{E}\Delta\mathbf{u}(k) \leq \mathbf{F}(k+1) \quad (3.37)$$

H_p est l'horizon de prédiction ou de sortie, H_c l'horizon de commande ou d'entrée.

Dans le cas où les horizons de prédiction et de commande sont tous deux infinis et en absence de contraintes, la commande linéaire prédictive basée sur le modèle devient le problème classique linéaire quadratique (LQ) en temps discret.

Quand l'horizon de prédiction est fini, dans le cadre de la commande prédictive basée sur le modèle, ce problème devient une commande à horizon glissant car seule la première commande $u^*(0)$ de la suite optimale $u^*(i)$, $i = 1, H_c - 1$, est implantée. Dans le cas où les deux horizons sont finis, cela devient un problème classique d'optimisation qui pose toutefois un certain nombre de problèmes. Ainsi (Morari and Lee, 1999) remarque les points suivants :

- il est possible que les contraintes (3.37) rendent le problème d'optimisation impossible,
- comme le problème d'optimisation est résolu en boucle ouverte, il peut arriver que le système en boucle fermée sorte de la région possible. Dans les algorithmes commerciaux (Qin and Badgwell, 1996), les contraintes douces peuvent être violées pendant quelque temps contrairement aux contraintes dures. Elles sont pénalisées dans la fonction objectif.
- dans le cas d'un système instable, en général le système ne peut pas être stabilisé globalement (certains états ne sont pas stabilisés) lorsqu'il existe des contraintes de saturation des entrées.

(Muske and Rawlings, 1993; Rawlings and Muske, 1993) ont résolu cette question d'absence de stabilité du régulateur prédictif à horizon fini en utilisant une pénalité sur un horizon infini bien que le nombre de variables de décision reste fini.

3.3 Commande prédictive non linéaire

Étant donné un modèle non linéaire dans l'espace d'état, il est tentant de linéariser autour d'un point opératoire variable afin d'appliquer ensuite la commande prédictive linéaire. Ceci constitue l'approche non linéaire la plus simple utilisable lorsque le procédé commandé présente de fortes non linéarités. Elle a été proposée par (Gattu and Zafriou, 1992, 1995) qui ont adapté la version non linéaire de QDMC proposée par (Garcia, 1984) en incorporant un estimateur d'état. Cette méthode est résumée dans (Corriou, 2003).

D'autres approches sont possibles avec même des linéarités représentées par des modèles de Volterra de second ordre (Doyle et al., 1995; Genceli and Nikolaou, 1995; Maner et al., 1996) ou des réseaux neuronaux. Pourtant, le plus souvent des modèles dans l'espace d'état sont utilisés. (Qin and Badgwell, 2000) font une revue des applications de commande prédictive non linéaire. (Allgöwer et al., 1999; Bequette, 1991; Biegler, 1998; Chen, 1997; Mayne et al., 2000a,b; Morari and Lee, 1999) ont publié des revues intéressantes sur NMPC dans lesquelles ils insistent sur deux obstacles principaux concernant l'extension de la commande prédictive des systèmes linéaires aux systèmes non linéaires :

- la question de la stabilité pour les systèmes contraints à horizon fini. Différents types de contraintes peuvent être introduits pour garantir la stabilité pour la commande prédictive linéaire. Des approches semblables sont souvent utilisées pour la commande prédictive non linéaire. Un horizon infini ou quasi infini est également utilisé.

– la lourdeur du calcul numérique : un problème d’optimisation non linéaire doit être résolu en ligne et il n’existe en général pas de garantie de trouver un optimum global. Pour plus de détails, il est possible de consulter (Corriou, 2003).

3.4 Méthode numérique d’optimisation

En raison de l’importance pratique de l’optimisation, de nombreux travaux ont été réalisés sur le plan numérique pour mettre au point des méthodes performantes (Fletcher, 1991; Gill et al., 1981). Toutefois, sur le plan pratique, on doit remarquer que la plupart des algorithmes d’optimisation sont disponibles uniquement dans des bibliothèques numériques commerciales.

3.4.1 Problème à optimiser

Considérons le problème d’optimisation quadratique consistant à minimiser une fonction objectif f sous des contraintes d’égalités et d’inégalités non linéaires. Ce problème d’optimisation s’écrit sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \min f(x) \\ x \in \mathcal{R}^n \quad g_j(x) = 0, \quad j = 1, \dots, m_e \\ g_j(x) \geq 0, \quad j = m_e + 1, \dots, m \end{aligned} \tag{3.38}$$

où x est un vecteur de dimension n . m_e désigne le nombre de contraintes d’égalité, m le nombre de contraintes et n le nombre de variables d’optimisation.

Dans ce problème d’optimisation non-linéaire (NLP), les fonctions $f(x)$ et $g_j(x), j = 1, \dots, m$ sont supposées continûment dérivables sur \mathcal{R}^n .

3.4.2 Programmation quadratique successive

Les algorithmes de programmation quadratique successive approximent un problème d’optimisation sous contraintes selon un problème d’optimisation quadratique. Soit le précédent problème d’optimisation :

$$\begin{aligned} \min f(x) \\ x \in \mathcal{R}^n \quad g_j(x) = 0, \quad j = 1, \dots, m_e \\ g_j(x) \geq 0, \quad j = m_e + 1, \dots, m \end{aligned} \tag{3.39}$$

Le Lagrangien associé à ce problème est :

$$\mathcal{L}(x, p) = f(x) + \sum_{j=1}^{m'} \mu_j g_j(x) \tag{3.40}$$

où $x \in \mathcal{R}^n$ est le vecteur des paramètres d’optimisation et $\mu = (\mu_1, \dots, \mu_m) \in \mathcal{R}^n$ est le vecteur des multiplicateurs de Lagrange et de Kuhn-Tucker. Soient les vecteurs $\{x_k\}$ la

suite des vecteurs itérés et p_k une approximation optimale des multiplicateurs de Lagrange associés au problème. Soit \mathcal{H} une approximation semi-définie positive de la matrice hessienne. En linéarisant les contraintes non-linéaires au voisinage de l'itération courante k et en minimisant une approximation quadratique du Lagrangien, nous obtenons le problème suivant :

$$\begin{aligned} & \min_x \frac{1}{2} \delta x^T \mathcal{H}_k \delta x + \nabla_x^T f(x_k) \delta x \\ & \text{soumis à } \begin{cases} \nabla_{x,k} g_j(x_k) \delta x + g_j(x_k) = 0 & j = 1, \dots, m_e \\ \nabla_{x,k} g_j(x_k) \delta x + g_j(x_k) \geq 0 & j = m_e, \dots, m \\ \delta x - (x_k - x_u) \geq 0 & k = 1, \dots, n \\ -\delta x - (x_l - x_k) \geq 0 & k = 1, \dots, n \end{cases} \end{aligned} \quad (3.41)$$

La nouvelle itération est déterminée par

$$x_{k+1} = x_k - \Gamma_k \delta x_k \quad (3.42)$$

La direction de recherche dépendant de p_k l'approximation des multiplicateurs de Lagrange optimaux, ce vecteur est mis à jour par :

$$p_{k+1} = p_k + \Gamma_k \delta p_k \quad (3.43)$$

Γ_k , la longueur du pas dans la direction de recherche, est obtenue de façon à diminuer suffisamment la fonction de mérite Φ :

$$\Phi(\alpha) = \Psi(x_k + \Gamma_k \delta x_k, p_k + \Gamma_k \delta p_k) \quad (3.44)$$

Le code NLPQL de Schittkowski (Schittkowski (1985)) permet de résoudre ce type de problème par des algorithmes de programmation quadratique successive en utilisant la fonction de mérite suivante :

$$\Phi(x, p) = f(x) + \sum_{j \in J_1} \left[p_j g_j(x) - \frac{1}{2} r_j (g_j(x))^2 \right] - \frac{1}{2} \sum_{j \in J_2} \frac{p_j^2}{r_j} \quad (3.45)$$

avec $J_1 = \{1, \dots, m_e\} \cup \left\{ j \mid m_e \leq j \leq m, g_j(x) \leq \frac{p_j}{r_j} \right\}$ et $J_2 = \{1, \dots, m_e\} \setminus J_1$

Ici le paramètre de pénalité r_j^k qui contrôle le degré de violation des contraintes doit être choisi judicieusement afin d'assurer une direction de recherche correcte de la fonction de mérite :

$$r_j^k = \max \left(\frac{2m (u_j^k - p_j^k)^2}{(1 - \delta_k) d_k^T B_k d_k}, r_j^{(k-1)} \right) \quad (3.46)$$

Chapitre 4

Commande prédictive du lit mobile simulé

4.1 Bibliographie sur la commande du lit mobile simulé

Les différentes méthodes de simulation du procédé de lit mobile simulé en boucle fermée dépendent à la fois du choix de la stratégie de commande et de celui des variables d'entrées et de sorties. Le choix des entrées manipulées et sorties commandées sera discuté dans la section suivante.

Les techniques de commande appliquées au lit mobile simulé qui sont décrites dans la littérature sont variées. Elles sont néanmoins toutes de caractère multivariable.

Une première technique possible présentée dans la section 4.6 est de mettre au point une commande multivariable pour le lit mobile vrai et de l'appliquer ensuite au lit mobile simulé en utilisant l'équivalence entre lit mobile vrai et lit mobile simulé.

(Thabet et al., 1997) et (Kloppenburg and Gilles, 1999) ont réalisé une commande non linéaire de type entrée-sortie pour un système 2×2 (Isidori, 1995). Notons qu'avec ce type de commande, la connaissance des états est nécessaire, ce qui implique en général dans la pratique d'utiliser un observateur d'états. Ce dernier est difficile à mettre au point pour un système décrit par des équations aux dérivées partielles (Corriou and Alamir, 2006).

(Couenne et al., 2002) présente la commande et l'optimisation du procédé ELUXYL, commercialisé par l'IFP, de séparation de xylènes. La commande est de type linéaire multivariable prédictive sous forme d'une commande linéaire quadratique tenant compte des contraintes sur les entrées, les états et les sorties. D'une manière analogue au cas de la commande de colonnes de distillation (Corriou, 2003), des rapports r_i sont définis entre débit de zone i et le débit de solide équivalent pour constituer de nouvelles variables d'entrée afin d'améliorer la robustesse. Les cinq entrées $t_c, Q_{el}, Q_{ext}, Q_{raf}, Q_{IV}$ correspondent aux quatre rapports. Les sorties sont la pureté du paraxylène dans l'extrait, le rendement en paraxylène, la concentration d'éthylbenzène dans l'extrait et la concentration en paraxylène en un point de la zone I. Notons que des mesures sont effectuées par spectroscopie

Raman (temps de réponses égal à quelques secondes) ou par chromatographie (temps de réponse égal à 10 min). (Couenne et al., 2002) signale que le temps de réponse du procédé lui-même est de 6 à 8h.

(Natarajan and Lee, 2000) introduisent la commande prédictive répétitive appliquée au lit mobile simulé. Il s'agit d'appliquer le principe de la commande répétitive à la commande prédictive. La commande répétitive ("run-to-run") s'applique à des procédés qui doivent suivre une trajectoire périodique. Les applications sont rares en génie des procédés à cause de la difficulté à traiter des systèmes multivariables et présentant des retards. (Lee et al., 2001; Natarajan and Lee, 2000) ont étendu la formulation de la commande prédictive répétitive à des exigences plus générales d'optimisation. D'après le modèle du lit mobile simulé obtenu par discrétisation, un modèle d'ordre réduit est réalisé par réduction de modèle équilibrée et ensuite utilisé pour la commande par optimisation. Le but est la maximisation du rendement des produits de séparation tout en maintenant la pureté des produits. Les variables manipulées sont les débits dans les sections et le temps de commutation. Les mesures sont les concentrations à l'extrait et au raffinat. Les mesures sont utilisées à travers un filtre de Kalman périodique (un "run" dure quatre périodes de commutation) pour corriger l'erreur dans le modèle du procédé qui est un modèle dans l'espace d'état linéaire (obtenu par linéarisation) mais variant avec le temps.

(Klatt et al., 2000, 2002) se sont intéressés aux aspects d'optimisation et de commande du lit mobile simulé. Ils ont d'abord posé un problème d'optimisation dynamique avec pour fonction à minimiser le débit d'éluant soumis au modèle de profil stationnaire et à des contraintes sur les puretés à l'extrait et au raffinat. Ensuite, ils ont réalisé une optimisation MIMO de type ARX (Ljung, 1987) et ensuite appliqué une commande par modèle interne (Morari and Zafiriou, 1989).

(Erdem et al., 2004) réalisent une commande du lit mobile simulé basée sur une optimisation en ligne. Un modèle d'ordre réduit et dépendant du temps du lit mobile simulé est utilisé pour prédire les évolutions du procédé. Les isothermes sont supposées linéaires. Les quatre débits internes constituent les variables manipulées, le temps de commutation étant fixé a priori. Des concentrations aux sorties du procédés sont mesurées et utilisées avec un filtre de Kalman périodique. Les sorties commandées sont les compositions à l'extrait et au raffinat. Le comportement du procédé est optimisé sur un horizon futur en fonction des états actuels du procédé et des valeurs déjà implantées. Les trajectoires sur les sorties commandées constituent des contraintes dures du problème d'optimisation. Seul la première valeur des variables manipulées résultant de l'optimisation est implantée sur le procédé réel selon la technique usuelle de la commande prédictive. Les variables clés pour caractériser la performance du lit mobile simulé sont les rapports de débits dans les quatre sections définis par :

$$m_i = \frac{Q_i t_c - V \epsilon}{V(1 - \epsilon)} \quad (4.1)$$

L'optimisation non linéaire qui serait trop difficile en ligne est remplacée par une technique de commande prédictive répétitive introduite par (Natarajan and Lee, 2000) et (Lee et al., 2001).

(Wang et al., 2003) ont proposé une commande prédictive basée sur le modèle reposant

sur un réseau neuronal.

(Song et al., 2006a,b) réalisent une commande prédictive du lit mobile simulé en utilisant un modèle identifié linéaire discret dans l'espace d'état. L'originalité de la démarche réside dans la méthode d'identification par sous-espace détaillée dans (Song et al., 2006b) et que l'on trouve dans (Van Overschee and Moor, 1993, 1996). En simulation (Song et al., 2006a), l'objectif est la commande des puretés à l'extrait et au raffinat en agissant sur les débits dans les sections II et III. La performance est mesurée d'après les rapports m_i définis par (4.1). En implantation réelle (Song et al., 2006b), les entrées manipulées sont $Q_I, Q_{ext}, Q_{feed}, Q_{raf}$ alors que le temps de commutation est fixé. Les sorties sont les puretés de l'extrait et du raffinat, la productivité du procédé (quantité de produit obtenue aux spécifications requises par unité de temps et de volume de phase stationnaire) et la consommation spécifique d'éluant (quantité d'éluant utilisée par unité de produit obtenue). Les performances sont étudiées dans les portraits de phase des rapports m_i .

(Alamir et al., 2006) réalisent une commande non linéaire prédictive du lit mobile simulé. Le modèle utilisé est le modèle de simulation du procédé représenté par les équations non linéaires discrétisées. Les entrées sont $t_c, Q_{el}, Q_{ext}, Q_{feed}, Q_{IV}$. Les sorties sont les exigences de pureté à l'extrait et au raffinat et les quantités produites. Les fonctions de coût à optimiser concernent la quantité d'éluant (à minimiser), ou le rapport du débit d'éluant sur celui d'alimentation (à minimiser) ou la somme des débits d'éluant et d'alimentation (à maximiser).

4.2 Entrées manipulées et sorties commandées possibles

Dans la littérature (section 4.1), on trouve de nombreuses configurations pour la commande du lit mobile simulé. Le tableau 4.1 résume un certain nombre de stratégies de commande différentes utilisées.

Les conventions utilisées dans cette partie sont les suivantes :

- indices : ext=extrait, I=section I, F=alimentation, raf=raffinat, el=éluant
- variables : Q=débit, P=pureté, R=productivité, E=débit d'éluant

4.3 Choix effectif des entrées et sorties

Dans le cadre de cette étude, une stratégie de commande prédictive à quatre entrées et quatre sorties a été retenue. Même si la stratégie de commande utilisant les rapports volumiques m_i a été étudiée, nous nous sommes concentrés sur l'utilisation de débits comme variables d'entrée. L'éluant étant un produit onéreux en général, le débit d'éluant est l'une des entrées manipulées. Parmi les variables opératoires importantes du procédé, se trouvent le débit d'extrait et celui de raffinat qui sont considérés tous deux comme des entrées manipulées. Le temps de commutation t_c (ou débit de solide équivalent) est également une entrée manipulée. Afin de pouvoir déterminer les débits internes au sein de

Stratégie	Entrées manipulées	Sorties commandées	Référence
Linéarisation entrée/sortie 2×2	Q_{ext}, Q_{raf}	P_{ext}, R_{ext}	(Kloppenburg and Gilles, 1999)
Linéarisation entrée/sortie 2×2	Q_{ext}, Q_{raf}	P_{ext}, P_{raf}	(Thabet et al., 1997)
Commande prédictive 4×4	$Q_I, Q_{II}, Q_{III}, Q_{IV}$	$P_{ext}, P_{raf}, R_{ext}, R_{raf}$	(Natarajan and Lee, 2000)
Commande prédictive 4×4	m_1, m_2, m_3, m_4	$P_{ext}, R_{raf}, C_E^B, C_I^A$	(Couenne et al., 2002)
Commande prédictive non linéaire 4×4	$Q_{el}, Q_{ext}, Q_{alim}, Q_{IV}$	$P_{raf}, P_{ext}, R_{ext}; R_{raf}$	(Alamir et al., 2006)
Optimisation 4×4	$Q_I, Q_{ext}, Q_{alim}, Q_{raf}$	P_{ext}, P_{raf}, R, E	(Song et al., 2006b)
Optimisation 4×4	$Q_{el}, Q_{ext}, Q_{IV}, t_c$	$\min Q_{el}$	(Klatt et al., 2002)
Feedback	$Q_I, Q_{II}, Q_{III}, Q_{IV}$	$\max P_{ext} + P_{raf}$	(Schramm et al., 2003)
Commande prédictive répétitive	$Q_I, Q_{II}, Q_{III}, Q_{IV}$	$\max R_{ext} + R_{raf}$	(Seshatre and Lee, 2000)
Optimisation	$Q_I, Q_{II}, Q_{III}, Q_{IV}$	$\min Q_{el} - Q_{alim}$ $\max R_{ext} + R_{raf}$	(Abel et al., 2003)
Optimisation	$Q_I, Q_{II}, Q_{III}, Q_{IV}$	$\max R_{ext} + R_{raf}$	(Toumi and Engell, 2004)

Table 4.1 – Différents choix d'entrées et de sorties extraits de la littérature.

chaque zone, un débit interne devra également être une variable manipulée comme le débit de recyclage ou débit de la phase liquide au sein de la zone IV. Les entrées manipulées retenues sont donc : Q_{el} , Q_{ext} , Q_{IV} et t_c (à travers le débit de solide équivalent). Le débit d'alimentation Q_{alim} et la composition de l'alimentation est considéré comme une perturbation (Couenne et al., 2002).

Les sorties commandées retenues sont les caractéristiques des sorties à savoir : les puretés P_{ext} , P_{raf} , les rendements R_{ext} et R_{raf} .

En résumé, les entrées et les sorties sont :

$$\mathbf{u} = \begin{bmatrix} Q_{el} \\ Q_{ext} \\ Q_{IV} \\ Q_{sol} \end{bmatrix} ; \quad d = Q_{alim} \quad ; \quad \mathbf{y} = \begin{bmatrix} P_{ext} \\ P_{raf} \\ R_{ext} \\ R_{raf} \end{bmatrix} \quad (4.2)$$

4.4 Gestion des contraintes dans le cadre général de la commande prédictive

4.4.1 Problème des contraintes

Dans une première étape, le contrôle du LMS a été effectué en absence de contraintes. Afin de répondre aux exigences industrielles (rendement, productivité) mais aussi et surtout aux exigences physiques du système (débits minimaux admissibles par les pompes de circulation du fluide, perte de charge maximale), des contraintes doivent être ajoutées.

Il existe deux types de contraintes : les contraintes fortes qui ne peuvent jamais être violées, et les contraintes faibles qui peuvent être outrepassées afin de laisser une certaine liberté au système. Dans le cas présent, les contraintes fortes seront liées aux exigences physiques du système (saturations sur les entrées et leurs variations) et les contraintes faibles seront liées aux exigences économiques (productivité, consommation d'éluant)

4.4.2 Contraintes fortes

En ce qui concerne les contraintes fortes, nous rappelons que les entrées choisies pour le LMS sont le débit d'éluant Q_{el} , le débit à l'extrait Q_{ext} , le débit de recyclage Q_{IV} et le débit de solide Q_{sol} qui régnerait au sein d'un procédé de LMV équivalent. En considérant l'analogie avec le LMV, ces quatre entrées respectivement $u(1)$, $u(2)$, $u(3)$ et $u(4)$ sont soumises aux contraintes minimales et maximales :

$$\min(i) \leq u(i) \leq u_{max}(i) \quad i = 1, 2, 3, 4 \quad (4.3)$$

Nous pouvons également signaler que le débit au raffinat et les débits dans les sections

I, II et III :

$$Q_{raf} = Q_{el} + Q_{alim} - Q_{ext} = u(1) + Q_{alim} - u(2) \quad (4.4a)$$

$$Q_I = Q_{IV} + Q_{el} = u(3) + u(1) \quad (4.4b)$$

$$Q_{II} = Q_I - Q_{ext} = u(3) + u(1) - u(2) \quad (4.4c)$$

$$Q_{III} = Q_{III} + Q_{alim} = u(3) + u(1) - u(2) + Q_{alim} \quad (4.4d)$$

sont également soumis aux contraintes maximales (perte de charge maximale) et minimales (débits minimaux que les pompes peuvent fournir) :

$$Q_{raf}^{min} \leq u(1) - u(2) + Q_{alim} \leq Q_{raf}^{max} \quad (4.5a)$$

$$Q_I^{min} \leq u(1) + u(3) \leq Q_I^{max} \quad (4.5b)$$

$$Q_{II}^{min} \leq u(1) - u(2) + u(3) \leq Q_{II}^{max} \quad (4.5c)$$

$$Q_{III}^{min} \leq u(1) - u(2) + u(3) + Q_{alim} \leq Q_{III}^{max} \quad (4.5d)$$

4.4.3 Contraintes faibles

Les contraintes faibles portent sur les sorties du procédé et peuvent être violées temporairement. Le procédé doit effectuer sa tâche de séparation en minimisant les coûts de production. Les contraintes faibles seront donc liées aux contraintes économiques, c'est-à-dire aux productivités (à maximiser) et à la consommation d'éluant (à minimiser).

Productivités

Les productivités sont exprimées de la façon suivante par rapport au volume de phase stationnaire V_{PS} :

$$\Phi_v^A = \frac{\overline{n_{raf}^A}}{\rho_{PS} V_{PS}} \quad (4.6a)$$

$$\Phi_v^B = \frac{\overline{n_{ext}^B}}{\rho_{PS} V_{PS}} \quad (4.6b)$$

où $\overline{n_{raf}^A}$ et $\overline{n_{ext}^B}$ désignent respectivement la quantité moyenne de A et de B obtenue au raffinat et à l'extrait. Ces quantités moyennes sont déterminées d'après les équations (4.7) :

$$\overline{n_A^{raf}} = \frac{1}{t_c^{k+1} - t_c^k} \int_{t_c^k}^{t_c^{k+1}} c_A^{raf}(t) Q_{raf}(t) dt \quad (4.7a)$$

$$\overline{n_B^{ext}} = \frac{1}{t_c^{k+1} - t_c^k} \int_{t_c^k}^{t_c^{k+1}} c_B^{ext}(t) Q_{ext}(t) dt \quad (4.7b)$$

Il faut noter qu'il est possible d'ajouter à ces productivités des contraintes fortes minimales, comme cela a été effectué par Natarajan and Lee (2000) :

$$\Phi_v^A \geq \Phi_{v,min}^A \quad (4.8a)$$

$$\Phi_v^B \geq \Phi_{v,min}^B \quad (4.8b)$$

Consommation d'éluant

Afin de répondre aux exigences économiques, la consommation d'éluant doit être minimisée. La consommation d'éluant CE est calculée de la manière suivante :

$$CE = \frac{V_{elu}}{n_{prod}} \quad (4.9)$$

où V_{elu} est le volume d'éluant nécessaire pour obtenir la quantité molaire n_{prod} de produit purifié. Dans le cas du LMS, les produits récupérés sont le produit A au raffinat et le produit B à l'extrait.

4.4.4 Problème d'optimisation

Critère d'optimisation

Le calcul des variations des entrées futures du système s'effectue par minimisation du critère quadratique de l'équation (3.28).

De plus, les contraintes du procédé seront traitées différemment suivant leur nature faible ou forte. Les contraintes fortes seront traitées comme des contraintes du problème d'optimisation, alors que les contraintes faibles seront traitées à l'aide de fonctions de pénalités dans le critère d'optimisation. Ces fonctions de pénalités sont respectivement liées à la maximisation de la productivité moyenne en A au raffinat, à la maximisation de la productivité moyenne en B à l'extrait et à la minimisation de la consommation moyenne d'éluant. En absence de contraintes, la solution du problème d'optimisation minimisant le critère quadratique est explicite. En présence de contraintes fortes, il s'agit d'une optimisation quadratique sous contraintes linéaires (problème QP). En présence de contraintes faibles, il s'agit d'un problème d'optimisation non linéaire.

Fonction de pénalité de la productivité en A

La productivité moyenne en A au raffinat est le rapport de la quantité de A obtenue au raffinat n_{raf}^A par la masse de solide présente dans le système $\rho_{PS}V_{PS}$ (4.6a) et par la durée de fonctionnement. Cette productivité étant définie pour une durée de fonctionnement donnée t_{calc} , dans le cas du problème d'optimisation sur les entrées futures, l'horizon de contrôle H_p doit impérativement faire partie de cette durée t_{calc} . Cette quantité n_{raf}^A se calcule donc pour l'intervalle de temps quelconque décrit par $[t_{ini}, t_{fin}]$ comme suit :

$$\overline{n_{raf}^A} = \frac{1}{t_{fin} - t_{ini}} \int_{t_{ini}}^{t_{fin}} Q_{raf}(t) C_{raf}^A(t) dt \quad (4.10)$$

où $[t_{ini}; t_{fin}]$ décrit l'intervalle de calcul pour la productivité considérée.

La productivité moyenne sur l'intervalle de temps de production $[t_{ini}^{prod}, t_{ini}^{prod} + k.T_e]$ $\overline{\Phi_V^A}$ à l'issue de l'intervalle d'échantillonnage k est définie par :

$$\overline{\Phi_V^A}(k) = \frac{1}{\rho_{PS} V_{PS} k T_e} \int_{t_{ini}^{prod}}^{t_{ini}^{prod} + k.T_e} Q_{raf}(t) C_{raf}^A(t) dt \quad (4.11)$$

où T_e désigne la période d'échantillonnage.

Puisque la production devrait être maximisée, cette fonction de pénalité sera donc négative. En utilisant le vecteur de pondération μ_α , nous pouvons donc écrire la fonction de pénalité :

$$J_1 = \sum_{i=1}^{H_p} \mu_\alpha(i) \overline{\Phi_V^A}(i) \quad (4.12)$$

Fonction de pénalité de la productivité en B

La fonction de pénalité associée sera donc traitée de manière similaire à J_1 , en prenant soin de considérer qu'il s'agit d'une sortie à l'extrait et en utilisant le vecteur de pondération μ_β . De la même manière, cette fonction de pénalité sera négative, puisque la productivité devrait être maximisée. Cette fonction s'écrit donc de la manière suivante :

$$J_2 = \sum_{i=1}^{H_p} \mu_\beta(i) \overline{\Phi_V^B}(i) \quad (4.13)$$

Fonction de pénalité de la consommation d'éluant

Afin de répondre aux exigences économiques, nous allons minimiser la consommation d'éluant. Soit la fonction \overline{CE} proportionnelle à la consommation d'éluant moyenne à l'issue de l'intervalle d'échantillonnage k définie par :

$$\overline{CE}(k) = \frac{\int_t^{t+k.T_e} Q_{elu} dt}{\int_t^{t+k.T_e} n_{raf}^{A*} dt + \int_t^{t+k.T_e} n_{ext}^{B*} dt} \quad (4.14)$$

La fonction de pénalité associée à la consommation d'éluant s'écrit :

$$J_3 = \sum_{i=1}^{H_p} \mu_\gamma(i) \overline{CE}(i) \quad (4.15)$$

des puretés, nous n'avons pas accès à ces valeurs. Nous allons résoudre ce problème en estimant ces concentrations. Le bilan global de matière sur le composé i sur le procédé donne :

$$Q_{alim}^i C_{alim}^i = Q_{ext}^i C_{ext}^i + Q_{raf}^i C_{raf}^i + \frac{dn_{proc}^i}{dt} \quad (4.18)$$

où n_{proc}^i est la quantité de matière du composé i présent dans le procédé. En considérant le fonctionnement du LMS comme voisin de l'état cyclique stationnaire, on peut négliger le terme d'accumulation et considérer ainsi :

$$\begin{aligned} n_{alim}^A &\approx n_{ext}^A + n_{raf}^A \\ n_{alim}^B &\approx n_{ext}^B + n_{raf}^B \end{aligned} \quad (4.19)$$

Rappelons la définition des puretés (sorties du procédé) :

$$\begin{aligned} y_1 &= \frac{n_{ext}^B}{n_{ext}^A + n_{ext}^B} \\ y_2 &= \frac{n_{raf}^A}{n_{raf}^A + n_{raf}^B} \end{aligned} \quad (4.20)$$

A partir des puretés prédites y_i^* :

$$\begin{cases} y_1^* = \frac{n_{ext}^{B*}}{n_{ext}^{A*} + n_{ext}^{B*}} \\ y_2^* = \frac{n_{raf}^{A*}}{n_{raf}^{A*} + n_{raf}^{B*}} \end{cases} \quad (4.21)$$

et du bilan global (4.19), nous pouvons estimer les valeurs futures des quantités de matière en A au raffinat n_{raf}^{A*} et en B à l'extrait n_{ext}^{B*} :

$$\begin{cases} n_{ext}^{B*} \left[\left(\frac{1}{y_1^*} - 1 \right) \left(\frac{1}{y_2^*} - 1 \right) - 1 \right] = n_{alim}^A \left(\frac{1}{y_2^*} - 1 \right) - n_{alim}^B \\ n_{raf}^{A*} \left[\left(\frac{1}{y_2^*} - 1 \right) \left(\frac{1}{y_1^*} - 1 \right) - 1 \right] = n_{alim}^B \left(\frac{1}{y_1^*} - 1 \right) - n_{alim}^A \end{cases} \quad (4.22)$$

4.5 Réponses indicielles du LMV

La figure 4.1 présente les réponses indicielles en boucle ouverte des puretés à l'extrait et au raffinat pour des variations de 4% des débits d'éluant, d'extrait, de recyclage et de solide. Ces réponses ont été utilisées comme modèle linéaire du procédé pour la commande prédictive du lit mobile vrai.

Ces réponses indicielles doivent être considérées de manière parallèle aux réponses indicielles du lit mobile vrai qui ont été présentées dans la section 2.6.4 afin de discuter le caractère fortement non linéaire du lit mobile simulé.

Les réponses de la pureté au raffinat montrent un comportement complexe probablement à deux dynamiques pour des variations de débit d'éluant ou de recyclage. La réponse de la pureté au raffinat pour une variation de débit d'extrait n'atteint pas tout à fait l'état asymptotique dans l'horizon considéré.

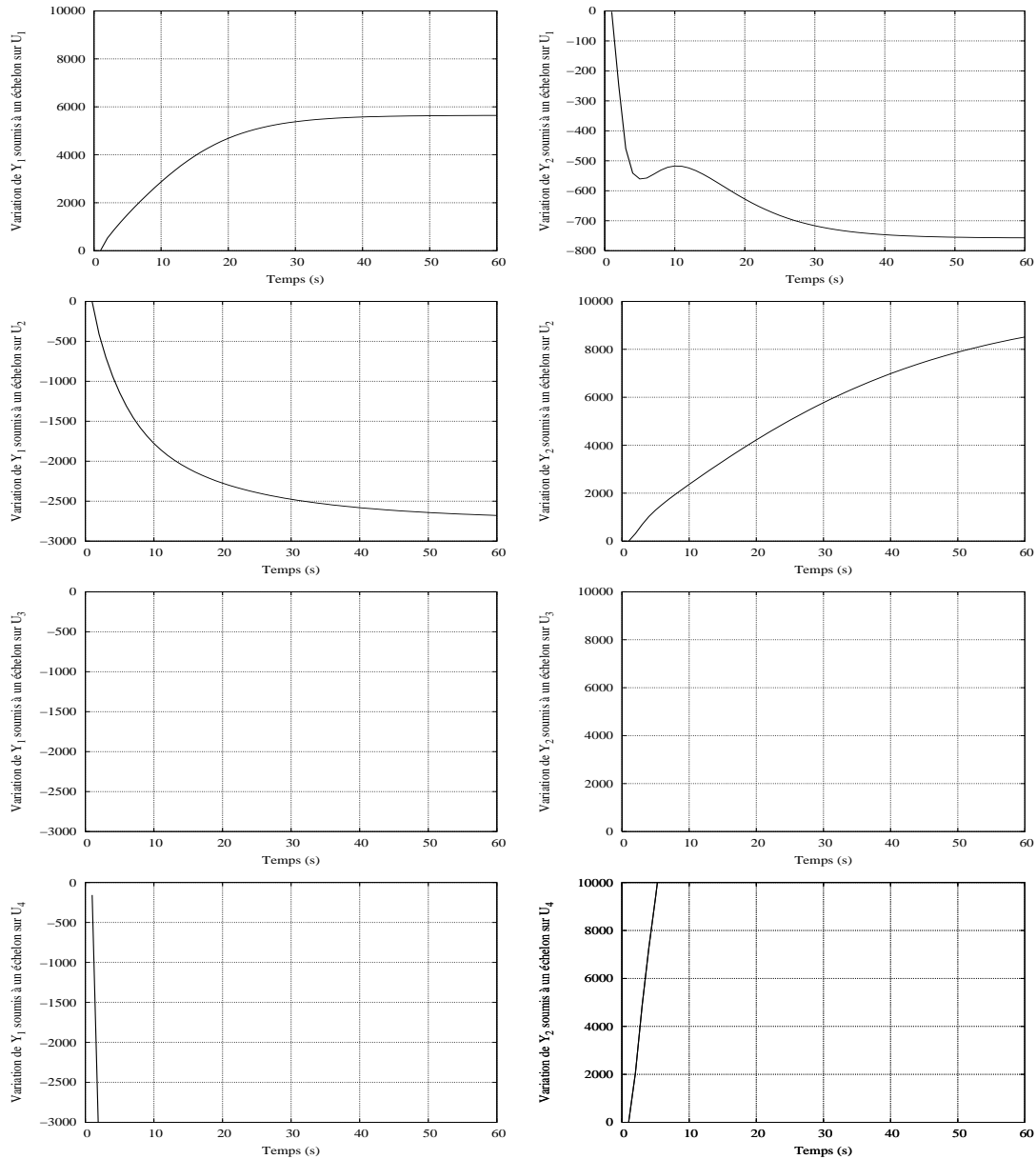


Figure 4.1 – Réponses indicielles en boucle ouverte des puretés à l’extract (colonne de gauche) et au raffinat (colonne de droite) pour des variations de 4% des débits d’éluant, d’extract, de recyclage et de solide (de haut en bas) dans le cas du lit mobile vrai.

4.6 Commande prédictive du LMV

Les mêmes paramètres opératoires pour le lit mobile vrai et le lit mobile simulé ont été utilisé afin de permettre le passage automatique du lit mobile vrai au lit mobile simulé. De plus, afin de comparer les performances de la commande prédictive sur le lit mobile vrai et le lit mobile simulé, les mêmes consignes ont été imposées sur les deux procédés. Au temps

$t = 0$, à partir d'un régime stationnaire donné, le contrôleur est mis en route, puis au temps $t = 20000s$, la consigne 2 change à 0.99, au temps $t = 100000s$ la consigne 1 change à 0.98, au temps $t = 150000s$, la consigne 1 change à 0.99, au temps $t = 250000s$, la consigne 1 revient à sa valeur originale. De cette manière, des purtés élevées sont demandées. A partir de ces changements de consigne, les couplages multivariables devraient apparaître clairement sur les entrées et les sorties.

On applique d'abord la commande prédictive sur le lit mobile vrai qui est un procédé plus simple. Si son comportement est jugé satisfaisant, la loi de commande peut ensuite être transposée au lit mobile simulé en utilisant les équations (2.15) et (2.27). Les sorties du lit mobile vrai sont les purtés instantanées.

Les figures 4.2 montrent que la commande prédictive permet aux sorties du lit mobile vrai de suivre les consignes imposées. De plus, les entrées (Figure 4.3) ont des trajectoires douces qui peuvent être suivies dans la pratique.

4.7 Réponses indicielles du LMS

Les réponses indicielles du lit mobile simulé ont été présentées dans la section 2.6.4. Elles ont permis de mettre en évidence la forte non linéarité du lit mobile simulé. Néanmoins, le modèle linéaire du procédé pour mettre en oeuvre la commande linéaire prédictive repose sur les réponses indicielles du système à travers les coefficients h_i de l'équation (3.1). Si l'on tenait compte du fait que le lit mobile simulé se comporte de manière non linéaire, cela impliquerait que ces coefficients h_i dépendent de la variation de l'entrée Δu imposée. Comme notre intention première est d'utiliser la commande linéaire prédictive, cela impose de faire un choix un peu arbitraire parmi les différentes réponses indicielles pour un couple entrée-sortie donné $u_i - y_j$. Ce choix est guidé par l'étendue du domaine de variation de u que l'on prétend explorer. D'autre part, on peut espérer que le retour de sortie à travers la perturbation d intervenant dans l'équation (3.17) permettra de compenser les erreurs dues aux non linéarités. Les réponses indicielles utilisées par la suite ont été déterminées en appliquant un échelon d'une amplitude de -4% par rapport à une valeur stationnaire de référence. La valeur stationnaire de référence a été choisie proche du point de fonctionnement optimal.

4.8 Simulation du Lit Mobile Simulé en boucle fermée

La simulation du Lit Mobile Simulé en boucle fermée peut être étudiée selon trois modes :

1. la poursuite de consigne en absence de contraintes,
2. la poursuite de consigne en présence de contraintes dures sur les entrées manipulées et les variations des entrées manipulées (par exemple, les débits maximaux ou la vitesse de variation d'un débit),

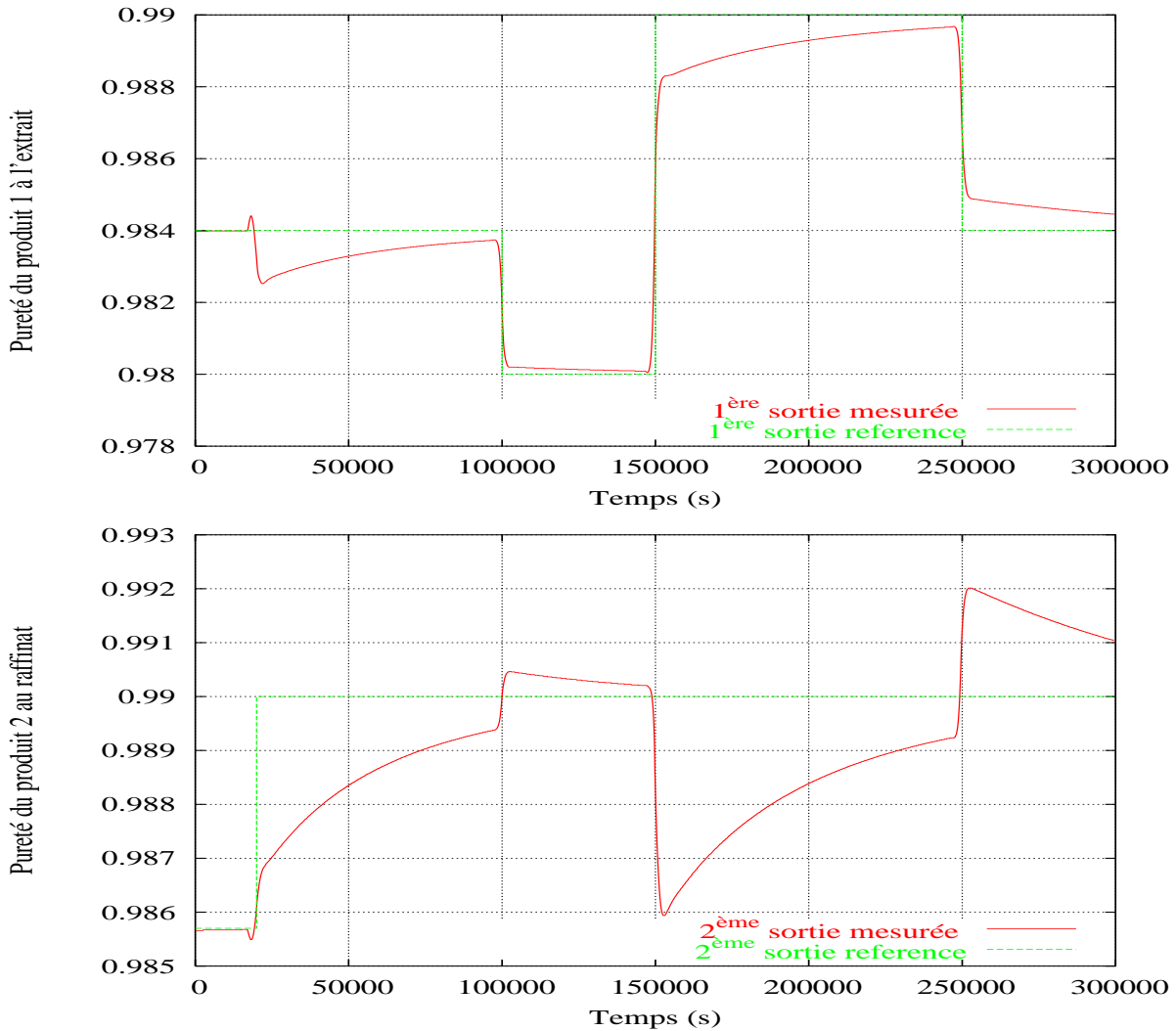


Figure 4.2 – Puretés et consignes à l'extract (haut), et au raffinat (bas) dans le cas de la commande prédictive du lit mobile vrai.

- la poursuite de consigne en présence de contraintes dures sur les entrées manipulées et les variations des entrées manipulées et de contraintes douces sur les sorties commandées.

4.8.1 Poursuite de consigne en absence de contraintes

Dans le cas présent, la poursuite de trajectoire consiste à effectuer un échelon sur une des sorties et à étudier la manière dont la nouvelle consigne est atteinte, comment les autres sorties sont affectées et comment les entrées manipulées ont réagi. En travaillant sans contraintes, le risque est que les entrées prennent des valeurs non physiques.

Les consignes demandées sont décrites dans le tableau 4.2. La figure 4.4 montre que les

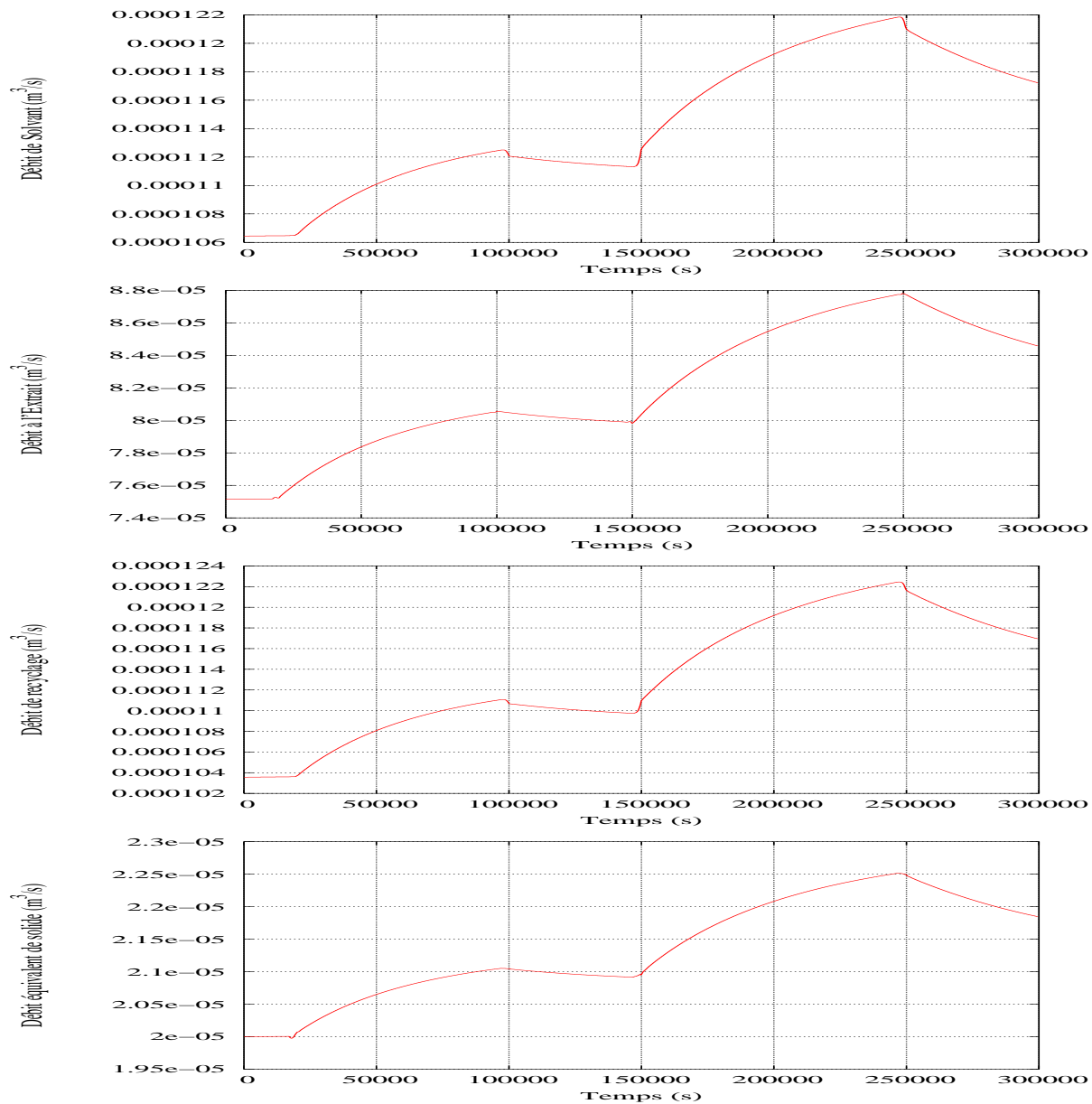


Figure 4.3 – Débits d'éluant, d'extract, de recyclage et de solide (de haut en bas) dans le cas de la commande prédictive du lit mobile vrai.

sorties rejoignent bien leur consigne, mais que cela peut demander un temps élevé : par exemple, la pureté y_2 rejoint sa consigne en environ 6000s, ce qui représente 200 périodes de commutation.

Les figures 4.5 représentent les trajectoires des entrées lors de la poursuite de consigne examinée dans la figure 4.4. Bien que les variations de consignes demandées restent dans une plage très réduite (entre 0.96 et 0.985), on remarque que les variations des entrées manipulées sont importantes et témoignent du domaine opératoire restreint du lit mobile

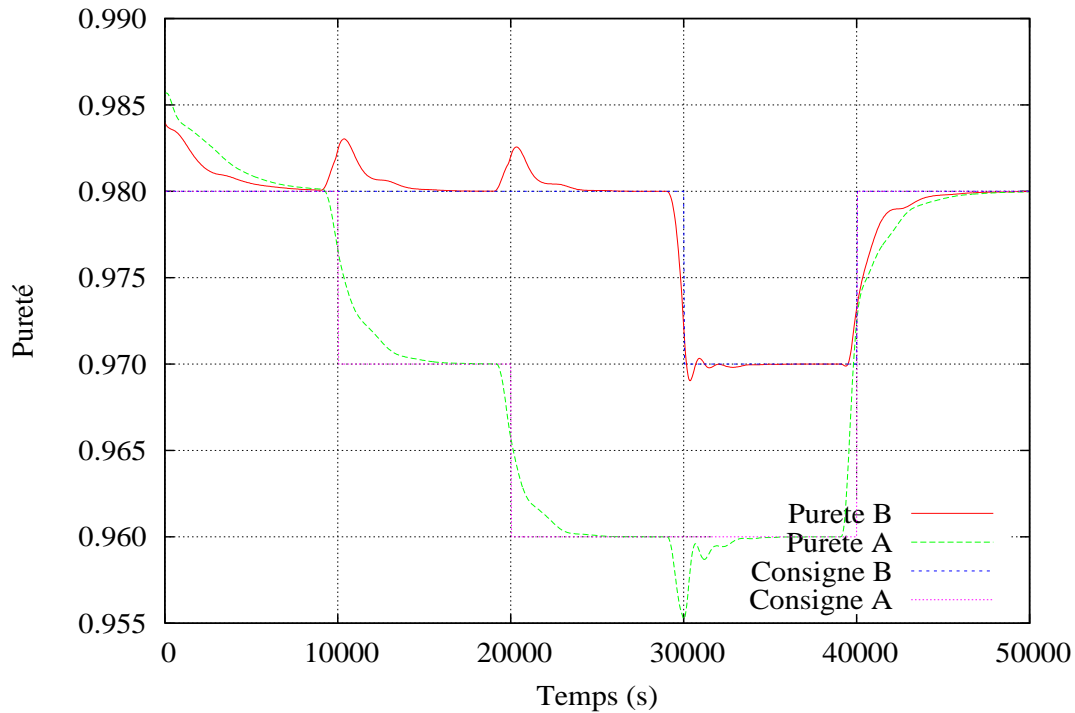


Figure 4.4 – Puretés du lit mobile simulé dans le cas de la poursuite de consigne en absence de contraintes.

Temps (s)	y_{c1}	y_{c2}
0	0.980	0.980
10000	0.980	0.970
20000	0.980	0.960
30000	0.970	0.960
40000	0.980	0.980

Table 4.2 – Consignes utilisées dans le cas de la poursuite de consigne en absence de contraintes.

simulé. Les variations des entrées sont relativement douces.

4.8.2 Poursuite de consigne en présence de contraintes dures

Par rapport à la section 4.8.1, des contraintes dures portant sur les entrées manipulées (débit à l'extrait et débit de recyclage) et leurs variations ont été introduites. Les contraintes imposées sont décrites dans le tableau 4.3

Les figures 4.6 à 4.7 montrent le comportement du procédé lorsque les contraintes dures sont imposées. Les figures 4.7 montrent que les contraintes sur les entrées sont respectées

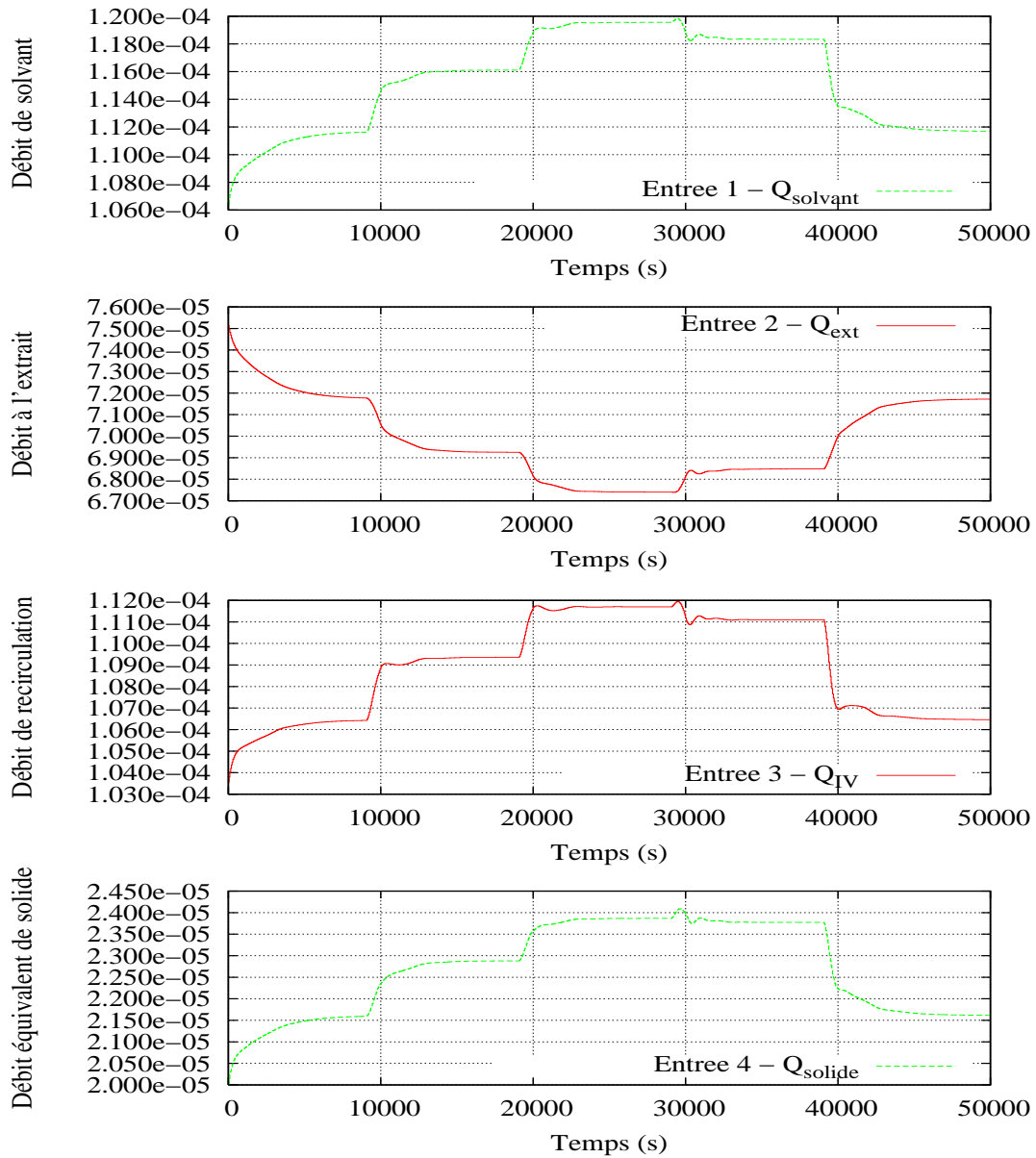


Figure 4.5 – Trajectoire des entrées dans le cas de la poursuite de consigne en absence de contraintes.

même au détriment des sorties (Figure 4.6) qui ne peuvent plus atteindre les consignes désirées.

Contrainte	$Q_{solvant}$		Q_{ext}		Q_{IV}		Q_{sol}	
	min	max	min	max	min	max	min	max
Libre	0	∞	0	∞	0	∞	0	∞
1	96	110	73	77	95	105	17	23
2	96	110	73	77	96	105	17	23
3	98	110	73	77	96	105	17	23
4	102	110	73	77	100	106	17	23

Table 4.3 – Différentes valeurs de contraintes utilisées lors des simulations de poursuite de consigne en présence de contraintes dures sur les entrées.

4.8.3 Poursuite de consigne en présence de contraintes dures et douces

Puisque la gestion des contraintes dures est assurée correctement, il est possible de mettre en évidence la gestion de contraintes douces portant sur les sorties commandées. Les consignes et contraintes douces imposées portant sur les sorties commandées sont décrites dans le tableau 4.4.

Temps (s)	Consigne y_{c1}	Consigne y_{c1}	Contrainte sur y_1	Contrainte sur y_2
0	0.9853	0.9986	$0.978 \leq y_1 \leq 0.988$	$0.994 \leq y_2 \leq 1.000$
20000	0.984	0.995	$0.978 \leq y_1 \leq 0.988$	$0.994 \leq y_2 \leq 1.000$
100000	0.980	0.995	$0.978 \leq y_1 \leq 0.988$	$0.994 \leq y_2 \leq 1.000$
150000	0.990	0.995	$0.978 \leq y_1 \leq 0.988$	$0.994 \leq y_2 \leq 1.000$
250000	0.984	0.995	$0.978 \leq y_1 \leq 0.988$	$0.994 \leq y_2 \leq 1.000$

Table 4.4 – Consignes et contraintes douces utilisées lors des simulations de poursuite de consigne en présence de contraintes douces sur les sorties.

La figure 4.8 montre que les contraintes sont respectées : entre 150000 et 250000s, la sortie y_1 est contrainte à sa valeur maximum 0.988 alors que sa consigne est 0.990 et dans le même intervalle de temps la sortie y_2 viole temporairement (entre 140000 et 170000s) sa contrainte minimum 0.994 puis rejoint sa consigne 0.995.

Les entrées correspondantes sont fournies dans les figures 4.9; elles restent dans des domaines acceptables.

En utilisant les résultats de la section 2.5, il est possible de reporter dans le plan de fonctionnement m_2, m_3 (comme dans (Song et al., 2006a) et (Song et al., 2006b)) la trajectoire suivie lors de cette poursuite de consigne que l'on peut situer par rapport au domaine acceptable.

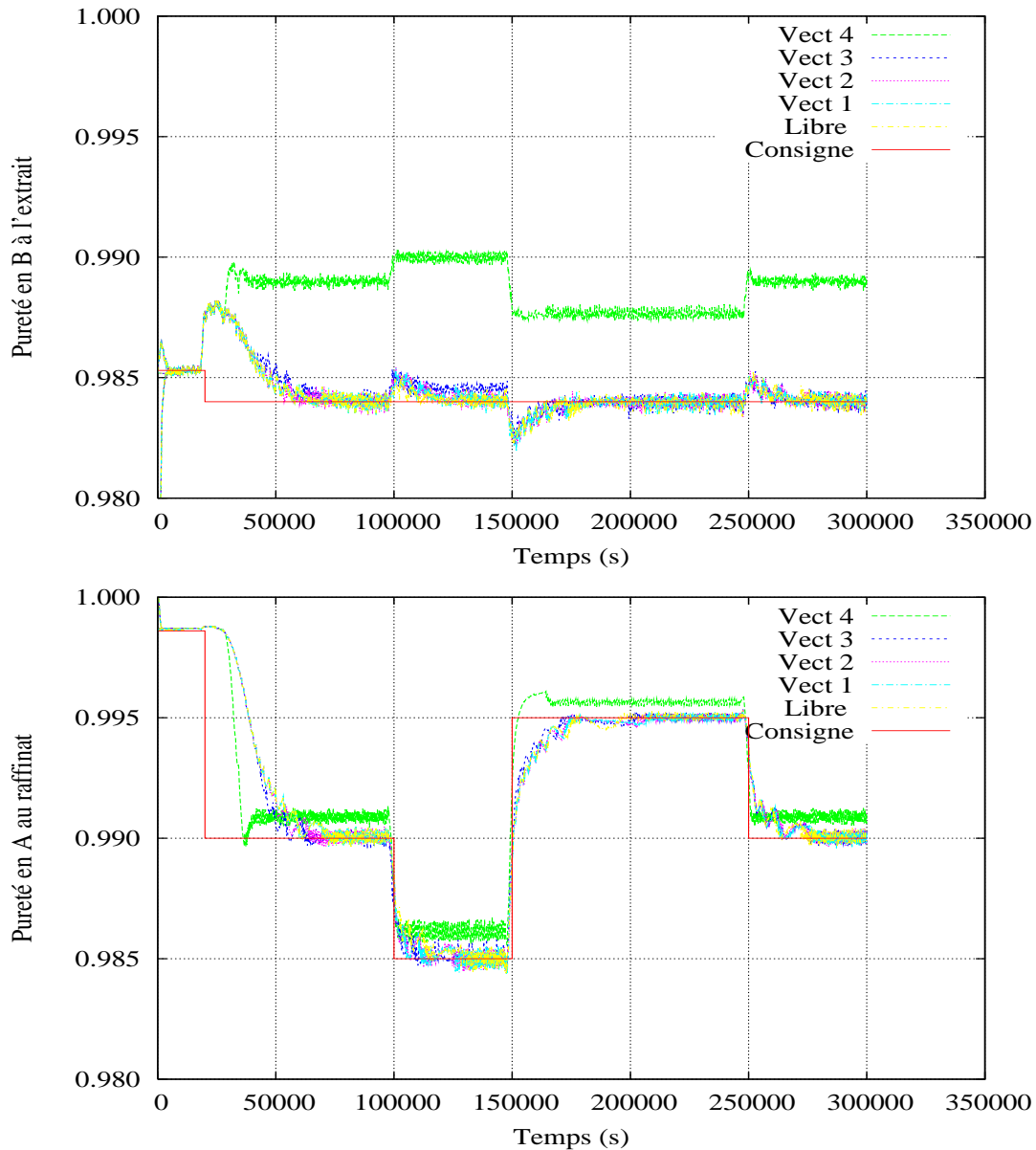


Figure 4.6 – Sorties commandées lors de la poursuite de consignes pour le lit mobile simulé soumis à des contraintes sur les entrées.

Dans un premier temps, les limites du domaine de fonctionnement dans le cas d'utilisation d'isothermes linéaires (comme dans la figure 2.20) sont $m_2 \geq 7.5$ et $m_3 \leq 10.0$ et $m_3 > m_2$. La Figure 4.10 montre que le domaine de fonctionnement réel du procédé est très différent du domaine de fonctionnement issu des calculs des isothermes linéaire.

L'utilisation d'isothermes de Langmuir modifiées donne une zone de fonctionnement normale voisine de celle calculée à partir des isothermes de Langmuir. Le domaine de

fonctionnement réel du procédé se situe dans une zone voisine de la zone de fonctionnement normale calculée à partir des isothermes de Langmuir modifiées ; la faible valeur de la constante de Henry de l'éluant ($H_{elu} = 1$) explique cette légère différence.

Lors de la poursuite de trajectoire soumise à des contraintes, nous avons utilisé des isothermes de Langmuir, et nous pouvons constater (Figure 4.10) que le fonctionnement du procédé reste dans une zone très voisine de la zone de fonctionnement normale, la présence de contraintes et les changements brutaux de consignes ne perturbant nullement le fonctionnement normal du procédé.

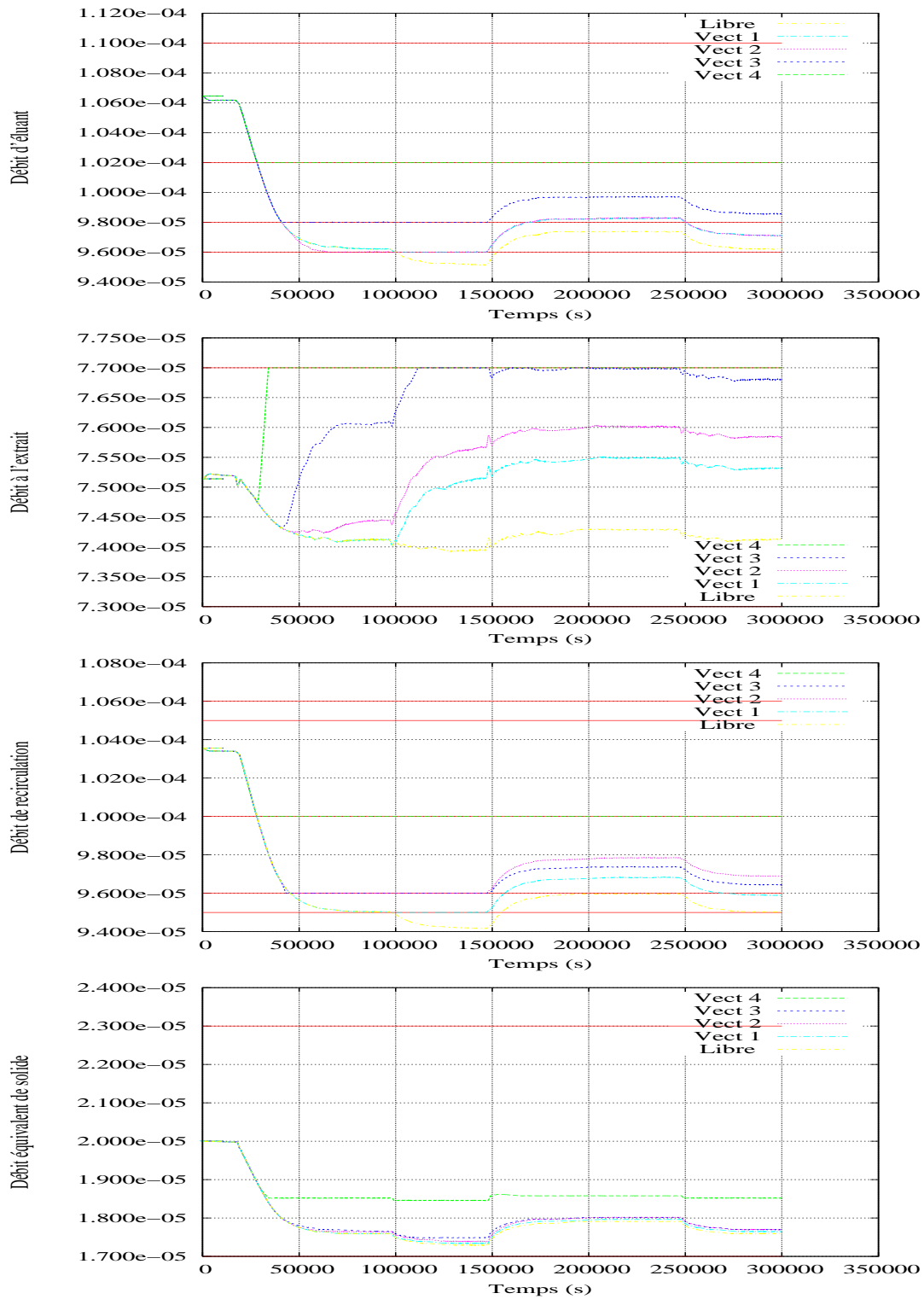


Figure 4.7 – Trajectoire des entrées lors de la poursuite de consignes pour le lit mobile simulé soumis à des contraintes dures sur les entrées.

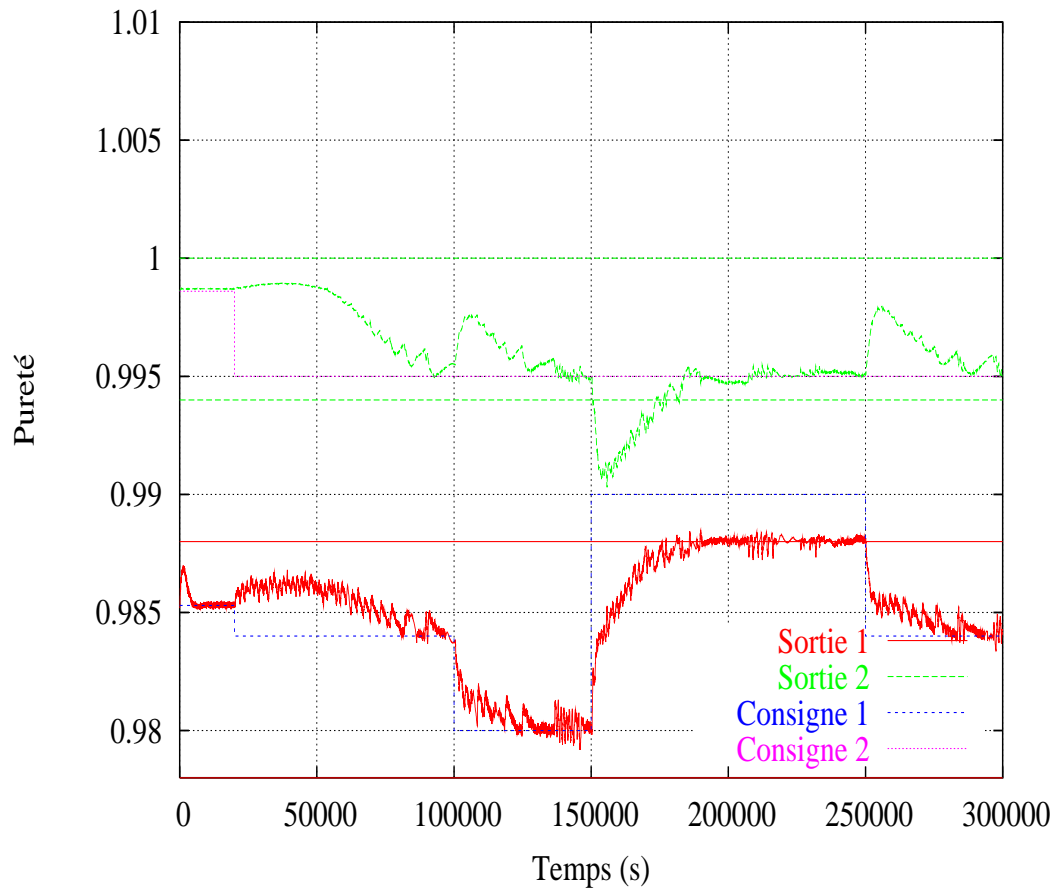


Figure 4.8 – Sorties commandées lors de la poursuite de consigne pour le lit mobile simulé soumis à des contraintes douces sur les sorties.

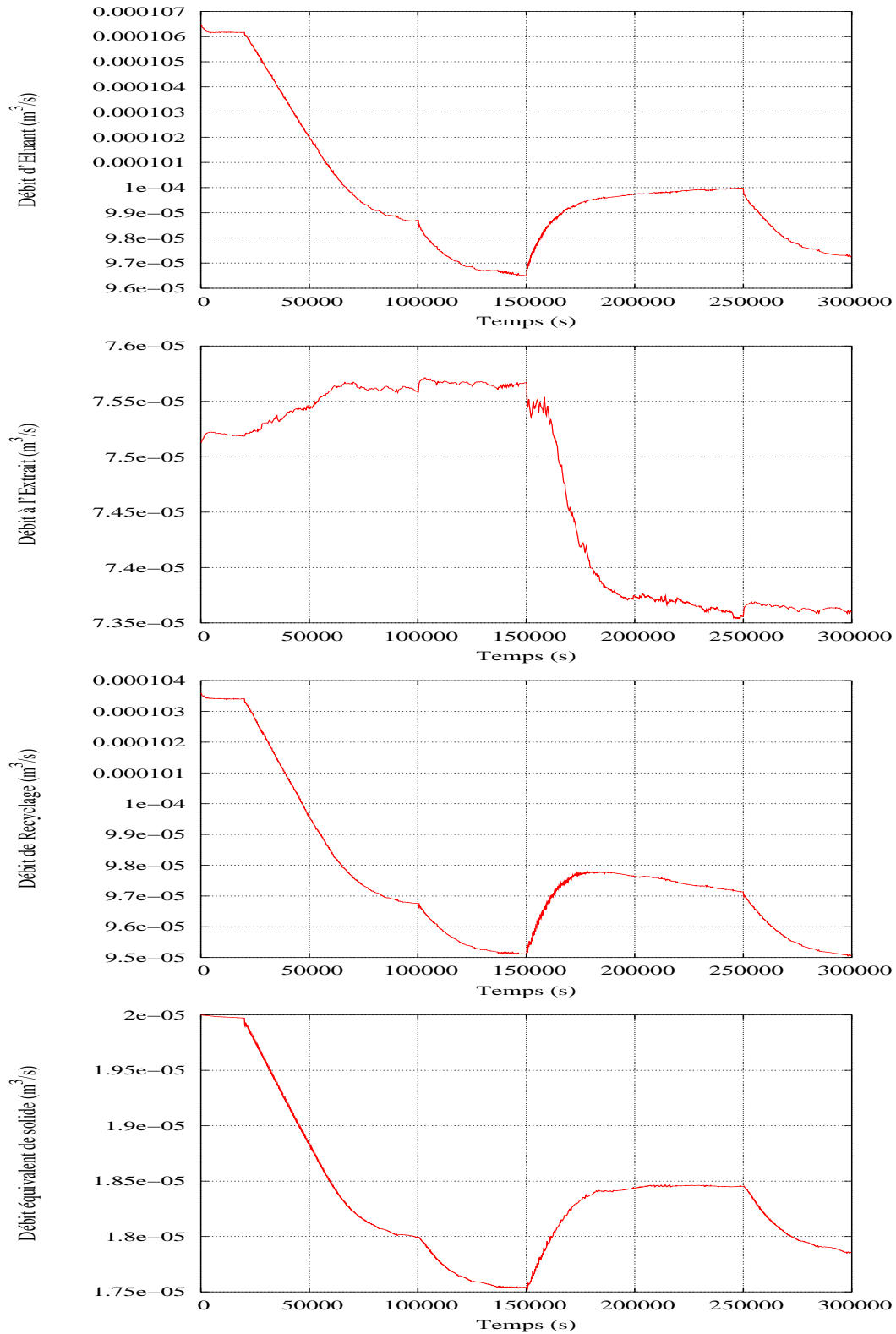


Figure 4.9 – Trajectoire des entrées lors d’une poursuite de consignes pour le procédé de lit mobile simulé soumise à des contraintes douces sur les sorties.

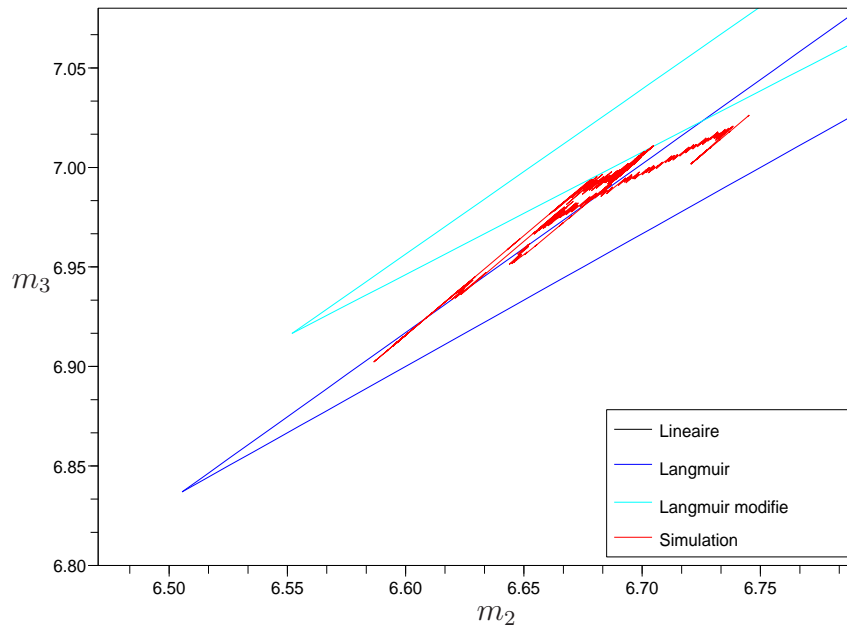
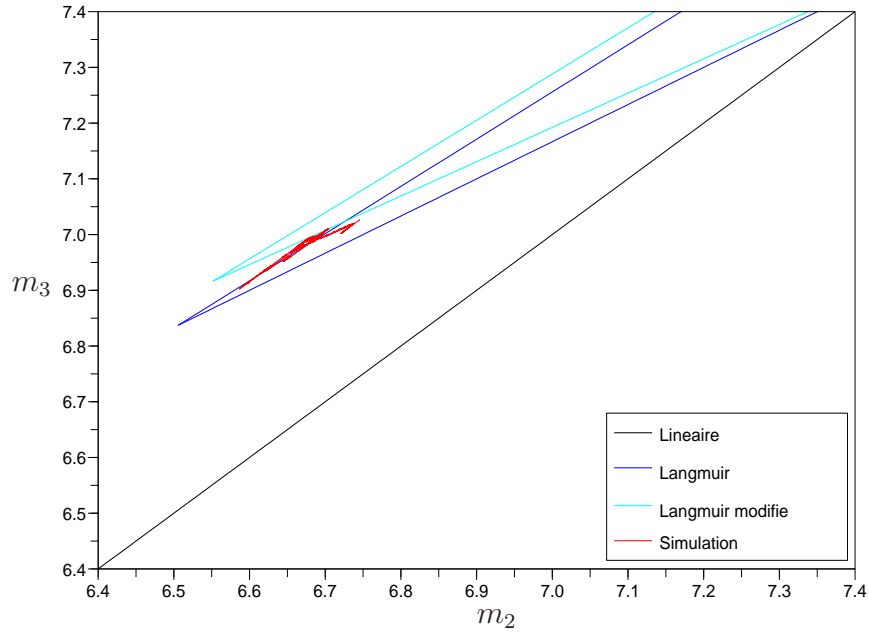


Figure 4.10 – Représentation dans le plan de fonctionnement m_2, m_3 de la trajectoire équivalente des entrées manipulées lors d’une poursuite de consigne pour le procédé de lit mobile simulé soumis à des contraintes douces sur les sorties.

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

Ce travail a permis de réaliser la commande prédictive linéaire du lit mobile simulé en absence et en présence de contraintes. De cette manière, le caractère multivariable du procédé a été géré sans se poser des problèmes de découplage comme cela se produirait pour la commande par régulateurs PID. En absence de contraintes, il a été possible d'assurer la poursuite de trajectoire dans un domaine de fonctionnement pointu, comme cela a été montré dans le plan m_2, m_3 . Plusieurs types de contraintes ont pu être testés :

- des contraintes dures portant en particulier sur les paramètres opératoires du systèmes (débits de liquide ou variations des débits de liquide par exemple)
- des contraintes douces relatives à des critères technico-économiques (les rapports de débits ou la productivité par exemple).

En définissant des domaines de fonctionnement normaux du lit mobile simulé, il a été possible d'introduire des contraintes techniques supplémentaires portant sur des spécificités minimales des différentes zones de fonctionnement du lit mobile simulé. Ces contraintes assurent que les phénomènes d'adsorption et de désorption se déroulent effectivement dans les zones prévues à cet effet et entraînent ainsi la stabilité du procédé.

La définition du modèle linéaire utilisé pour la prédiction est liée au choix des réponses indicielles à un échelon. Or, il est apparu que ces réponses indicielles dépendent d'une part de la valeur relative de l'échelon (l'amplitude) et d'autre part de la valeur réelle de ce même échelon, ce qui démontre le caractère fortement non linéaire du lit mobile simulé. Il serait donc intéressant de remplacer le modèle linéaire des réponses indicielles par un modèle non linéaire du procédé pour réaliser une commande prédictive non linéaire. En simulation, il faudrait que le "vrai" procédé diffère du procédé modèle, ce qui peut être réalisé par des paramètres physiques différents.

Un modèle non linéaire du procédé peut être réalisé de différentes manières (NAR-MAX, réseaux de neurones), mais dans le cas du lit mobile simulé, comme la modélisation rigoureuse est de qualité et que les paramètres physiques peuvent être correctement identifiés par des expériences adéquates, un modèle non linéaire dans l'espace d'état semble le plus approprié en vue de la commande. Toutefois, la connaissance des états implique l'utilisation d'un observateur d'états, utile aussi bien en surveillance qu'en commande, et entraîne donc un développement délicat et assez peu fréquent dans la littérature pour un

système à paramètres distribués tel que le lit mobile simulé.

La stratégie de commande prédictive basée sur le modèle sous forme d'optimisation linéaire sous contraintes telle qu'elle a été utilisée ici, et encore plus sous forme d'optimisation non linéaire sous contraintes non linéaires permet de gérer plus que de simples critères de poursuite de trajectoire et des contraintes dures sur les entrées, c'est-à-dire de véritables critères technico-économiques comme la productivité ou des contraintes douces de qualité.

Il est clair qu'une expérimentation véritable sur un lit simulé pilote aurait été très intéressante. Elle aurait permis de se rendre mieux compte de l'influence des erreurs de modélisation, même si la commande prédictive a la réputation de bien supporter ces erreurs donc d'être robuste. Elle aurait aussi permis d'étudier le problème des mesures avec éventuellement des retards inhérents aux mesures dans le cas de chromatographes en ligne.

Liste des symboles

Lettres Grecques		
ϵ	porosité du lit	(-)
ϵ^*	porosité totale du lit ($\epsilon^* = \epsilon + \epsilon_p(1 - \epsilon)$)	(-)
ϵ_p	porosité du solide	(-)
Γ^∞	concentration maximale de liquide adsorbé	(kg/m^3)
γ_i^j	concentration adimensionnelle de composé i dans la section j dans la phase liquide	(-)
μ_j	rapport de débits volumiques dans la section j	(-)
Ω^F	paramètre caractéristique de l'alimentation	(-)
ρ_f	masse volumique de la phase liquide	(kg/m^3)
θ_i^j	concentration adimensionnelle de composé i dans la section j dans la phase solide	(-)

Indices et Exposants		
D	caractéristique de l'éluant	
E	caractéristique de l'extrait	
F	caractéristique de l'alimentation	
i	indice du composé	
j	indice de la section du lit mobile	
LMS	caractéristique du Lit Mobile Simulé	
LMV	caractéristique du Lit Mobile Vrai	
R	caractéristique du raffinat	

S caractéristique du solide

Variables		
c_i^j	concentration dans la phase liquide du composé i dans la section j	(kg/m^3)
f_i^j	débit de sorption adimensionnel	$(-)$
H_i	constante de Henry pour l'espèce i ($H_i = K_i \cdot \Gamma^\infty / \rho_i$)	$(-)$
K_i	Constante de Langmuir pour l'espèce i	$(-)$
m_j	rapport des débits dans la section j	$(-)$
n_c	nombre de composé à séparer (sans l'éluant)	$(-)$
P_E	Pureté à l'extrait	$(-)$
P_R	Pureté au raffinat	$(-)$
q_i^j	concentration dans la phase solide du composé i dans la section j	(kg/m^3)
q_i^{max}	concentration maximale de composé i dans la phase solide	(kg/m^3)
Q_j	débit de liquide dans la section j	(kg/m^3)
Q_s	débit de solide dans la section j	(kg/m^3)
R_E	Productivité à l'extrait	$(-)$
R_R	Productivité au raffinat	$(-)$
t	unité de temps	(s)
u_j	vitesse de la phase liquide dans la section j	(m/s)
u_S	vitesse de la phase solide	(m/s)
V	volume d'une colonne	(m^3)

Bibliographie

- S. Abel, G. Erdem, M. Mazzotti, M. Morari, and M. Morbidelli. Optimizing control of simulated moving beds– linear isotherm. *Journal of Chromatography A*, 1033(2) : 229–239, 2003.
- A. Al-Ghazzawi, E. Ali, A. Nouh, and E. Zafiriou. On-line tuning strategy for model predictive controllers. *J. Proc. Cont.*, 11 :265–284, 2001.
- M. Alamir, F. Ibrahim, and J.P. Corriou. A flexible nonlinear predictive control scheme for quality/performance handling in nonlinear SMB chromatography. *J. Proc. Control*, 16 :333–344, 2006.
- F. Allgöwer, T. A. Badgwell, J. S. Qin, J. B. Rawlings, and S. J. Wright. Nonlinear predictive control and moving horizon estimation - An introductory overview. In P. M. Frank, editor, *Advances in Control*, pages 391–449. Springer-Verlag, Berlin, 1999.
- B.W. Bequette. Nonlinear control of chemical processes : A review. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30 :1391–1413, 1991.
- L. T. Biegler. Advances in nonlinear programming concepts for process control. *J. Proc. Cont.*, 8(5-6) :301–311, 1998.
- R. R. Bitmead, M. Gevers, and V. Wertz. *Adaptive Optimal Control, The Thinking Man's GPC*. Prentice-Hall, New York, 1990.
- D.B. Broughton and C. Gerhold. Continuous sorption process employing fixed bed of sorbent and moving inlets and outlets, 1961. U.S. Patent 2 985 589.
- E. F. Camacho and C. Bordons. *Model predictive control in the process industry*. Springer-Verlag, Berlin, 1995.
- E. F. Camacho and C. Bordons. *Model predictive control*. Springer-Verlag, Berlin, 1998.
- E. Cavoy, M.-F. Deltent, S. Lehoucq, and D. Miggiano. Laboratory-developed simulated moving bed for chiral drug separations design of the system and separation of tramadol enantiomers. *J. Chromatography A*, 769 :49–57, 1997.
- F. Charton and R.M. Nicoud. Complete design of a simulated moving bed. *J. Chromatography A*, 702 :97–112, 1995.

- F. Charton, M. Bailly, and G. Guiochon. Recycling in preparative liquid chromatography. *Journ. of Chromatography A*, 687(1) :13–31, 1994.
- H. Chen. *Stability and robustness considerations in nonlinear model predictive control*. PhD thesis, Stuttgart University, 1997.
- C. B. Ching, K. H. Chu, K. Hidajat, and M. S. Uddin. Comparative study of flow schemes for a simulated counter-current adsorption separation process. *AIChE J.*, 38(11) :1744–1750, 1992.
- C.B. Ching. Analysis of the performance of a simulated counter-current chromatographic system for fructose-glucose separation. *Can. J. Chem. Eng.*, 62 :398–403, 1984.
- C.B. Ching, B.G. Lim, E.J.D. Lee, and S.C. Ng. Preparative resolution of praziquantel enantiomers by simulated counter-current chromatography. *Journ. of Chromatography A*, 634(2) :215–219, 1993.
- P. D. Christofides. *Nonlinear and Robust control of PDE systems*. Birkhäuser, Boston, 2001.
- D. W. Clarke, C. Mohtadi, and P. S. Tuffs. Generalized predictive control - Part I. The basic algorithm. *Automatica*, 23(2) :137–148, 1987a.
- D. W. Clarke, C. Mohtadi, and P. S. Tuffs. Generalized predictive control - Part II. Extensions and interpretations. *Automatica*, 23(2) :149–160, 1987b.
- J.P. Corriou. *Commande des procédés*. Lavoisier Tec & Doc, Paris, 2nd edition, 2003.
- J.P. Corriou and M. Alamir. A hybrid nonlinear state observer for concentration profiles reconstruction in nonlinear simulated moving bed. *J. Proc. Control*, 16 :345–353, 2006.
- N. Couenne, G. Bornard, J. Chebasier, and D. Humeau. Contrôle et optimisation d’une unité de séparation des xylènes par contre-courant simulé. In *Optimisation Commande en Génie des Procédés*. Système d’Information Modélisation, SIMO 2002, 10 2002.
- J. Crosby and G.N. Shelldrake. *Chirality in Industry*. A.B. Collins, 1992.
- C.R. Cutler and B.L. Ramaker. Dynamic matrix control - a computer control algorithm. In *AIChE Annual Meeting*, Houston, Texas, 1979.
- H. Demircioglu and P. J. Gawthrop. Continuous-time generalized predictive control (CGPC). *Automatica*, 27(1) :55–74, 1991.
- H. Demircioglu and P. J. Gawthrop. Multivariable continuous-time generalized predictive control (MCGPC). *Automatica*, 28(4) :697–713, 1992.
- J. Dingenen. *A practical approach to Chiral Separations by liquid chromatography*, chapter 6, page 115. VCH, 1994.

- F. J. Doyle, B. A. Ogunnaike, and R. K. Pearson. Nonlinear model based control using second order Volterra models. *Automatica*, 31(5) :697–714, 1995.
- G. Dünnebier and K.U. Klatt. Modelling and simulation of nonlinear chromatographic separation processes : a comparison of different modelling approaches. *Chem. Eng. Sci.*, 55 :373–380, 2000.
- G. Dünnebier, I. Weirich, and K.U. Klatt. Computationally efficient dynamic modelling and simulation of simulated moving bed chromatographic processes with linear isotherms. *Chem. Eng. Sci.*, 53 :2537–2546, 1998.
- G. Erdem, S. Abel, M. Morari, M. Mazzotti, and J.H. Lee. Automatic control of simulated moving beds. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 43 :405–421, 2004.
- R. Fletcher. *Practical Methods of Optimization*. Wiley, Chichester, 1991.
- E. R. Francotte and P. Richert. Applications of simulated moving-bed chromatography to the separation of the enantiomers of chiral drugs. *J. Chromatogr. A*, 769 :101–107, 1997.
- J. B. Froisy. Model predictive control : past, present and future. *ISA Transactions*, 33 : 235–243, 1994.
- G. Ganestos and P.E. Barker, editors. *Preparative and Production Scale Chromatography*, chapter 11-15, page 233. IIIB. Marcel Dekker, 1993.
- C. E. Garcia. Quadratic dynamic matrix control of nonlinear processes - an application to a batch reaction process. In *AIChE Annual Meeting*, San Francisco, USA, 1984.
- C. E. Garcia and M. Morari. Internal model control. 1. A unifying review and some new results. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 21 :308–323, 1982.
- C. E. Garcia, D. M. Prett, and M. Morari. Model predictive control : Theory and practice - a survey. *Automatica*, 25(3) :335–348, 1989.
- C.E. Garcia and A.M. Morshedi. Quadratic programming solution of dynamic matrix control (QDMC). *Chem. Eng. Comm.*, 46 :73–87, 1986.
- G. Gattu and E. Zafiriou. Nonlinear quadratic dynamic matrix control with state estimation. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 31 :1096–1104, 1992.
- G. Gattu and E. Zafiriou. Observer based nonlinear quadratic dynamic matrix control for state space and input/output models. *Can. J. Chem. Eng.*, 73 :883–895, 1995.
- M.J. Gattuso, B. McCulloch, and J.W. Priegnitz. Simulated. moving bed (SMB) technology for cost-effective chiral. products. In *Chem Technol Europe*, pages 27–30, 1996.

- H. Genceli and M. Nikolaou. Design of robust constrained model-predictive controllers with Volterra series. *AIChE J.*, 41(9) :2098–2107, 1995.
- A. Gentilini, C. Migliorini, M. Mazzotti, and M. Morbidelli. Optimal operation of simulated moving-beds units for non-linear chromatographic separation II. bi-langmuir isotherm. *Journ. of Chrom. A*, 805 :37–44, 1998.
- P. E. Gill, W. Murray, and M. H. Wright. *Practical optimization*. Academic Press, London, 1981.
- O. Di Giovanni, M. Mazzotti, M. Morbidelli, F. Denet, W. Hauck, and R. Nicoud. Super-critical fluid simulated moving bed chromatography II. Langmuir isotherm. *J. Chromatography A*, 919 :1–12, 2001.
- D.W. Guest. Evaluation of simulated moving bed chromatography for pharmaceutical process development. *Journal of Chromatography A*, 761(1) :159–162, 1997.
- J. Haag, A. Vande Wouwer, S. Lehoucq, and P. Saucez. Modeling and simulation of a SMB chromatographic process designed for enantioseparation. *Cont. Eng. Practice*, 9 : 912–928, 2001.
- K. Hashimoto, M. Yamada, S. Adachi, and Y.A. Shirai. Simulated moving-bed adsorber with three zones for continuous separation of l-phenylalanine and NaCl. *J. Chem. Eng. Japan.*, 22 :432, 1989.
- S.H. Huang, W.S. Lee, and C.K. Lin. *Enzyme separation and purification using improved simulated moving bed chromatography*. S.Aiba, Oxford university press, 1988.
- A. Isidori. *Nonlinear Control Systems*. Springer-Verlag, New York, 3rd edition, 1995.
- R. M. C. De Keyser and A. R. Van Cauwenberghe. Extended prediction self-adaptive control. In *7th IFAC Symposium on Identification and System Parameter Estimation*, pages 1255–1260, Oxford, 1985. Pergamon.
- R. M. C. De Keyser, G. A. Van de Velde, and F. A. G. Dumortier. A comparative study of self-adaptive long-range predictive control methods. *Automatica*, 24(2) :149–, 1988.
- J.N. Kinkel, K.Cabrera, and F. Eisenbeiss. *Preparative and Process-Scale Liquid Chromatography*, chapter 14, page 265. Ellis Horwood, 1991.
- K.U. Klatt, F. Hanisch, G. Dünnebier, and S. Engell. Model-based optimization and control of chromatographic processes. *Comp. Chem. Engng.*, 24 :1119–1126, 2000.
- K.U. Klatt, F. Hanisch, and G. Dünnebier. Model-based control of a simulated moving bed chromatographic process for the separation of fructose and glucose. *J. Proc. Cont.*, 12 :203–219, 2002.

- E. Kloppenburg and E. D. Gilles. Automatic control of the simulated moving bed process for C₈ aromatics separation using asymptotically exact input-output linearization. *J. Proc. Cont.*, 1 :41–50, 1999.
- J. Lee, S. Natarajan, and K. Lee. A model-based predictive control approach to repetitive control of continuous processes with periodic operations. *J. Proc. Control*, 11 :195–, 2001.
- J. H. Lee. Recent advances in model predictive control and other related areas. In *Chemical Process Control-CPC V*, Tahoe, California, 1996.
- J. H. Lee, M. Morari, and C. E. Garcia. State-space interpretation of model predictive control. *Automatica*, 30 :707–717, 1994.
- S. Lehoucq, S. Verhève, A. Vande Wouwer, and E. Cavoy. Smb enantio separation : process development, modeling and operating conditions. *AIChE J.*, 46 :247–256, 2000.
- S. Li, K. Y. Lim, and D. G. Fisher. A state space formulation for model predictive control. *AIChE. J.*, 35(2) :241–249, 1989.
- B.G. Lim and C.B. Ching. Preliminary design of a simulated counter-current chromatographic system for the separation of praziquantel enantiomers. *Journal of Chromatography A*, 734(2) :247–258, 1996.
- L. Ljung. *System Identification. Theory for the user*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, 1987.
- O. Ludemann-Hombourger, G. Pigorini, R.M. Nicoud, D.S. Ross, and G. Terfloth. Application of the VARICOL process to the separation of the isomers of the SB-553261 racemate. *J. Chromatography A*, 947 :59–68, 2002.
- P. Lundström, J. H. Lee, M. Morari, and S. Skogestad. Limitations of dynamic matrix control. *Comp. Chem. Engng.*, 19(4) :409–421, 1995.
- T. Mallmann, B.D. Burris, Z. Ma, and N.H.L. Wang. Standing wave design of nonlinear SMB systems for fructose purification. *AIChE Journal*, 44(12) :2628–2646, 1998.
- B. R. Maner, F. J. Doyle III, B. A. Ogunnaike, and R. K. Pearson. Nonlinear model predictive control of a simulated multivariable polymerization reactor using second-order Volterra models. *Automatica*, 32(9) :1285–1301, 1996.
- D.Q. Mayne. Nonlinear model predictive control : an assessment. In *Chemical Process Control-CPC V*, Tahoe, California, 1996.
- D.Q. Mayne, F. Allgöwer, and A. Zheng. *Nonlinear model predictive control*, volume 26 of *Prog. Syst. Control Theory*, chapter Nonlinear model predictive control : Challenges and opportunities, pages 23–44. Birkhäuser, Basel, 2000a.

- D.Q. Mayne, J.B. Rawlings, C.V. Rao, and P.O.M. Scokaert. Constrained model predictive control : Stability and optimality. *Automatica*, 36 :789–814, 2000b.
- M. Mazzotti, G. Storti, and M. Morbidelli. Robust design of countercurrent adsorption separation processes : 2. Multicomponent systems. *AIChE Journal*, 40(11) :1825–1842, November 1994.
- M. Mazzotti, R. Baciocchi, G. Storti, and M. Morbidelli. Vapor-phase smb adsorptive separation of liner/nonlinear paraffins. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 35 :2312–2321, May 1996a.
- M. Mazzotti, G. Storti, and M. Morbidelli. Robust design of countercurrent adsorption separation : 3. nonstoichiometric system. *AIChE J.*, 42 :2784–2796, 1996b.
- M. Mazzotti, G. Storti, and M. Morbidelli. Optimal operation of simulated moving bed units for nonlinear chromatographic separations. *J. Chromatogr. A*, 769 :3–24, 1997.
- C. Migliorini, M. Mazzotti, and M. Morbidelli. Continuous chromatographic separation through simulated moving beds under linear and nonlinear conditions. *Journ. of Chrom. A*, 827 :161–173, 1998.
- C. Migliorini, M. Mazzotti, and M. Morbidelli. Robust design of countercurrent adsorption separation processes : 5. nonconstant selectivity. *AIChE Journal*, 46(7) :1384–1399, July 2000.
- C. Migliorini, M. Wendlinger, M. Mazzotti, and M. Morbidelli. Temperature gradient operation of a simulated moving bed unit. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 40 :2606–2617, 2001.
- M. Morari and J. H. Lee. Model predictive control : the good, the bad and the ugly. In Y. Arkun and W. H. Ray, editors, *Chemical Process Control-CPC IV*, pages 419–444, Amsterdam, 1991. Elsevier.
- M. Morari and J. H. Lee. Model predictive control : past, present and future. *Comp. Chem. Engng.*, 23 :667–682, 1999.
- M. Morari and E. Zafiriou. *Robust Process Control*. Prentice Hall, 1989.
- A.M. Morshedi. Universal dynamic matrix control. Technical report, Third International Conference on Chemical Process Control, 1986.
- K. R. Muske and J. B. Rawlings. Model predictive control with linear models. *AIChE J.*, 39(2) :262–287, 1993.
- S. Natarajan and J.H. Lee. Repetitive model predictive control applied to a simulated moving bed chromatography system. *Comp. Chem. Engng.*, 24 :1127–1133, 2000.
- M. Negawa and F. Shoji. Optical resolution by simulated moving-bed adsorption technology. *Journ. of Chromatography A*, 590(1) :113–117, 1992.

- R. M. Nicoud. The simulated moving bed : a powerful chromatographic process. *LC-GC Int*, 5 :43–47, 1992.
- M. Oh and C.C. Pantelidest. A modelling and simulation language for combined lumped and distributed parameter systems. *Comp. Chem. Engng.*, 20(6/7) :611–633, 1996.
- L.S. Pais, J.M. Loureiro, and A.E. Rodrigues. Modeling, simulation and operation of a simulated moving bed for continuous chromatographic separation of 1,1'-bi-2-naphtol enantiomers. *Journ. of Chrom. A*, 769 :25–35, 1997.
- S.J. Qin and T. A. Badgwell. An overview of nonlinear model predictive control applications. In F. Allgöwer and A. Zheng, editors, *Non linear model predictive control*, pages 369–392. Birkhäuser, Basel, 2000.
- S.J. Qin and T.A. Badgwell. An overview of industrial model control technology. In *Chemical Process Control-CPC V*, pages 232–255, Tahoe, California, 1996.
- J. B. Rawlings and K. R. Muske. The stability of constrained receding control. *IEEE Transactions on Automatic Control*, 38(10) :1512–1516, 1993.
- J. B. Rawlings, E. S. Meadows, and K. R. Muske. Nonlinear model predictive control : A tutorial and survey. In *Advanced Control of Chemical Processes*, pages 203–224, Kyoto (Japan), 1994. IFAC.
- D. E. Rearick, M. Kearney, and D. D. Costesso. Simulated moving-bed technology in the sweetener industry. *Chemtech*, 27 :36–40, 1997.
- H.K. Rhee, R. Aris, and N. R. Amundson. Multicomponent adsorption in continuous countercurrent exchangers. *Phil. Trans. Roy. Soc. London A*, 269(1194) :187–215, 1971.
- J. Richalet, A. Rault, J.L. Testud, and J. Papon. Model predictive heuristic control : Applications to industrial processes. *Automatica*, 14 :413–428, 1978.
- N. L. Ricker. Model predictive control with state estimation. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 29 : 374–382, 1990.
- N. L. Ricker. Model predictive control : State of the art. In Y. Arkun and W. H. Ray, editors, *Chemical Process Control-CPC IV*, Amsterdam, 1991. Elsevier.
- D. M. Ruthven. *Principles of adsorption and adsorption processes*. John Wiley, New York, 1984.
- J. M. Martin Sanchez and J. Rodellar. *Adaptive predictive control*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1996.
- K. Schittkowski. NLPQL : A Fortran subroutine solving constrained nonlinear programming problems. *Ann. Oper. Res.*, 5 :485–500, 1985.

- H. Schramm, S. Gruner, and A. Kienle. Optimal operation of simulated moving bed chromatographic processes by means of simple feedback control. *Journal of Chromatography*, A(1006) :3–13, 2003.
- M. Schulte, J.N. Kinkel, R.M. Nicoud, and F. Charton. Simulierte gegenstromchromatographie - eine effiziente technik zur herstellung optisch aktiver verbindung im industriellen masstab. *Chemie Ingenieur Technik*, 68 :670–683, 1996.
- N. Seshatre and J. H. Lee. Repetitive model predictive control applied to a simulated moving bed chromatography system. *Computers and Chemical Engineering*, 24 :1127–1133, 2000.
- R. Shridar and D. J. Cooper. A novel tuning strategy for multivariable model predictive control. *ISA Transactions*, 36(4) :273–280, 1998.
- R. Soeterboek. *Predictive control - A unified approach*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1992.
- I.H. Song, M. Amanullah, G. Erdem, M. Mazzotti, and H.K. Rhee. Experimental implementation of identification-based optimizing control of a simulated moving bed process. *J. Chromatography A*, 1113 :60–73, 2006a.
- I.H. Song, S.B. Lee, H.K. Rhee, and M. Mazzotti. Identification and predictive control of a simulated moving bed process : purity control. *Chem Eng. Sci.*, 61 :1973–1986, 2006b.
- G. Storti, M. Mazzotti, M. Morbidelli, and S. Carrà. Robust design of binary countercurrent adsorption separation processes. *AIChE Journal*, 39(3) :471–492, 1993.
- G. Storti, R. Baciocchi, M. Mazzotti, and M. Morbidelli. Design of optimal operating conditions of simulated moving bed adsorptive separation units. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34 :288–301, 1995.
- J. Strube and H. Schmidt-Traub. Dynamic simulation of simulated-moving-bed chromatographic processes. *Comp. Chem. Engng.*, 22(9) :1309–1317, 1998.
- L. Szepeszy, Zs. Sebestyén, I. Fehér, and Z. Nagy. Continuous liquid chromatography. *Journal of Chromatography A.*, 108(2) :285–297, 1975.
- M. Ben Thabet, M. Alamir, M. Bailly, and J. P. Corriou. Nonlinear control of a simulated moving bed. In *Conference on Separation Science and Technologies, AIChE 97, Los Angeles*, pages 1316–1321, 1997.
- A Toumi and S. Engell. Optimization-based control of a reactive simulated moving bed process for glucose isomerization. *Chemical Engineering Science*, 43(14) :3895–3907, 2004.

- P. Van Overschee and B. De Moor. Subspace algorithms for the stochastic identification problem. *Automatica*, 29(3) :649–6, 1993.
- P. Van Overschee and B. De Moor. *Subspace identification for linear systems : theory, implementation, applications*. Kluwer Academic, Dordrecht, 1996.
- H.J. Van Walsem and M.C. Thompson. First european symposium on biochemical engineering science, 1996.
- C. Wang, K.U. Klatt, G. Dünnebier, and F. Hanisch. Neural network-based identification of smb chromatographic processes. *Control Engineering Practice*, 11(8) :949–970, 2003.
- P. C. Wankat. *Large-Scale Adsorption and Chromatography*, volume 1. CRC Press, Boca Raton, Florida, 1986a.
- P. C. Wankat. *Large-Scale Adsorption and Chromatography*, volume 2. CRC Press, Boca Raton, Florida, 1986b.
- B. E. Ydstie. Extended horizon adaptive control. In *IFAC 9th World Congress Budapest Hungary*, pages 911–915, Oxford, 1984. IFAC 9th World Congress, Pergamon.

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

oOo

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Gilles FEVOTTE, Professeur, LAGEP, Université Claude Bernard Lyon I, Villeurbanne

Monsieur Arsène ISAMBERT, Professeur, Ecole Centrale de Paris, Chatenay-Malabry

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur DEJARDIN Nicolas

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Commande prédictive du lit mobile simulé"

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Génie des procédés et des produits »

Fait à Vandœuvre, le 20 septembre 2006

Le Président de l'IN.P.L.,

L. SCHUFFENECKER

