



**HAL**  
open science

## Contribution au contrôle par la modélisation d'un procédé de cristallisation en continu

José Enrique Gonzalez-Ramirez

► **To cite this version:**

José Enrique Gonzalez-Ramirez. Contribution au contrôle par la modélisation d'un procédé de cristallisation en continu. Autre. AgroParisTech, 2012. Français. NNT : 2012AGPT0022 . pastel-00876943

**HAL Id: pastel-00876943**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00876943>**

Submitted on 25 Oct 2013

**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.



## Doctorat ParisTech

### THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

**L'Institut des Sciences et Industries  
du Vivant et de l'Environnement**

**(AgroParisTech)**

**PhD : Sciences et procédés des aliments et bioproduits**

**Spécialité : Génie des procédés**

*présentée et soutenue publiquement par*

**José Enrique GONZALEZ-RAMIREZ**

le 9 mars 2012

# **Contribution au contrôle par la modélisation d'un procédé de cristallisation en continu**

Directeur de thèse : Gilles TRYSTRAM  
Co-Direction de la thèse : Graciela ALVAREZ  
Encadrement de la Thèse: Denis LEDUCQ

## **Jury**

**M. Cristian TRELEA**, Professeur AgroParisTech  
**M. Gilles TRYSTRAM**, Professeur AgroParisTech  
**Mme Graciela ALVAREZ**, Directeur de Recherche, Cemagref/Irstea Antony  
**M. Denis LEDUCQ**, Ingénieur de Recherche, Cemagref/Irstea Antony  
**M. Thierry BENEZECH**, Directeur de Recherche, Inra Lille  
**M. Laurent ROYON**, Professeur, Université de Marne la Vallée

Président  
Directeur de thèse  
Co-Directeur de thèse  
Examinateur  
Rapporteur  
Rapporteur



## REMERCIEMENTS

Je voudrais utiliser ces lignes pour m'exprimer en remerciant sincèrement tous ceux qui ont participé ou intervenu lors de mes études doctorales. Je commence par remercier ma femme pour être restée ces trois ans à mes côtés, pour me donner jour à jour la motivation et la force nécessaires pour mener à bien ce travail doctoral. Merci beaucoup à Yahaira Juliana BADILLO-RODRIGUEZ pour croire toujours en moi.

Je continue mes remerciements à mes parents M. José Socorro GONZALEZ et Mme Esther RAMIREZ pour avoir toujours été en contact permanent, pour leur soutien inconditionnel. Un grand merci également à mes beaux-parents M. Alberto BADILLO et Ma. Elena RODRIGUEZ pour leur appui et leur aide pendant la réalisation de mes études.

Je remercie vivement mon directeur de thèse M. le professeur Gilles TRYSTRAM pour m'avoir donné l'opportunité de réaliser une thèse à l'AgroParisTech et pour le suivi de mon travail. Un grand merci également à Mme Graciela ALVAREZ pour avoir accepté d'être ma codirectrice de thèse et pour toutes les indications durant ces trois années. Un remerciement très spécial pour M. Denis LEDUCQ pour tout son accompagnement, sa confiance et sa disponibilité. Merci beaucoup pour m'avoir soutenu dans tous les moments. A M. Cristian TRELEA, M. Laurent ROYON et M. Thierry BENEZECH merci beaucoup pour avoir accepté participer au jury de soutenance de thèse.

Merci aussi à M. Jacques GUILPART et Mme Laurance FOURNAISON pour toutes les facilités qui m'ont été donné au Cemagref (IRSTEA actuellement) afin de disposer de tous les outils nécessaires pour la réalisation de cette thèse. Je remercie chaleureusement mes amis et collègues Rado, Patrick, Patricia, Carlos, Bouchaid, Christophe, Romuald, Jérôme et tout le groupe GPAN pour leurs conseils et accompagnements.

Très spécialement, merci beaucoup pour mes amis du cœur Mme Monique BRUN D'ARTIS pour tout son soutien, Julien TISSOT pour son amitié et accompagnement, Anne Marie COLLENOT pour la disponibilité et l'aide de tous les instants, Laurent et Ivette pour leur compagnie.

Je finirais en remerciant aussi fortement tous ceux qui ont cru en moi, en commençant par M. le directeur de la Faculté de Sciences Chimiques de la UASLP Dr. Francisco Javier MEDELLIN-RODRÍGUEZ, M. le directeur de recherche de la UASLP Dr. Jorge Fernando TORO-VAZQUEZ, Mme le professeur Lilia CASTILLO-HUERTA, M. le professeur Mario MOSCOSA-SANTILLÁN et Mme le professeur Victoria GISPERT-REYES, tous de chers collègues du travail au Mexique. Merci beaucoup à M. le recteur de l'Universidad Autonoma de San Luis Potosí Lic. Mario GARCIA-VALDEZ et M. le directeur du programme PROMEP/UASLP Dr. Amaury de Jesus POZOS-GUILLÉN pour leur soutien et gestion administrative. Merci beaucoup au programme PROMEP pour l'appui économique par la bourse PROMEP/103.5/08/3535.



**TABLE DES MATIERES**

<b>LISTE DES FIGURES.....</b>	<b>4</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX .....</b>	<b>8</b>
<b>NOMENCLATURE .....</b>	<b>9</b>
<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>12</b>
<b>Chapitre 1 PROCEDES DE CRISTALLISATION: ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE ET TRAVAUX ANTERIEURS.....</b>	<b>13</b>
<b>1.1 Cristallisation dans les procédés alimentaires.....</b>	<b>13</b>
1.1.1 Généralités de la cristallisation dans les procédés alimentaires .....	14
1.1.2 Echangeur à surface raclée pour la cristallisation .....	17
1.1.3 La cristallisation de la crème glacée .....	18
1.1.4 Conclusion.....	24
<b>1.2 Modélisation du procédé de cristallisation.....</b>	<b>24</b>
1.2.1 Mécanismes et aspects cinétiques .....	24
1.2.2 Prédiction de la distribution de taille des cristaux (DTC) par le bilan de population (BP) .....	27
1.2.3 La méthode des moments pour la réduction du modèle de BP .....	30
1.2.4 Aspects thermiques .....	31
1.2.5 Conclusion de l'analyse bibliographique à propos de la modélisation du procédé de cristallisation .....	36
<b>1.3 Le contrôle du procédé de cristallisation en agroalimentaire .....</b>	<b>36</b>
1.3.1 Influence des variables du procédé sur la qualité.....	36
1.3.2 Critères de contrôle pour le cas de la crème glacée .....	41
1.3.3 Capteurs pour la mesure de la qualité de la crème glacée.....	45
1.3.4 Stratégies de contrôle existantes pour la cristallisation de crème glacée .....	47
1.3.5 Perspectives pour le contrôle de la cristallisation .....	47
<b>1.4 Conclusion de l'étude bibliographique.....</b>	<b>49</b>
<b>Chapitre 2 MATERIELS ET METHODES .....</b>	<b>51</b>
<b>2.1 La solution utilisée: mix de sorbet .....</b>	<b>51</b>
<b>2.2 Caractérisation du mix .....</b>	<b>51</b>
2.2.1 Propriétés thermiques .....	52
2.2.2 Caractérisation rhéologique.....	54
<b>2.3 La machine à crème glacée .....</b>	<b>55</b>
2.3.1 Description de la machine à crème glacée ("Freezer") .....	55
<b>2.4 Modification du "Freezer" .....</b>	<b>59</b>
2.4.1 Compresseur à vitesse variable .....	60
2.4.2 Variateurs de fréquence.....	62
<b>2.5 Instrumentation du "Freezer" .....</b>	<b>62</b>
2.5.1 Capteurs.....	63
<b>2.6 Centrale de mesures et d'acquisition de données .....</b>	<b>68</b>
2.6.1 Convertisseurs analogiques-numériques .....	68
2.6.2 Acquisition et traitements des données en ligne .....	68
<b>2.7 Plan d'expériences: approche par surface de réponse .....</b>	<b>71</b>
2.7.1 Plan d'expériences mis en œuvre.....	73

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

2.7.2 Plan d'expériences pour la caractérisation de la machine frigorifique .....	75
<b>2.8 Conclusion .....</b>	<b>75</b>
<b>Chapitre 3 RESULTATS .....</b>	<b>78</b>
<b>3.1 Caractérisation du sorbet .....</b>	<b>79</b>
3.1.1 Caractérisation rhéologique .....	79
3.1.2 Courbe de liquidus et chaleur latente de cristallisation .....	89
<b>3.2 Caractérisation du procédé .....</b>	<b>94</b>
3.2.1 Influence des variables de contrôle sur les propriétés de la crème glacée .....	94
3.2.2 Estimation du coefficient de transfert de chaleur .....	97
3.2.3 Efficacité énergétique du procédé .....	99
<b>3.3 Remarques sur le contrôle de la température d'évaporation.....</b>	<b>101</b>
<b>Chapitre 4 MODELISATION DU CRISTALLISEUR .....</b>	<b>103</b>
<b>4.1 La méthode des moments .....</b>	<b>103</b>
4.1.2 Transformation de l'équation de BP par la méthode des moments .....	104
<b>4.2 Modèle stationnaire du cristalliseur .....</b>	<b>106</b>
4.2.1 Hypothèses .....	106
4.2.2 Aspects thermiques .....	107
<b>4.3 Construction du modèle dynamique.....</b>	<b>109</b>
4.3.1 Bilan d'énergie du racleur: .....	110
4.3.2 Bilan d'énergie pour la paroi d'échange (évaporateur): .....	110
4.3.3 Bilans de masse et d'énergie pour le compresseur : .....	111
4.3.4 Modèle dynamique du cristalliseur .....	112
<b>4.4 Conclusion de la modélisation de la cristallisation de la crème glacée.....</b>	<b>116</b>
<b>4.5 Validation du modèle .....</b>	<b>116</b>
4.5.1 Régime stationnaire .....	116
4.5.2 Régime transitoire .....	118
4.5.3 Conclusion de la modélisation .....	122
<b>4.6 Perspectives pour le contrôle du "Freezer" .....</b>	<b>122</b>
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>123</b>
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>	<b>125</b>
<b>Annexe A LA MACHINE FRIGORIFIQUE, PRINCIPES .....</b>	<b>133</b>
<b>Annexe B CARACTERISATION DE L'ECOULEMENT PAR LA METHODE DE DISTRIBUTION DE TEMPS DE SEJOUR (DTS) .....</b>	<b>136</b>
<b>Annexe C UTILISATION D'UN CALORIMETRE DE MELANGES POUR LA DETERMINATION DE LA FRACTION DE GLACE.....</b>	<b>142</b>

**LISTE DES FIGURES**

Figure 1. 1. Exemples des courbes de solubilité .....	15
Figure 1. 2. Diagramme de sursaturation .....	16
Figure 1. 3. Cristalliseur à surface raclée.....	18
Figure 1. 4. Abaissement du point de congélation de l'eau dans une solution aqueuse (Goff, 1995).....	19
Figure 1. 5. Diagramme de phase d'une solution aqueuse (eau+sucre+composants organiques Hadad 2009). .....	20
Figure 1. 6. Microstructure de la crème glacée .....	21
Figure 1. 7. Procédé de fabrication de la crème glacée (Haddad, 2009) .....	22
Figure 1. 8. Schéma du Freezer, vue de l'ECSR .....	23
Figure 1. 9. Représentation d'une cascade de réacteurs agités pour la modélisation de l'écoulement d'une extrudeuse bi-vis .....	34
Figure 1. 10. Influence du type de sucre et du débit de mix sur la taille moyenne des cristaux de glace pour une crème glacée. Températures de sortie de -4, - 6 et -9°C pour tous les types de sucres et une vitesse de raclage de 500 tr.min <sup>-1</sup> E.M. Drewett et R.W. Hartel (2006).....	38
Figure 1. 11. Influence du débit de mix sur la distribution de taille des cristaux pour une température de sortie de -6 °C et une vitesse de racleur de 500 tr.min <sup>-1</sup> .....	38
Figure 1. 12. Distribution cumulée de la taille des cristaux pour différentes températures de sortie du produit. Vitesse de racleur 500 tr.min <sup>-1</sup> , débit de mix 34 L.h <sup>-1</sup> .....	39
Figure 1. 13. Comparaison de la taille moyenne de bulles d'air avec 80, 100 et 120 % d'overrun à la sortie du "freezer", après stockage de 8 jours à -30 °C et après 6 cycles à -10 °C (cycle 1 de 3 jours, cycle 2 de 9 jours, cycle 3 de 14 jours, cycle 4 de 28 jours, cycle 5 de 56 jours et cycle 6 de 63 jours). .....	40
Figure 1. 14. Comparaison de la taille moyenne des cristaux de glace avec 80, 100 et 120 % d'overrun (Sofjan Hartel 2008).....	40
Figure 1. 15. Liens entre propriétés physiques, microstructure et critères sensoriels .....	43
Figure 1. 16. Machine à crème glacée ("freezer") conventionnelle (Marshall et al., 2003) ....	44
Figure 1. 17. Répartition en pourcentage des consommations électriques des différents moteurs impliqués dans une machine à crème glacée.....	45
Figure 1. 18. Fonctions entre le procédé, les propriétés physiques et l'acceptation des consommateurs.....	48
Figure 1. 19. Structure d'un réseau neuronal pour un attribut sensoriel.....	49
Figure 1. 20. Boucle de contrôle proposée pour le procédé de cristallisation en continu.....	50
Figure 2. 1. Evolution de la fraction de glace et des solides pendant la production de la crème glacée.....	52
Figure 2. 2. Protocole de température pour les mesures du microcalorimétrie pour le Mettler-Toledo <sup>®</sup> DSC (modèle DSC 822e/200W) .....	53
Figure 2. 3. Protocole des mesures rhéologiques .....	55
Figure 2. 4. Le Pilote "Freezer" .....	56
Figure 2. 5. Rotor solide équipé des lames raclées .....	56
Figure 2. 6. Présentation du cycle de réfrigération.....	57
Figure 2. 7. La machine frigorifique pour la production de la crème glacée .....	58



## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Figure 2. 8. Représentation dans le diagramme de Mollier du cycle réel de réfrigération utilisé dans un machine à crème glacée .	59
Figure 2. 9. Diagramme général du "Freezer"	60
Figure 2. 10. Modification de la machine frigorifique	61
Figure 2. 11. Différences dans le cycle de réfrigération. A) Vanne pilote, B) Vitesse du compresseur	62
Figure 2. 12. Instrumentation du "freezer"	63
Figure 2. 13. Sonde Pt100 Baumer <sup>®</sup> 5.8x50 mm	64
Figure 2. 14. Capteurs de pression E912	64
Figure 2. 15. Wattmètre DIGIWATT	65
Figure 2. 16. Tachymètre type FUA9192; gauche: forme du capteur; droite: photo-capteur en face du moteur	66
Figure 2. 17. A gauche Capteur FBRM Modèle S400A-8; à droite vue transversal de la sonde FBRM	66
Figure 2. 18. A gauche: le calcul de la taille de corde; à droite: système de purge pour éviter la condensation	67
Figure 2. 19. Positionnement des sondes PT100 et FBRM	67
Figure 2. 20. Page de démarrage et visualisation générale de la machine à crème glacée. ...	69
Figure 2. 21. Pages dédiés au cristalliseur et au pilotage à distance	70
Figure 2. 22. Visualisation en ligne du diagramme de Mollier pour le réfrigérant R22	71
Figure 2. 23. Plan factoriel complet	72
Figure 2. 24. Plan d'expérience de la composite centrale avec 3 variables de procédé. ....	73
Figure 2. 25. Entrées-sorties du système étudié	74
Figure 2. 26. Entrées-sorties de la machine frigorifique étudiée	75
Figure 3. 1. Courbe d'étalonnage du rhéomètre afin d'éliminer l'effet du couplage magnétique	79
Figure 3. 2. Courbes de l'écoulement « aller-retour » de 50-1200 s <sup>-1</sup> à différentes températures; a) 25,2 % solides b) 32 % solides, c) 37 % solides, d) 52,5 % solides. 200 s <sup>-1</sup> pendant 25 mn.	80
Figure 3. 3. Thermo-dépendance de la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement; a) 25,2 % solide b) 32 % solide, c) 37 % solide, d) 52,5 % solide. 200 s <sup>-1</sup> pendant 25 min	83
Figure 3. 4. Influence de la concentration des solides sur la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement; a) 13 °C, b) 9 °C, c) 5 °C, d) 1 °C, e) -2 °C.	84
Figure 3. 5. Représentation de l'influence de la température par la loi d'Arrhenius	85
Figure 3. 6. Représentation de l'influence de la concentration	87
Figure 3. 7. Comparaison des valeurs expérimentales et calculées à partir du modèle rhéologique	88
Figure 3. 8. Validation du modèle à partir des essais supplémentaires hors du champ d'expériences; a) Courbes d'écoulement expérimentales et modélisées, b) Comparaison des valeurs expérimentales et calculées à partir du modèle. Le protocole expérimental est le même que celui du plan d'expériences: 200 s <sup>-1</sup> pendant 25 min, 1 min à 1000 s <sup>-1</sup> et aller-retour 50-1200 s <sup>-1</sup> . Les vitesses de cisaillement des courbes ont été corrigées en suivant la méthodologie décrite en 4.1.1.2.	88
Figure 3. 9. Courbe de flux de chaleur pour le mix citron à 25,2 % de solides. Méthode: -40 °C pendant 10 min, passage de -40 à 20 °C (2 °Cmin <sup>-1</sup> ) et 20 °C pendant 5 min.	90

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Figure 3. 10. Comparaison entre la courbe de saturation du mix citron analysé et celle d'une solution sucrée .....	91
Figure 3. 11. Evaluation de l'enthalpie en fonction de la température à différentes concentrations de solides .....	92
Figure 3. 12. Comparaison entre la courbe d'enthalpie expérimentale et du modèle .....	93
Figure 3. 13. Surface de réponse pour la température de sortie du sorbet (T glace) en fonction de la température d'évaporation (T évaporation) et le débit du mix; vitesse du racleur 750 tr-min <sup>-1</sup> .....	95
Figure 3. 14. Surface de réponse pour la température de sortie du sorbet (T glace) en fonction de la température d'évaporation (T évaporation) et la vitesse du racleur (V racleur); vitesse du racleur 750 tr-min <sup>-1</sup> .....	95
Figure 3. 15. Surface de réponse pour la taille moyenne des cordes en fonction de la température d'évaporation (T évaporation) et le débit du mix; vitesse du racleur 750 tr-min <sup>-1</sup> .....	96
Figure 3. 16. Surface de réponse pour la taille moyenne des cordes en fonction de la température d'évaporation (T évaporation) et la vitesse du racleur (V racleur); vitesse du racleur 750 tr-min <sup>-1</sup> .....	97
Figure 3. 17. Découpage en deux zones pour l'évaluation du coefficient d'échange .....	98
Figure 3. 18. Comparaison entre le coefficient de transfert chaleur calculé à partir du modèle empirique et les résultats expérimentaux. ....	99
Figure 3. 19. Surface de réponse pour la fonction objective CE par rapport à la température d'évaporation et le débit de mix. Vitesse de racleur 500 tr-s <sup>-1</sup> .....	100
Figure 3. 20. Surface de réponse pour la fonction objective CE par rapport à la température d'évaporation et la vitesse du racleur. Débit de mix 50 kg-h <sup>-1</sup> .....	100
Figure 3. 21. Principe de régulation de puissance du cristalliseur .....	101
Figure 3. 22. Consommation électrique maximale et minimale pour l'installation et pour le compresseur seul. VP = en utilisant une vanne à l'aspiration du compresseur; VC = vitesse variable du compresseur .....	102
Figure 4. 1. Représentation d'un flux piston à l'intérieur de l'échangeur .....	106
Figure 4. 2. Représentation d'une cascade des réacteurs agités pour modéliser l'écoulement pendant la production de la glace dans un ECSR .....	113
Figure 4. 3. Comparaison entre les valeurs de la température de sortie du produit expérimentale et simulée.....	117
Figure 4. 4. Comparaison entre les valeurs de la taille de corde expérimentale et simulée. ....	117
Figure 4. 5. Modélisation de l'influence du débit sur la température. Comparaison modèle-expérience. Température d'évaporation -15,3 °C, vitesse du racleur 750 tr-min <sup>-1</sup> .....	118
Figure 4. 6. Modélisation de l'influence du débit sur la taille de corde. Comparaison modèle-expérience. Température d'évaporation -15,3 °C, vitesse du racleur 750 tr-min <sup>-1</sup> .....	118
Figure 4. 7. Dynamique du système simulé à partir du modèle de 12 réacteurs en cascades. Conditions opératoires: Débit 35 kg-h <sup>-1</sup> , VR 860 tr-min <sup>-1</sup> et VC 750 tr-min <sup>-1</sup> . a) Température du produit; b) Température de paroi; c) Taille moyenne de corde; d) Température du racleur .....	120
Figure 4. 8. Effet du changement de la vitesse du compresseur de 562 à 1025 tr-min <sup>-1</sup> sur les températures du système. Débit de mix 50 kg-h <sup>-1</sup> et vitesse du racleur 652 tr-min <sup>-1</sup> . Changement de vitesse du compresseur au 730 s.....	120

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Figure 4. 9. Effet du changement du débit de 65 à 35 kg-h <sup>-1</sup> sur les températures du système. Vitesse du compresseur et du racleur 750 et 860 tr-min <sup>-1</sup> respectivement. Changement du débit au 610 s. ....	121
Figure 4. 10. Effet du changement du débit de 65 à 35 kg-h <sup>-1</sup> sur la taille moyenne de cordes. Vitesse du compresseur et du racleur 750 et 860 tr-min <sup>-1</sup> respectivement.....	121
Figure A. 1. Transport de chaleur d'une source froide à T <sub>0</sub> vers une source chaude à T <sub>c</sub> .....	133
Figure A. 2. Diagramme T-s et P-g du cycle de compression de vapeur .....	135
Figure B. 1. Exemple d'une courbe de distribution de temps de séjour réalisée par la méthode d'injection d'un pulse de traceur.....	136
Figure B. 2. Système DTS sur le "Freezer" .....	137
Figure B. 3. Comparaison entre le modèle DTS pour une cascade des réacteurs et les résultats expérimentaux Arellano et al., (2011) .....	140
Figure C. 1. Diagramme du fonctionnement du calorimètre .....	142
Figure C. 2. Images réels du calorimètre: a) Vue calorimètre en marche; b) Vue intérieur du calorimètre .....	143
Figure C. 3. Courbe de saturation d'une solution sucrée et concept de la fraction de sucre résiduelle .....	144
Figure C. 4. Etalonnage pour les pertes de chaleur par rapport au temps.....	146
Figure C. 5. Résultat trouvé pour l'estimation de la constante du calorimètre.....	147
Figure C. 6. Exemple de la différentielle de température par rapport au temps pour température de glace de -5.6 °C .....	148

**LISTE DES TABLEAUX**

Tableau 1. 1. Principales applications de la cristallisation dans l'industrie agroalimentaire en fonction du composant qui cristallise (Richard W. Hartel , 2001) .....	13
Tableau 1. 2. Consommation de crème glacée par habitant entre 2002 et 2008 ( <a href="http://www.foodsci.uoguelph.ca">http://www.foodsci.uoguelph.ca</a> , <a href="http://www.les-glaces.com">http://www.les-glaces.com</a> ) .....	20
Tableau 1. 3. Diverses applications de réduction de l'équation de BP par la méthode des moments .....	31
Tableau 1. 4. Critères de qualité de la crème glacée .....	42
Tableau 1. 5. Des méthodologies et capteurs pour la mesure de la qualité d'une crème glacée ou sorbet .....	46
Tableau 2. 1Composition du mix citron utilisé dans les expériences .....	51
Tableau 2. 2. Relations entre valeurs codées et valeurs réelles pour un plan d'expériences factoriel .....	72
Tableau 2. 3. Valeurs minimales et maximales des variables de contrôle de la machine à crème glacée .....	73
Tableau 2. 4. Plan d'expérience pour l'identification des paramètres .....	74
Tableau 2. 5. Plan d'expérience pour la caractérisation de la machine frigorifique .....	75
Tableau 2. 6. Récapitulatif des capteurs en ligne .....	76
Tableau 3. 1. Récapitulation des résultats rhéologiques après correction de la vitesse de cisaillement .....	82
Tableau 3. 2. Résultats pour la création de la variable expérimentale de la température .....	86
Tableau 3. 3. Paramètres pour le modèle rhéologique .....	87
Tableau 3. 4. Températures de fusion pour les solutions du mix citron à différentes concentrations de solides. La concentration de sucre équivalente présente dans chaque échantillon a été mesurée par réfractométrie.....	90
Tableau 3. 5. Valeurs estimées pour le coefficient de transfert de chaleur (U) entre la paroi et le produit en fonction du débit du mix, la vitesse du racleur (VR) et la température d'évaporation ( $T_{\text{évap}}$ ).....	98
Tableau 4. 1. Liste des paramètres et variables du modèle stationnaire .....	109
Tableau 4. 2. Paramètres et variables pour le modèle dynamique .....	116
Tableau 4. 3. Paramètres du modèle .....	116
Tableau 4. 4. Résultats pour le calcul du coefficient individuel de transfert de chaleur .....	119
Tableau B. 1. Caractérisation de l'écoulement dans la forme de nombre des réacteurs en cascade .....	141
Tableau C. 1. Résultats de la calorimétrie de mélanges .....	149

NOMENCLATURE

**Lettres Latines**

A	Terme pré-exponentiel [ $m^{-3}.s^{-1}$ ]
$a_i$	Coefficient du polynôme [-]
C	Concentration de solides [%]
CE	Fonction de coût énergétique [ $J kg^{-1}$ ]
$C_p$	Capacité calorifique [ $J kg^{-1}K^{-1}$ ]
$c_1, c_2$	Constantes d'ajustement [-]
D	Diamètre [m]
$D_m$	Terme de diffusivité radiale [-]
$E_a$	Energie d'activation [ $J mol^{-1}$ ]
$f$	Taux de remplissage [-]
F	Terme de fragmentation [-]
G	Vitesse de croissance [ $m s^{-1}$ ]
$G_c$	Energie d'activation de nucléation [J]
$h$	Enthalpie [ $J Kg^{-1}$ ]
$I_{comp}$	Paramètre d'inertie du compresseur [-]
$h_{eb}$	Coefficient de transfert en ébullition pour le réfrigérant [ $W m^{-2}K^{-1}$ ]
$h_{il}$	Coefficient de transfert de chaleur convectif [ $W m^{-2}K^{-1}$ ]
$h_m$	Enthalpie du mélange diphasique [ $J kg^{-1}$ ]
$h_r$	Coefficient de transfert de chaleur [ $W m^{-2}K^{-1}$ ]
$k_G$	Coefficient de croissance [ $ms^{-1}$ ]
k	Constante de Boltzman [ $1,381.10^{-23} J.K^{-1}$ ]
$k_i$	Vitesse de formation de glace [ $kg s^{-1}m^{-3}C^{-1}$ ]
$k_c$	Constante d'ajustement de fonction de viscosité
K	Indice de consistance [ $Pa s^n$ ]
L	Taille des cristaux [m]
$L_c$	Taille critique des cristaux [m]
$L_{ech}$	Longueur de l'échangeur [m]
m	Masse [kg]
$\dot{m}$	Débit massique [ $kg s^{-1}$ ]
$\dot{m}_g$	Débit massique de glace [ $kg s^{-1}$ ]
$\dot{m}_{mix}$	Débit massique du mix sorbet [ $kg s^{-1}$ ]
$M_j$	Moment j [-]
n	Index de comportement à l'écoulement [-]
N	Vitesse de nucléation [ $m^{-3}s^{-1}$ ]
$n_r$	Nombre de réacteurs agités en série [-]
$\dot{N}$	Vitesse de rotation [ $tr s^{-1}$ ]
$N_{blades}$	Nombre de lames [-]
PS	Surface pondérée par le volume [ $m^{-1}$ ]
$q, Q$	Flux chaleur [W]

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

$R$	Constante universelle des gaz ( $8,41 \text{ [J K}^{-1}\text{mol}^{-1}\text{]})$
$r_e$	Rayon externe [m]
$r_i$	Rayon interne [m]
$(-r_i)$	Vitesse de réaction
$S$	Surface d'échange de chaleur [ $\text{m}^2$ ]
$s$	Entropie [ $\text{J Kg}^{-1}\text{K}^{-1}$ ]
$S'$	Degré de sursaturation [-]
$t$	Temps [s]
$T$	Température [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$T_{\text{cong}}$	Température de congélation [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$T_e$	Température d'évaporation [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$T_f$	Température de fusion [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$T_r$	Température du racleur [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$T_{\text{sat}}$	Température de saturation [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$T_w$	Température de paroi [ $^{\circ}\text{C}$ ]
$u$	Energie interne volumique [ $\text{W m}^{-3}$ ]
$U$	Coefficient global de transfert de chaleur [ $\text{W m}^{-2}\text{K}^{-1}$ ]
$V$	Vitesse [ $\text{m.s}^{-1}$ ]
$V$	Volume [ $\text{m}^3$ ]
$VC$	Vitesse du compresseur [ $\text{tr min}^{-1}$ ]
$\hat{v}$	Volume massique [ $\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$ ]
$W$	Puissance électrique [W]
$x_g$	Fraction massique de glace [-]
$x_i$	Variable de contrôle [-]
$y$	Variable de réponse [-]

### Lettres grecques

$\alpha$	Coefficient de nucléation homogène [ $\text{m}^{-3}\text{s}^{-1}$ ]
$\alpha'$	Coefficient de nucléation homogène [ $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ]
$\beta$	Coefficient de croissance [ $\text{ms}^{-1}$ ]
$\Delta H_f$	Chaleur latente de fusion [ $\text{J kg}^{-1}$ ]
$\delta$	La fonction de Dirac [-]
$\Delta T_w$	Différentiel de température sur la paroi [C]
$\varepsilon$	Exposant du terme de concentration [-]
$\varepsilon_{\text{exp}}$	Erreur expérimentale [-]
$\Phi$	Puissance fournie au système [W]
$\Gamma$	Constante d'ajustement de la viscosité apparente [-]
$\gamma$	Puissance pour l'équation de nucléation homogène [-]
$\gamma'$	Puissance pour l'équation de nucléation hétérogène [-]
$\dot{\gamma}$	Vitesse de cisaillement [ $\text{s}^{-1}$ ]
$\eta$	Viscosité apparente [Pa-s]

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

$\eta_{is}$	Rendement isentropique [-]
$\eta_V$	Rendement volumétrique [-]
$\sigma$	Puissance pour l'équation de croissance [-]
$\varphi_g$	Fraction volumétrique de glace [-]
$\lambda$	Conductivité thermique [ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ ]
$\mu$	Viscosité du produit [Pa-s]
$\mu_s$	Viscosité de la solution [Pa-s]
$\mu_c$	Potentiel chimique [ $\text{J.mol}^{-1}$ ]
$\theta$	Fraction de surface libre de glace par rapport à la surface totale [-]
$\rho$	Masse volumique [ $\text{kg m}^{-3}$ ]
$\Psi$	Densité de population [ $\text{np.m}^{-3}$ ]
$\tau$	Contrainte de cisaillement [Pa]
$\omega_0$	Fraction initiale de solides [-]

### Nombres adimensionnels

Nu	Numéro de Nusselt	$Nu = \frac{h_{it}D}{k}$
$Re_r$	Nombre de Reynolds rotationnel	$Re_r = \frac{\rho \dot{N} D^2}{\mu}$

### Indices

asp	D'aspiration
comp	Du compresseur
crist	De cristallisation
cyl	Du cylindre
elec	Électrique
env	De l'enveloppe
frigo	Frigorifique
in	D'entrée
met	Du métal
paroi	De paroi
racleur	Du racleur
ref	Refoulement
out	De sortie
visqueux	De dissipation visqueuse

### INTRODUCTION

Ce projet de thèse est lié au projet européen "Computer-Aided Food processes for control Engineering" (CAFE), projet qui vise à l'amélioration du contrôle de différents procédés agroalimentaires, tels que la production du vin (bio-production), la microfiltration (séparation), la lyophilisation (conservation) et la cristallisation (structuration).

Parmi les différentes étapes de la chaîne de production de la crème glacée, de nombreux facteurs ont une influence sur la structure finale du produit. L'étape de pré-cristallisation du mix est cependant au cœur du procédé puisque c'est elle qui définit la structure cristalline du produit. Le contrôle de cette étape du procédé est ainsi fondamental pour une maîtrise de la fabrication du produit et de sa qualité. Ce travail de thèse, effectué dans le cadre du projet européen, est dédié à la caractérisation et la modélisation de cette étape de pré-cristallisation afin de contribuer au développement d'un contrôleur.

Comme beaucoup de procédés de l'agroalimentaire, le procédé de fabrication de la crème glacée est couramment conduit par un opérateur qui détermine la qualité de la structure cristalline. La mise en œuvre d'une conduite en boucle fermée se heurte en effet à un certain nombre de difficultés : difficulté de définir la qualité de la crème glacée en termes de propriétés physiques, difficulté de mesurer en ligne ces propriétés, complexité de l'écoulement et des transferts au sein de l'échangeur à surface raclée ne permettant pas une maîtrise des transformations s'y déroulant, complexité de la matière première et du produit final.

Ainsi, ce travail propose de contribuer au développement de boucles fermées de contrôle de procédés de cristallisation dans un échangeur à surface raclée par :

- la caractérisation de l'influence des variables courantes de contrôle sur le phénomène de cristallisation
- la caractérisation expérimentale de l'influence des mêmes variables sur l'installation frigorifique et la consommation énergétique
- le développement d'un modèle réduit dynamique du procédé adapté à la conception de contrôleurs
- une première étape d'optimisation du coût énergétique du procédé

Une caractérisation expérimentale du procédé a été effectuée et a permis de déterminer l'influence des différentes variables de conduite sur des critères tels que la fraction de glace, le diamètre moyen des particules et la performance énergétique du procédé. Un modèle dynamique du procédé, adapté au contrôle et basé sur la résolution du bilan de population par la méthode des moments, a été développé et validé expérimentalement. Cette étape du procédé de cristallisation est également particulièrement consommatrice d'énergie. Une part importante de ce travail est ainsi dédiée à l'aspect énergétique du procédé et au potentiel de réduction de la consommation d'énergie par l'optimisation et le contrôle. Enfin, une analyse du coût énergétique et des pistes d'amélioration de la performance sont également proposées.



## Chapitre 1 PROCÉDES DE CRISTALLISATION: ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE ET TRAVAUX ANTERIEURS

La cristallisation d'une solution est une technologie largement utilisée dans l'industrie chimique et agroalimentaire. Dans la plupart des cas, les caractéristiques de la phase cristalline définit la qualité du produit, sa texture et a également un impact sur sa durée de conservation. Les principaux composants à l'origine des cristaux ou des structures cristallines dans les produits alimentaires sont l'eau, les sucres, les lipides et les amidons. D'autres composants peuvent également être cristallisés, tel que des sels, des acides organiques, des protéines et des émulsifiants (tableau 1.1).

**Tableau 1. 1.** Principales applications de la cristallisation dans l'industrie agroalimentaire en fonction du composant qui cristallise (Richard W. Hartel , 2001)

<b>Composant</b>	<b>Catégories des produits</b>	<b>Exemples</b>
Eau	Desserts congelés Aliments congelés Produits congelés-séchés	Crèmes glacées, yogourt congelé Viandes, fruits et végétales, entrées Café instantané, fruits séchés, viandes ré-hydratables
Sucres	Produits confectionnés Céréales Produits laitiers	Caramel en grain, fondant, produits filtrés, chewing-gum Céréales surgelées Lait en poudre
Alcools de sucre (sorbitol)	Produits confectionnés	Chewing-gum, produit libres de sucre
Lipides	Emulsions Produits confectionnés Aliments cuites	Beurre, margarine Chocolats, enduits composés, caramel Croissants, cookies
Sels	Sel de table Produits laitiers	Chlorure de sodium (NaCl), substituts des sels Lait, fromage
Amidons	Aliments cuits Produits extrudés	Pains, cookies, gâteaux Casse-croûtes
Protéines	Additifs	Lysine
Acides organiques	Additifs en poudre	Acide citrique
Emulsifiants	Additifs	Produits basés en lipides

### 1.1 Cristallisation dans les procédés alimentaires

Dans l'industrie alimentaire, la cristallisation permet de séparer et purifier des composés comme le saccharose, de modifier la texture de produits comme le chocolat, de concentrer une

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

solution par élimination de l'eau sous forme de glace ou encore de conserver un produit par congélation.

D'un point de vue physique, la cristallisation est un changement d'état qui donne lieu à la formation d'une phase solide cristallisée. Pour qu'il y ait cristallisation, il faut que le liquide soit sursaturé. La sursaturation est une notion primordiale de la cristallisation car hors sursaturation, il ne peut y avoir formation ni grossissement des cristaux. Par contre, il ne suffit pas qu'une solution soit sursaturée pour que le phénomène de cristallisation ait lieu ; la présence de cristaux ensemencés, des poussières ou d'autres particules induit la formation des premiers noyaux et est nécessaire.

### 1.1.1 Généralités de la cristallisation dans les procédés alimentaires

#### *La structure cristalline*

Un cristal a une structure géométrique définie et régulière. Généralement cette structure peut être déterminée par l'utilisation de la diffraction de rayons X. Tous les cristaux d'une même substance possèdent des caractéristiques communes bien définies qui résultent de l'arrangement dans l'espace (maille des cristaux). La caractérisation de la phase cristalline permet d'établir de manière irréfutable si un produit a une structure cristalline ou s'il est purement amorphe. A l'état amorphe (qui ne veut pas dire sans ordre), la structure peut encore évoluer vers un état plus stable. La vitesse de cette "transition vitreuse" dépend de la structure et des conditions environnementales de températures et d'humidité.

La forme du cristal dépend également des conditions de fabrication. Si la cristallisation est réalisée trop rapidement par exemple, il y a formation de cristaux en forme d'aiguilles ou de dendrites. Les impuretés peuvent également modifier la forme extérieure du cristal (ex : allongement du cristal de saccharose en présence de raffinose). Les impuretés ont également bien d'autres incidences sur la cristallisation (Jean\_Jacques Bimbenet et al., 2007).

#### *La sursaturation*

Pour qu'il y ait cristallisation, le liquide doit être sursaturé. Il faut donc en premier lieu connaître sa solubilité ou encore la concentration correspondant à la saturation. La concentration de saturation correspond à la quantité maximale de soluté solide que l'on peut dissoudre par unité de solvant. Pour un système soluté – solvant donné, la saturation dépend principalement de la température et assez peu de la pression.

La solubilité est une grandeur thermodynamique d'équilibre entre une phase liquide et une phase solide. Les représentations habituelles de la solubilité ne se font pas cependant par les classiques diagrammes thermodynamiques d'équilibre liquide-solide, mais par une courbe dans un plan température-concentration appelée courbe de solubilité. On peut observer quelques exemples de courbes de solubilité dans l'industrie alimentaire dans la figure 1.1.

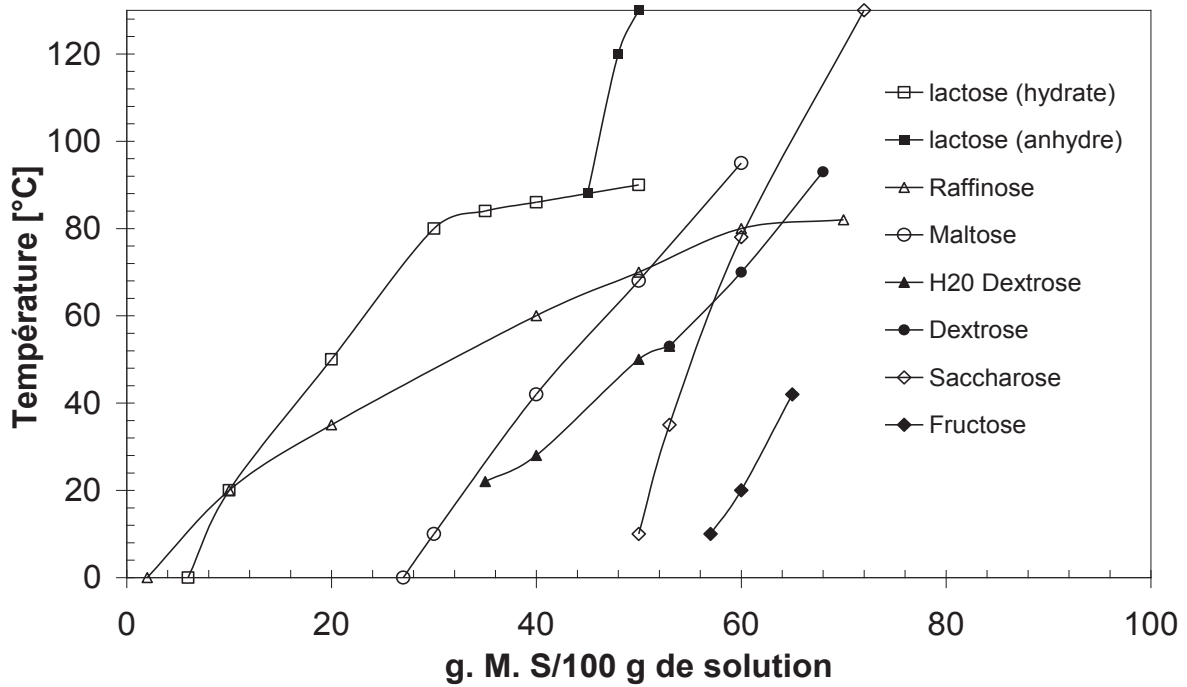


Figure 1. 1. Exemples des courbes de solubilité

Partant d'une solution saturée de concentration  $C^*$ , on peut obtenir une solution sursaturée  $C$  en modifiant la température de la solution (généralement par refroidissement) ou en évaporant le solvant. Toute solution dont la concentration est supérieure à la solubilité (solution sursaturée) évacue donc le soluté en excès sous forme d'un solide, cet excès étant à l'origine du phénomène de cristallisation.

La sursaturation est donc la force motrice pour la nucléation et la croissance des cristaux (Kashchiev et Van Rosmalen, 2003). Elle est définie par une différence de potentiel chimique  $\Delta\mu_c$  (en J/mol) du constituant qui cristallise :

$$\Delta\mu_c = \mu_{cs} - \mu_{cc} \quad (1.1)$$

$\mu_{cs}$  et  $\mu_{cc}$  sont les potentiels chimiques de la molécule étudiée respectivement dans la solution et dans la phase cristalline solide. La molécule a tendance à passer spontanément de la phase où son potentiel chimique est plus élevé vers la phase où il est plus faible. Lorsque  $\Delta\mu_c > 0$ , la solution est sursaturée. A partir de ce moment, la cristallisation est possible. La solution est saturée ou sous-saturée respectivement lorsque  $\Delta\mu_c = 0$  ou  $\Delta\mu_c < 0$  (Kashchiev et Van Rosmalen, 2003).

En utilisant les expressions thermodynamiques connues pour  $\mu_{cs}$  et  $\mu_{cc}$ , on peut présenter  $\Delta\mu_c$  sous la forme :

$$\Delta\mu_c = RT \cdot \ln(S') = RT \cdot \ln\left(\frac{C_s}{C_{eq}}\right) \quad (1.2)$$

$C_s$  est la concentration de la solution,  $C_{eq}$  est la concentration à l'équilibre ou à la saturation c'est-à-dire la solubilité,  $R$  est la constante des gaz parfaits,  $T$  est la température absolue, et  $S'$  le degré de sursaturation ou la sursaturation relative. Ainsi, les différents domaines de saturation de la solution sont définis: à  $S' < 1$ ,  $S' = 1$  ou  $S' > 1$ ; la solution est alors respectivement sous-saturée, saturée ou sursaturée.

### La nucléation

On distingue deux grandes catégories de nucléation (primaire et secondaire) qui délimitent plusieurs zones sur le diagramme de sursaturation (figure 1.2).

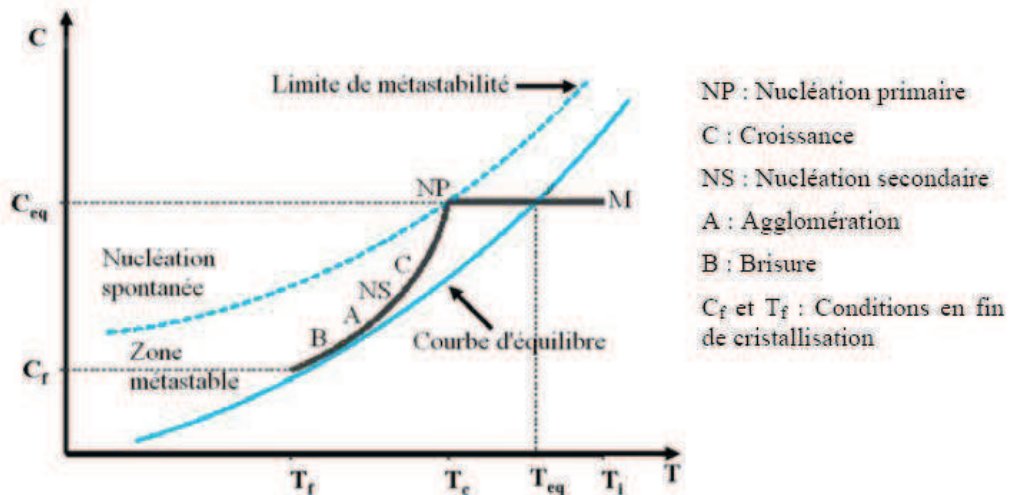


Figure 1. 2. Diagramme de sursaturation

La nucléation primaire, dite encore spontanée consiste en la formation de cristaux très fins. Elle est dite homogène si elle ne nécessite aucune phase solide ; le germe se forme spontanément dans un endroit quelconque de la solution. Elle est dite hétérogène si elle est initiée ou catalysée par la présence de substances étrangères à l'espèce qui cristallise ; les germes peuvent apparaître à la surface si elle est refroidie ; le germe apparaît alors sur les parois, ou sur les particules diverses. Cette nucléation primaire hétérogène est donc très sensible à l'environnement du système cristallisant. Qu'elle soit homogène ou hétérogène, la nucléation primaire ne se produit que si des agrégats en équilibre statique se forment par suite de chocs inter-particulaires et qu'ils atteignent une taille suffisante pour se transformer en nucléi.

La nucléation secondaire est la nucléation qui intervient en présence des cristaux déjà existants ou particules qui ont la fonctionnalité d'agents nucléants. Cette nucléation intervient à un niveau de sursaturation plus faible que la précédente. Plusieurs facteurs peuvent

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

provoquer ce phénomène, seul ou de manière simultanée. On distingue généralement la nucléation due à un contact avec une paroi rugueuse, à la contrainte de cisaillement aux bords des pales de l'agitateur, au fractionnement des cristaux et à l'introduction des germes cristallins.

### *La croissance des cristaux*

Le grossissement ou la croissance des cristaux dans une solution sursaturée est un phénomène très complexe qui n'est pas encore totalement explicité jusqu'alors. Des nombreuses théories ont été avancées, une des plus communément admises est la diffusion. Cette théorie consiste en plusieurs étapes successives au cours de la croissance des cristaux :

- Le soluté est transféré depuis la solution sursaturée jusqu'à la surface du cristal.
- Le soluté est intégré au réseau cristallin au niveau d'un site de cristallisation.
- La chaleur de cristallisation libérée par l'intégration est dissipée. Ce dernier processus est de moindre importance car il limite très rarement la vitesse de croissance des cristaux. Il est souvent négligé et même non mentionné.
- Par ailleurs, la nucléation et la croissance peuvent avoir lieu simultanément tant que la sursaturation existe. La vitesse de nucléation et de croissance dépendent, donc, de la sursaturation.

Les principaux paramètres influençant la croissance des cristaux sont :

1. La sursaturation qui est le réel moteur de la cristallisation. Elle doit être suffisante pour que le phénomène se déroule dans les bonnes conditions, mais surtout pas trop élevée car le risque de nucléation secondaire est alors accru. Par ailleurs, ce facteur est rarement homogène dans tout l'ensemble de l'équipement.
2. L'agitation dont le but est de créer une vitesse relative entre le cristal et l'eau-mère afin d'assurer de bons transferts de matière et de chaleur, ainsi que de maintenir les cristaux en suspension. Toutefois, l'agitation peut entraîner aux extrémités des pales de l'agitateur des contraintes de cisaillement telles qu'il y a nucléation secondaire ou abrasion des cristaux.
3. La viscosité de la solution et de l'ensemble du magma qui limite fortement la vitesse de croissance des cristaux, en particulier, dans les cristallisations avec refroidissement.
4. La température qu'intervient notamment sur la concentration de solubilité, la viscosité et les coefficients de transfert.
5. Enfin la présence des impuretés qu'intervient à plusieurs niveaux dont la solubilité du soluté à cristalliser, la nucléation secondaire et la modification de la forme du cristal mais aussi sur leur adhésion voire leur occlusion dans le cristal.

### 1.1.2 Echangeur à surface raclée pour la cristallisation

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Un type de cristalliseur agité très utilisé en agroalimentaire est l'échangeur de chaleur à surface raclée. Les échangeurs de chaleur à surface raclée sont destinés à traiter en continu ou discontinu des produits fortement visqueux. Ils sont particulièrement employés dans les industries alimentaires (fromages frais, concentrés de fruits, crèmes glacées, chocolats, margarine, beurre, etc.). Dans ces échangeurs de forme cylindrique double enveloppe (figure 1.3), la rotation d'un arbre muni de lames assure un raclage périodique de la surface d'échange généralement refroidie par un composant externe (Mabit Jérôme, et al., 2005). Il en résulte un écoulement particulièrement complexe fortement perturbé par la présence des lames. Au niveau de la surface d'échange, le raclage de la paroi entraîne de forts gradients de vitesse provoqués par le passage de la lame, 10 à 100 fois plus élevés qu'en l'absence de lames (Dumont et al. 2000).

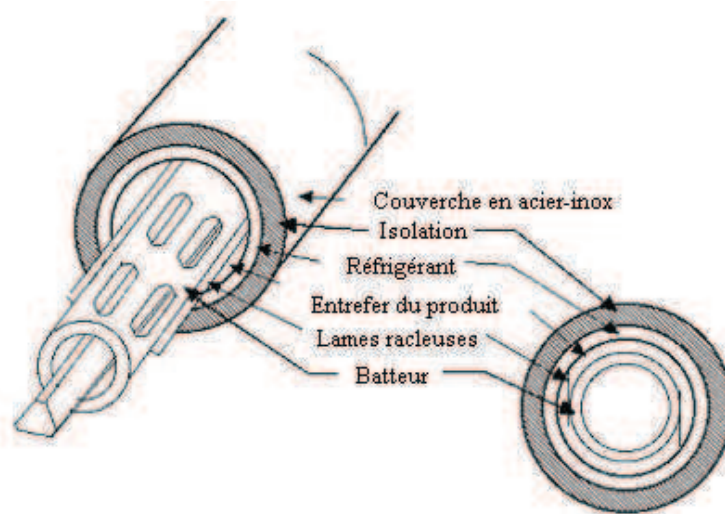


Figure 1. 3. Cristalliseur à surface raclée

Pendant le refroidissement et la cristallisation dans un échangeur de chaleur à surface raclée (ECSR), le processus peut être décomposé en trois étapes avant d'obtenir un milieu diphasique (liquide-solide). La première étape consiste à refroidir l'écoulement jusqu'à une température inférieure à sa température de saturation. La deuxième étape débute avec la nucléation des cristaux qui se caractérise par une élévation de la température du milieu causée par le dégagement de la chaleur latente de fusion de glace. Enfin, dans la dernière étape, la formation des cristaux est continue et la concentration de la solution résiduelle augmente régulièrement. La deuxième étape n'est pas un état stable et dure un temps relativement court. L'évolution de la température lors de la troisième étape est lente (Frank Qin et al., 2006).

### 1.1.3 La cristallisation de la crème glacée

La cristallisation de la crème glacée, au cours du procédé de fabrication, est effectuée habituellement en deux étapes. La première étape consiste en une pré-cristallisation effectuée le plus souvent dans un échangeur de chaleur à surface raclée, où le mix est congelé rapidement et simultanément mélangé à de l'air incorporé. Le produit résultant de cette première étape est un produit partiellement congelé caractérisé par une température comprise

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

entre  $-5$  et  $-6^{\circ}\text{C}$ . A cette température, la fraction en glace d'eau est variable, mais généralement comprise entre 40 et 50%, dépendant de la formulation initiale du mix (R. W. Hartel 1996). La deuxième étape consiste en un refroidissement à cœur du produit jusqu'à la température de  $-18^{\circ}\text{C}$ , opération le plus souvent effectuée dans un équipement de type tunnel de congélation à très basse température (Robert T. Marshall et al., 2003).

Etant donné qu'un mix de crème glacée est une solution aqueuse plus ou moins complexe dont la formulation est : eau, sucre, aromes texturants ou stabilisants, acides et minéraux, la cristallisation de la crème glacée ne se fait pas à température constante. La figure 1.4 présente les courbes de congélation de l'eau pure et d'une solution aqueuse de sucre.

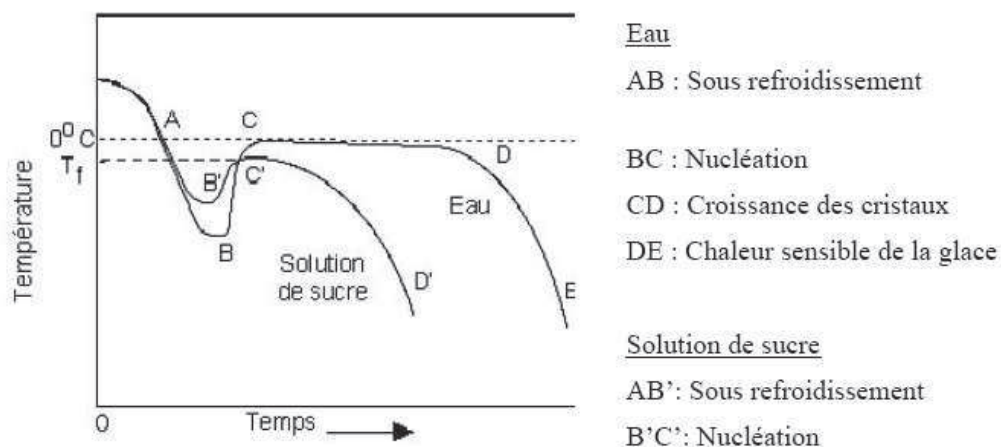


Figure 1. 4. Abaissement du point de congélation de l'eau dans une solution aqueuse (Goff, 1995)

Dans le cas de la solution aqueuse, on constate que la température, contrairement au cas de l'eau pure, n'est pas constante lors du changement de phase. Cette évolution diffère selon la concentration initiale en sucre.

La figure 1.5 présente le diagramme de phase d'une solution de saccharose. Considérons le refroidissement d'une telle solution initialement à l'état liquide. Selon la teneur en saccharose, la solution atteint l'une ou l'autre ligne du liquidus. Dans le cas d'une solution peu concentrée (d'une concentration inférieure à la concentration eutectique), c'est l'eau liquide qui cristallise en glace. Le premier cristal de glace apparaît – outre les problèmes de surfusion – lorsque l'on atteint la courbe de liquidus sur le point de congélation (par exemple au point A). L'eau en se cristallisant, concentre la solution résiduelle au fur et à mesure que la fraction de glace augmente. La fraction de sucre dans la solution résiduelle augmente alors progressivement. La composition du liquide résiduel s'enrichit en suivant la courbe de liquidus, jusqu'à atteindre la concentration eutectique (point B). Si l'on continue le refroidissement, le liquide résiduel se solidifie alors complètement lorsqu'il atteint la courbe de transition vitreuse (C).

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

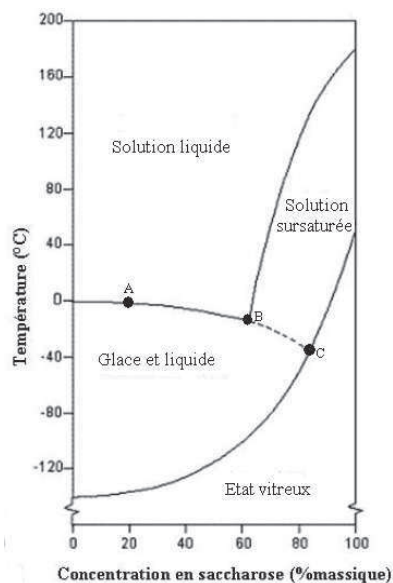


Figure 1. 5. Diagramme de phase d'une solution aqueuse (eau+sucre+composants organiques Hadad 2009).

### *Généralités quant à la crème glacée*

L'industrie de la crème glacée s'est développée durant les 65 dernières années (H. Douglas Goff, 2008). Le tableau 1.2 présente la consommation par habitant de plusieurs pays. En France, la consommation atteint 6 litres par habitant et par an, soit 363 millions de litres de crème glacée par année.

Tableau 1. 2. Consommation de crème glacée par habitant entre 2002 et 2008 (<http://www.foodsci.uoguelph.ca>, <http://www.les-glaces.com>)

Pays	Litres per capita
Nouvelle Zélande	22-23 (2006)
Etats Unis	18,3 (2007)
Australie	~18,0 (2007)
Finlande	~14,0 (2006)
Suède	12,4 (2008)
Canada	8,7 (2007)
Italie	9,3 (2008)
Irlande	9,0 (2002)
Danemark	8,7 (2002)
Royaume Uni	8,6 (2008)
Allemagne	7,3 (2008)
France	6,0 (2008)
Chili	5,6 (2002)
Malaisie	2,0 (2002)
Chine	1,9 (2002)
Japon	0,01 (2002)



## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

La qualité de ce produit dépend pour une bonne part de la composition du mix. La composition générale d'un mix est donnée par Goff (2008):

- 10 à 16% de matière grasse d'origine laitière
- 9 à 12 % de matières solides issues du lait; principalement des protéines et carbohydrates
- 12 à 16 % de sucre
- 0.2 à 0.5% de stabilisants et émulsifiants.
- Entre 55 à 64% d'eau.

Cette composition peut varier en fonction des mix souhaités, en substituant les composants à base de lait par des produits à base de fruits dans le cas de sorbets. De l'air est finalement incorporé dès le début de la phase de pré-cristallisation (Marshall et al. 2003). Ainsi, la microstructure du produit est constituée de bulles d'air, de cristaux de glace et de globules de gras dans le cas des crèmes glacées, distribués dans une phase continue de solution non congelée (figure 1.6).

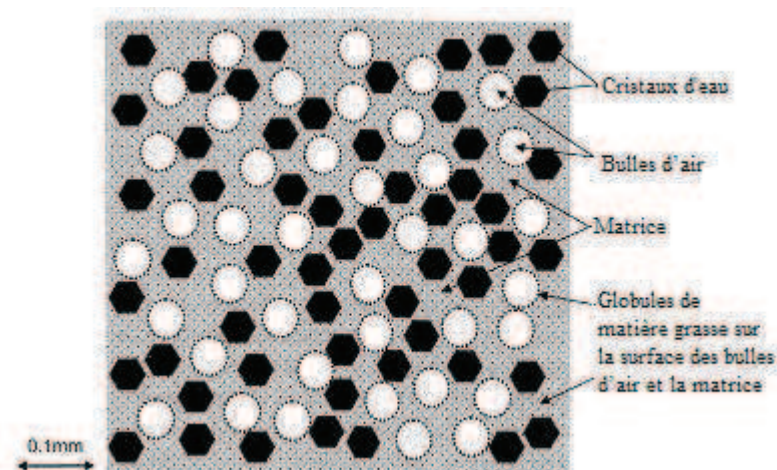


Figure 1. 6. Microstructure de la crème glacée

### *Le procédé de production de la crème glacée*

La fabrication des crèmes glacées consiste en une succession de plusieurs opérations unitaires. Ces étapes sont détaillées sur la Figure 1.7. Sur cette figure, nous présentons également les différents phénomènes physiques qui peuvent avoir lieu et les principaux impacts de ces étapes sur le produit.

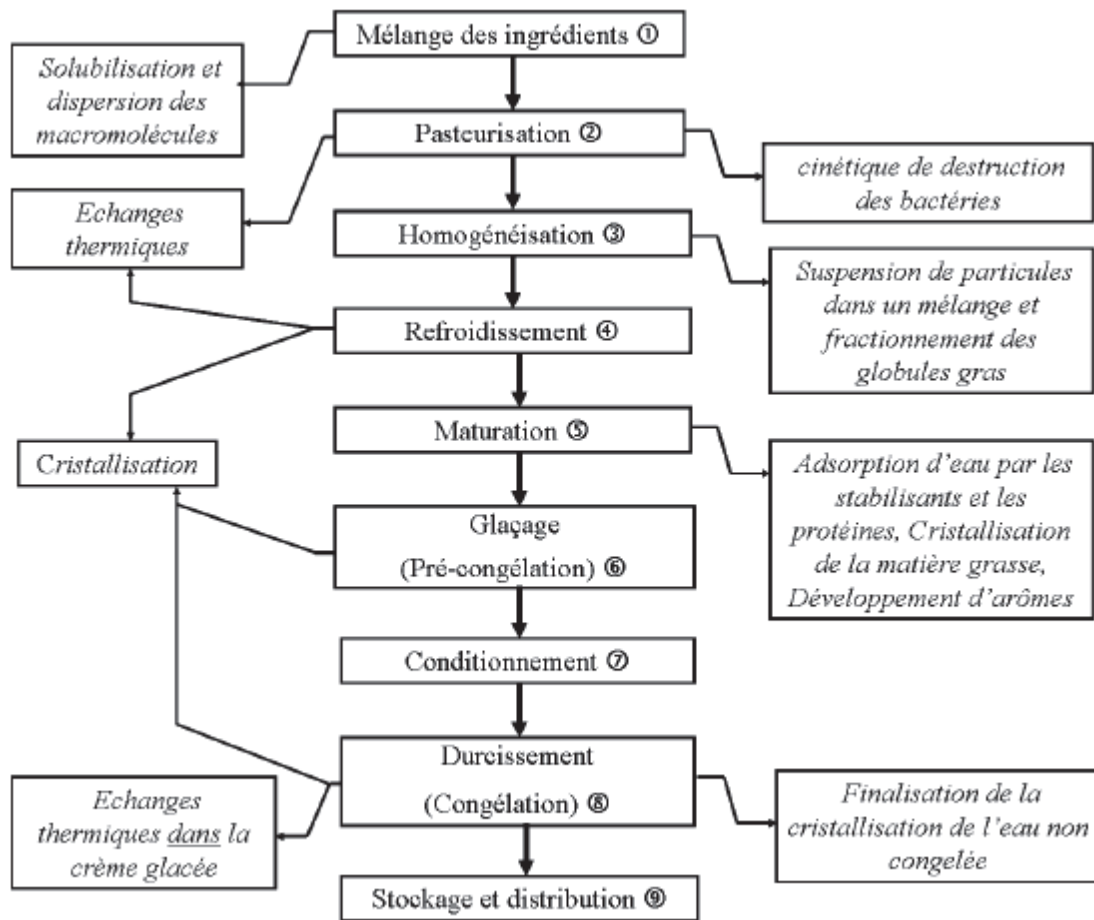


Figure 1. 7. Procédé de fabrication de la crème glacée (Haddad, 2009)

Ces opérations peuvent être divisées en deux grandes étapes distinctes : la préparation du mélange appelé couramment mix et la transformation du mix en sorbet ou crème glacée par congélation et surgélation.

- Préparation des mix

La première opération consiste à mélanger les différents ingrédients. Le « mix » ainsi formé subit alors une pasteurisation puis une homogénéisation. Ces premières étapes dispersent notamment la matière grasse en des globules gras plus petits et plus uniformes. Par exemple, dans un lait à 3,5% de matières grasses, l'homogénéisation réduit le diamètre moyen du globule gras de 3,3 à 0,4  $\mu\text{m}$  (Walstra et Jenness, 1984 d'après Goff, 1997). Cette diminution de la taille des globules gras offre une meilleure capacité au fouettage et un produit final plus crémeux et plus uniforme. Le mix est ensuite refroidi avant la maturation. Cette dernière étape correspond à une maturation physicochimique : les globules gras sont partiellement cristallisés ; les protéines du lait et les stabilisants sont mieux solubilisés et les protéines sont adsorbées sur les globules gras. Une certaine augmentation de la viscosité survient au cours de cette étape. Ces modifications contribuent à faciliter le foisonnement, à produire un produit final de texture encore plus crémeuse et à stabiliser la glace vis à vis de la fonte. D'autres ingrédients tels que les arômes, les colorants et les fruits peuvent être ajoutés.

▪ Congélation du mix

La congélation de la crème glacée est constituée de deux étapes distinctes: le glaçage et le durcissement. Le glaçage (ou pré-congélation) du mix s'effectue en continu dans un échangeur de chaleur à surface raclée appelé "freezer" permettant une formation rapide des cristaux de glace et l'incorporation des bulles d'air (Figure 1.8). Il est à la fois un échangeur de chaleur à surface raclée et un mélangeur. Il est équipé d'un rotor en acier inoxydable muni de lames racleuses qui tournent de 100 à 1000 tours par minute à l'intérieur d'un tube métallique. Ces lames racleuses permettent d'arracher les cristaux de glace formés à la surface. Pour congeler l'eau, on utilise des fluides frigorigènes tels que l'ammoniac que l'on fait évaporer dans une double enveloppe à des températures comprises entre -30 et -10 °C.

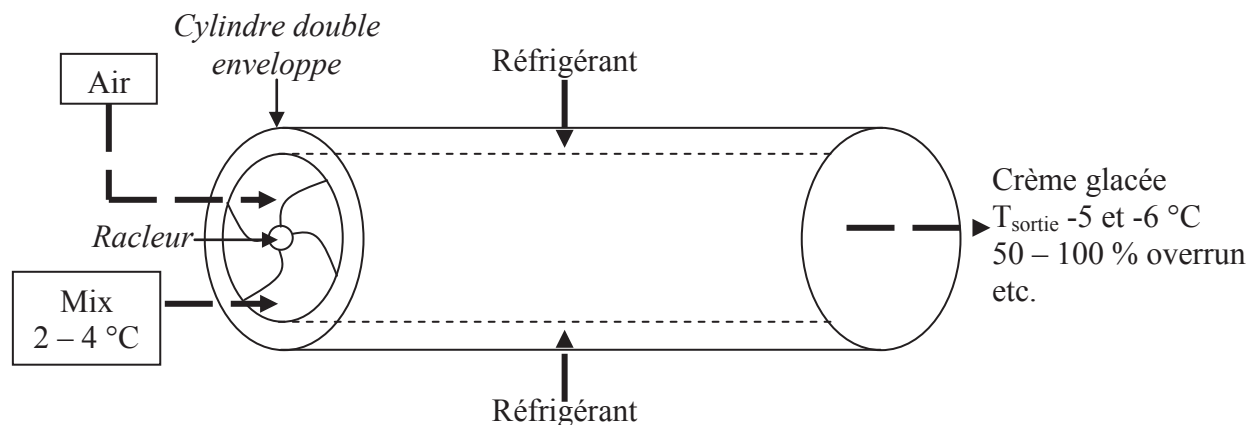


Figure 1. 8. Schéma du Freezer, vue de l'ECSR

Le glaçage doit être réalisé le plus rapidement possible afin d'obtenir des cristaux de glace de petite taille. Le mix entre à une température proche de 0 °C et à la sortie, les températures peuvent varier entre -5 et -6°C en fonction du type du produit fabriqué. En effet, la température de sortie correspond à une concentration de cristaux de glace et donc à une consistance. Des températures de sortie du produit plus basses que -10°C peuvent être obtenues dans des systèmes à deux étapes de congélation. Plus récemment, pour obtenir des températures de sortie de l'ordre de -15°C, des extrudeuse bi-vis dits "à basse température" ont été utilisés (Bollinger *et al.*, 2000, Windhab *et al.*, 2001). Une fois le mix pré-congelé pendant le glaçage, il est conditionné selon le produit désiré et va subir le durcissement ou congélation finale. Dans cette étape, le produit passe dans un tunnel de congélation à convection forcée d'air où les températures sont de l'ordre de -30 à -40°C afin d'obtenir un produit en sortie à -20°C au centre du produit. Le produit est alors entreposé à une température réglementaire de -23°C. Cette température doit être maintenue pendant toute la chaîne du froid afin d'éviter des remontées de température du produit qui pourraient être néfastes à la qualité finale du produit. Les variations de température provoquent une fusion partielle et une recristallisation sous forme de cristaux de glace plus gros au cours du stockage (mûrissement d'Ostwald).

### 1.1.4 Conclusion

Le procédé de cristallisation consiste à sursaturer une solution. Lorsque l'on utilise le froid comme moteur de la transformation, cette sursaturation de la solution peut être provoquée par la diminution de la température du produit en-dessous de la température initiale de cristallisation. Cette sursaturation est alors suivie d'une nucléation spontanée et rapide qui produit les premiers cristaux.

Dans le secteur alimentaire, la cristallisation concerne des procédés tels que la production de chocolat, de produits de type beurre ou margarine et la fabrication de crèmes glacées ou sorbets. Pour tous ces produits, l'échangeur à surface raclée est le plus souvent utilisé. Les résultats de l'étude de caractérisation de la cristallisation de la crème glacée présentée dans ce rapport et la mise en œuvre d'un contrôle automatique de ce procédé devraient pouvoir être généralisés avec peu de modifications à d'autres cas d'application

## 1.2 Modélisation du procédé de cristallisation

### 1.2.1 Mécanismes et aspects cinétiques

#### *Nucléation*

La nucléation est la première phase du procédé de cristallisation. Lors de la création d'un cristal, les molécules s'associent sous forme de clusters dont certains croissent et atteignent une dimension critique. Le germe est alors stable et croît spontanément pour devenir un cristal. Ce processus est rapide et il n'est possible que dans une zone de sursaturation (Mullin, 1972).

D'un point de vue énergétique, afin de créer des nucléi stables, il est nécessaire de fournir une certaine quantité d'énergie pour la création de la surface inter-faciale. Par ailleurs, cette création des nucléi est accompagnée de la libération d'une chaleur latente. La somme de ces deux types d'énergie constitue la « barrière énergétique » permettant de donner naissance à de nouveaux cristaux. Cette énergie d'activation de nucléation est fonction du rayon critique et de la tension inter-faciale entre le germe et la phase liquide. Ainsi, la vitesse de nucléation peut être exprimée par l'équation :

$$N = A \cdot \exp\left(\frac{-\Delta G_c(S)}{kT}\right) \quad (1.3)$$

N : vitesse de nucléation ( $\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ )

A : terme pré-exponentiel ( $\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ )

T : température (K)

k : constante de Boltzman ( $1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ )

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

$\Delta G_c$  : Energie d'activation de nucléation fonction de la sursaturation (J)

Hartel (2001) considère la viscosité comme un inhibiteur de la nucléation due à l'augmentation de la viscosité lors de la sursaturation. Il modifie ainsi l'équation précédente en prenant en compte le terme de la viscosité.

On distingue deux types de nucléations possibles dans le procédé de cristallisation : nucléation primaire hétérogène et nucléation secondaire.

- Nucléation primaire hétérogène

Dans les situations réelles, il est rare de trouver une nucléation primaire homogène. Dans la plupart des cas, c'est une nucléation primaire hétérogène qui a lieu lors d'un procédé de cristallisation. Ce phénomène est principalement lié à la présence de solides étrangers qui offrent d'autres sites de nucléation des cristaux (telles que des poussières, parois, agitateurs, sondes de détections, etc.). Le mécanisme de nucléation primaire hétérogène domine, dû à une énergie d'activation inférieure à celle de la nucléation spontanée.

Pour la nucléation hétérogène, on suppose la formation d'un germe solide sur une particule étrangère. Il s'agit donc ici d'une extension de la théorie classique de la nucléation primaire homogène. Par ailleurs, pour qu'une nucléation hétérogène apparaisse, les substances doivent remplir certaines conditions. Par exemple, Fennema et al., (1973) ont étudié les conditions dans le cas de l'eau. Les propriétés favorisant la formation de glace sont ainsi une solubilité basse dans l'eau, une capacité d'établir des ponts d'hydrogène avec les molécules d'eau et une petite taille.

- Nucléation secondaire

La nucléation secondaire n'est possible qu'après l'apparition des cristaux. Le mécanisme de ce type de nucléation est un des plus importants dans la cristallisation industrielle en continu. Ce phénomène est principalement dominant dans les procédés à cuve agitée. Afin de modéliser le mécanisme de cette nucléation, Triboulet (1992), Mersmann (1994) et Mullin (2002) (d'après Zhou, 2004) ont présenté différentes expressions qui permettent de prédire la formation de cristaux.

Dans la théorie de la nucléation secondaire, on peut citer deux mécanismes principaux. Le premier réside dans l'hypothèse que les nucléus sont générés par une collision entre les particules provoquées par le mouvement de l'agitateur directement ou par le contact avec la paroi du cristalliseur. Les principaux paramètres qui influencent ce mécanisme sont la vitesse d'agitation, la dureté des parties solides du cristalliseur, le nombre et la taille des cristaux, la géométrie de la cuve, la température et la présence d'impuretés ou d'additifs (Zhou, 2004 et Hartel, 2001). Une deuxième hypothèse consiste en un mécanisme appelé nucléation secondaire vrai. Ce mécanisme a lieu à l'interface entre le cristal et la solution. Dans ce cas,

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

les germes ne proviennent pas des cristaux, mais de la couche limite de cristallisation pour la croissance. La présence des agrégats est une des principales sources pour la création des nouveaux cristaux. Ces agrégats peuvent être arrachés lors des collisions entre les molécules ou par la force de cisaillement si leur taille est supérieure à la taille critique. Les principaux facteurs qui jouent sur ce mécanisme sont le mécanisme de croissance et la sursaturation.

Typiquement, l'expression qui décrit la vitesse de nucléation secondaire est :

$$N = \alpha' \cdot s^i M^j \cdot \dot{N}^l \quad (1.4)$$

où  $\alpha'$ ,  $i$ ,  $j$  et  $l$  sont des constantes,  $m$  est le moment d'ordre 2 ou 3 de la distribution de taille des cristaux existants, moments proportionnels respectivement à leur surface ou leur volume,  $s$  est la sursaturation relative et  $\dot{N}$  est la vitesse de l'agitation.

Pour la glace, la vitesse de nucléation secondaire est souvent exprimée sous la forme :

$$N = \alpha'(T_{sat} - T)^i \cdot M^j \cdot \dot{N}^l \quad (1.5)$$

où  $T_{sat}$  est la température de saturation (à l'équilibre thermodynamique) qui est fonction de la concentration de la solution résiduelle (courbe du liquidus).

Pour la glace, on a  $i=2$  pour de basses sursaturations (0,01 à 0,2°C) et  $i=1$  pour des sursaturations plus élevées (0,25°C à 1°C).  $j$  est souvent pris égal à 1 (Hartel, 2001). Il est à noter enfin que plusieurs études ont quantifié la nucléation secondaire dans l'eau, les solutions sucrées et les jus de fruits (Omran *et al.*, 1974 ; Stocking *et al.*, 1976).

### ▪ Croissance

La seconde étape de la cristallisation est la croissance de particules. Cette étape n'est possible que lorsque le germe a dépassé la taille critique. Le mécanisme de ce phénomène a été largement étudié afin d'expliquer les paramètres qui favorisent la croissance des particules (Boistelle et Astier, 1988; Dirksen et Ring, 1991; Mersmann, 2001 et Chernov, 2001). La théorie principale utilisée pour la modélisation de la croissance des cristaux est celle de la couche limite d'absorption à la surface du cristal divisée en trois étapes :

1. Un transfert de masse par diffusion ou convection (dans le cas d'un milieu agité). Cette étape consiste dans la migration des molécules qui cristallisent vers la surface d'un cristal qui croît. Ce processus est gouverné par le gradient de concentration entre la solution et la surface du cristal et dépend de l'agitation et des propriétés physiques de la solution.
2. Une incorporation des nouvelles molécules sur la structure cristalline. A ce niveau, les molécules migrantes s'orientent et s'arrangent afin de permettre cette incorporation. Ce phénomène dépend de la vitesse de croissance.
3. Lorsque les molécules ont été incorporées à la structure dans la deuxième étape, la chaleur latente de fusion due au changement de phase doit être dissipée de la surface du cristal vers la phase liquide de la solution. Le transfert de cette chaleur de fusion

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

peut s'effectuer par convection ou conduction. Cette étape est importante si la chaleur latente est élevée, par exemple dans le cas de la glace.

Les trois mécanismes de croissance peuvent influencer ou limiter l'accroissement de taille des cristaux. La croissance des cristaux de glace est principalement influencée par la première et la dernière étape. D'autres mécanismes de croissance de cristaux existent, telle que l'agglomération ou l'agrégation de cristaux de petite taille sur la surface de cristaux plus grands. Enfin, un dernier mécanisme est le mûrissement d'Ostwald où sous certaines conditions les petits cristaux (<5 mm) sont sous-saturés dans la solution et sont dissous alors que les cristaux plus grands sont sursaturés. Ce mécanisme consiste ainsi en une restructuration de la phase cristalline sans changer le volume ou la quantité de glace.

D'une façon générale, il existe de nombreux modèles théoriques ou empiriques pour exprimer la vitesse de croissance en fonction de la sursaturation ou dû au sous-refroidissement; la plupart des modèles ont la forme :

$$G = k_G (C - C^*)^m \quad \text{ou} \quad G = \beta (T_{sat} - T)^\delta \quad (1.6)$$

où  $k_G$  et  $\beta$  sont les coefficients de croissance, fonctions des vitesses relatives de transferts thermique et massique dans le liquide, des propriétés physiques et thermiques des systèmes étudiés, et où  $m$  et  $n$  sont des paramètres qui dépendent des mécanismes limitant la croissance (transfert de masse, incorporation à la surface et transfert thermique) et de leurs vitesses relatives.

Ce type de modèle a été utilisé par Omran et King (1974) dans le cas de la cristallisation de la glace, pour des solutions de sucre et les jus de fruits ( $\delta \sim 1,5-1,6$ ).

### 1.2.2 Prédiction de la distribution de taille des cristaux (DTC) par le bilan de population (BP)

Afin de modéliser le phénomène de cristallisation, il est possible de recourir à une équation de bilan de population (PBE : Population Balance Equation). Ce type de modèle est souvent utilisé pour la cristallisation industrielle. L'équation de bilan de population (expression 1.7) a été introduite pour la première fois par Hulburt et Katz (1964) et développée plus tard par Randolph et Larson (1988). Dans cette théorie, la population des cristaux est décrit par  $\Psi(L,t)$  (Fonction de densité de population où  $t$  est le temps et  $L$  la taille des cristaux).

$$\frac{\partial \Psi(L,t)}{\partial t} = -G \frac{\partial \Psi(L,t)}{\partial L} + N - F \quad (1.7)$$

Le premier terme de cette équation représente le terme d'accumulation du nombre de cristaux dont la taille est comprise entre  $L$  et  $L+dL$ . Le second terme représente le flux net de cristaux entre échelle de taille dû à la croissance  $G$ . Les troisième et quatrième termes,  $N$  et  $F$  représentent des termes de naissance ou production de cristaux par nucléation, par exemple, et des termes de disparition respectivement pour une échelle de taille donnée. Les constantes  $G$ ,  $B$  et  $D$  dépendent notamment de la sursaturation, qui peut être obtenue par une équation de bilan du constituant qui cristallise au niveau de la solution.

### *Résolution numérique*

Afin de réaliser une résolution numérique il est nécessaire de décomposer l'équation BPE. Le résultat est un système d'équations fortement non linéaires qui admet cependant des solutions analytiques dans les cas simples. Pour la cristallisation chimique industrielle, le modèle de cristalliseur continu parfaitement mélangé en régime permanent connu sous le nom de Mixed Suspension Product Removal (MSMPR, Puel et *al.*, 2003) est souvent utilisé. Ce modèle a été appliqué pour les opérations de refroidissement et d'évaporation en solution aqueuse, de réactions de précipitation et de désalinisation (Garside et Shah, 1980 ; Mydlarz, 1996). Dans le cas de l'ECSR, ce modèle ne peut cependant pas être utilisé, car la température et la concentration ne peuvent être considérés comme parfaitement homogènes. En effet, dans le cas de l'ECSR, la température, la composition de la phase liquide et la distribution de taille des cristaux dépendent fortement de la position dans l'échangeur.

Afin de résoudre ce problème, une approche couplant la CFD et les bilans de population (PB) a été développée. Ce modèle prend en compte le couplage entre l'écoulement, le transfert thermique et la formation des cristaux. Ce concept est appliqué, par exemple, dans le cas de formation de gouttelettes dans un procédé d'extraction liquide-liquide (Vikhansky et Kraft, 2004) et dans les systèmes précipités (Wei et Garside, 1997).

La résolution numérique nécessite la représentation de la densité de population en fonction du temps, de l'espace et de la taille des cristaux. Le problème est accru dans le cas d'une géométrie 3D où le bilan devient une équation différentielle à 5 dimensions, complexe à résoudre pour les solveurs existants. Le système devrait être également couplé à la dynamique des fluides, ce qui est rarement possible dans les outils disponibles. La résolution des équations de la dynamique des fluides peut être effectuée par des outils CFD des simulateurs du type Fluent® ou Comsol®, avec la possibilité de recourir à des modèles de turbulence. Mais le couplage avec les procédés mettant en jeu des particules en tenant compte de leur distribution de taille reste complexe. Même si des progrès considérables pour étendre l'outil CFD ont été accomplis (Marchisio et al. 2003), les limites lors de la reconstruction de la distribution de taille de particules et les erreurs systématiques de la méthode de discrétisation doivent être prises en compte.



## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Kulikov et *al.* (2005), proposent une nouvelle approche CFD consistant à utiliser un maillage fin dans le cas de l'écoulement et de la thermique, et un maillage plus grossier pour le bilan de population.

### *Méthode des classes*

La méthode des classes consiste à discrétiser la distribution de taille en N classes de cristaux de 'largeur'  $\Delta L$ . Le bilan de population est alors écrit pour chacune des classes. On obtient ainsi un nombre fini d'équations aux dérivées partielles (en position et temps, comme les équations CFD) pouvant être relativement facilement implémentées dans les codes de calcul CFD existants si le nombre de classes reste raisonnable. L'intérêt majeur de cette technique est l'obtention directe et complète de la distribution de taille des cristaux (Haddad 2009).

Cette méthode a été utilisée dans le cas de problèmes complexes de cristallisation chimique prenant en compte l'agrégation et la rupture des cristaux (Hounslow et *al.*, 1988). Les équations différentielles ont été résolues dans ce cas à l'aide de la méthode de Runge-Kutta au 4<sup>ème</sup> ordre pour 15 classes de taille de particules.

Récemment, Woo et *al.* (2006) ont appliqué la simulation couplée CFD-PB dans le cas de la cristallisation du paracétamol dans un réacteur agité semi-batch en régime turbulent. La simulation de l'écoulement et du transfert thermique est effectuée en utilisant un maillage 2D axisymétrique à l'aide de Fluent®, et le bilan de population est discrétisé à l'aide de 40 classes de taille et résolu à l'aide du solveur ODE de Matlab®.

Lian et *al.* (2006) ont modélisé la cristallisation de l'eau dans une solution sucrée dans un échangeur de chaleur à surface raclée. Les équations de bilans régissant le fluide sont résolues pour une géométrie 2D approchée avec des simplifications pour faciliter la résolution (viscosité constante, dispersion des cristaux de glace négligeable, sorbet assimilé à un fluide équivalent monophasique contenant les particules et la solution...). Le bilan de population est discrétisé à l'aide de la méthode des classes pour 14 classes de taille de cristaux. La résolution de ce bilan couplée aux équations de l'écoulement et des transferts de chaleur est effectuée à l'aide du code commercial FIDAP®. En parallèle, des mesures expérimentales de la granulométrie ont été effectuées dans un ECSR avec le Coulter Counter. La comparaison des résultats expérimentaux à la simulation numérique a montré que la simulation surestimait le nombre de petits cristaux et sous estimait le nombre de gros cristaux. L'écart est expliqué par un manque de précision dans la technique expérimentale granulométrique lors de la mesure des petits cristaux et par la simplification importante du problème, de l'écoulement, des données physiques (viscosité constante et égale à celle de la solution initiale sans cristaux c'est-à-dire très faible en comparaison à celle d'un sorbet), et des cinétiques de nucléation et croissance. Les limites de cette étude viennent aussi du nombre de classes insuffisant (14 classes pour un nombre de classe maximum de classes possibles sur FIDAP de 50) qui, s'il devait être augmenté, aboutirait à un temps de calcul rédhibitoire.

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

La méthode des classes est très efficace mais reste empirique dans le choix du nombre de classes. En effet, afin que la distribution calculée soit indépendante du nombre de classes choisi, il est recommandé de discrétiser le problème à l'aide d'un nombre de classes supérieur à 50 dans le cas de la nucléation et croissance cristalline, voire beaucoup plus si l'agrégation doit être prise en compte (Muhw et *al.*, 1996).

### 1.2.3 La méthode des moments pour la réduction du modèle de BP

Une méthode alternative pour la résolution numérique d'un système de CFD-BP est la méthode des moments. Cette méthode transforme l'équation de BP en un ensemble d'équations différentielles (Randolph and Larson, 1971) et peut donc être vue comme une méthode permettant d'obtenir un modèle réduit. A différence de la méthode des classes, la résolution du modèle avec la méthode des moments ne nécessite que des moyens informatiques limités, d'où son intérêt pour la conception de boucles de contrôle. Même si le résultat de la réduction du modèle de bilan de population pour cette méthode est un modèle physique réduit, il n'est pas « simplifié » puisque la méthode ne consiste pas à formuler des hypothèses supplémentaires sur les phénomènes physico-chimiques. La seule restriction de cette approche est la quantité d'information que l'on peut en extraire, qui est alors beaucoup plus limitée. Elle ne permet pas en particulier, lorsque l'on utilise seulement un faible nombre de moments, de reconstruire la distribution complète de taille comme le permet la méthode des classes.

Le moment  $j$  est défini par:

$$M_j = \int_0^{\infty} L^j \psi(L, t) dL \quad (1.8)$$

Afin de faire apparaître les moments dans l'équation de bilan de population, on multiplie l'équation 1.7 par  $L^j$  et on l'intègre par rapport à  $L$  de  $L=0$  à  $L=\infty$  pour obtenir l'équation 1.9, où  $B$  représente le taux de création de particules et  $D$  le taux de disparition :

$$\int_0^{\infty} L^j \left[ \frac{\partial \Psi(L, t)}{\partial t} + G \frac{\partial \Psi(L, t)}{\partial L} - N + F \right] dL = 0 \quad (1.9)$$

Pour la plupart des études de modélisation de la cristallisation par la méthode des moments, seuls les quatre premiers moments sont considérés. Il est alors possible d'obtenir à partir de ces moments l'information concernant le nombre total des cristaux, la taille moyenne, la surface spécifique et la fraction volumique. Pour obtenir une distribution de taille de cristaux, plusieurs hypothèses doivent être posées et un plus grand nombre de moments doit être utilisé. La méthode devient alors complexe à résoudre et avec un nombre d'équations important (Wei and Garcide, 1997).

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Cette méthode a été largement étudiée et souvent comparée à d'autres méthodes pour la résolution de l'équation de BP (Caliane Bastos Borba Costa, et al., 2007), que ce soit pour des applications de cristallisation, de précipitation ou de transformation (tableau 1.3).

**Tableau 1. 3.** Diverses applications de réduction de l'équation de BP par la méthode des moments

<b>Application</b>	<b>Référence</b>
Conception d'une boucle robuste de contrôle (feed-back) pour un cristalliseur continu.	Timothy Chiu et Panagiotis D. Christofides (1999)
Modélisation d'un procédé de précipitation dans un réacteur chimique; cas: agrégation de silique.	L. Falk et E. Schaer (2001)
Résolution du BP associé aux systèmes simultanés coagulation-fragmentation.	R. B. Diemer et. al., a, b, c (2002)
Stratégie d'optimisation en vue du contrôle des procédés de cristallisation évaporatoire en batch ou semi-batch.	K. L. Choong et R. Smith (2004)
Modélisation des procédés de cristallisation dans l'industrie pharmaceutique.	Xing Yi Woo et al., (2006)
Conception d'un système de contrôle hybride avec différents objectifs pour cristalliseurs continus et discontinus	Dan Shi et al., (2006)
Implémentation d'un système de contrôle pour la cristallisation discontinue pour la production de paracétamol.	M. Sheikhzadeh, et al., (2007)
Modélisation de la cristallisation pour la production d'un sorbet dans un ECSR.	Gonzalez-Ramirez J.E et al., (2011)

### 1.2.4 Aspects thermiques

#### *Bilan de chaleur en régime permanent*

Haddad (2009) propose une équation de conservation de l'énergie dans un ECSR pour la production de crème glacée. Il souligne que cette équation ne peut être écrite simplement en fonction de la température. En effet, l'énergie interne volumique du sorbet dépend de la fraction de glace qui, dans cette approche, n'est pas une fonction explicite de la température mais est fonction de la population de cristaux.

Il propose, alors, la conservation de l'énergie en utilisant comme variable d'état l'énergie interne volumique, notée  $u$  ; une équation d'état reliant  $u$ , la température  $T$  et la fraction volumique de glace  $\phi_g$ .

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} u = \vec{\nabla} \cdot (\lambda \vec{\nabla} T + D_m \vec{\nabla} u) + Q_{visqueux} \quad (1.10)$$

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

où  $\lambda$  est la conductivité thermique apparente et est une fonction directe de la fraction résiduelle de sucre et de glace et  $D_m$  est le terme de diffusivité radiale. Pour la diffusion radiale:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial t} \left( r \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial r} + D_m \frac{\partial u}{\partial r} \right) \right) + Q_{visqueux} \quad (1.11)$$

et

$$u = \underbrace{\frac{\varphi_g}{\hat{V}_e}}_{\frac{\text{kg glace}}{\text{m}^3 \text{ sorbet}}} (-\Delta h_f + C_{p_g} T) + \underbrace{\frac{\varpi_0}{\hat{V}}}_{\frac{\text{kg soluté}}{\text{m}^3 \text{ sorbet}}} C_{p_s} T + \underbrace{\left( \frac{1-\varpi_0}{\hat{V}} - \frac{\varphi_g}{\hat{V}_e} \right)}_{\frac{\text{kg eau (liquide ou glace)}}{\text{m}^3 \text{ sorbet}}} C_{p_e} T \quad (1.12)$$

où  $u$  est l'énergie interne volumique du système,  $\lambda$  et  $T$  sont la conductivité thermique apparente et la température de la matière respectivement,  $r$  est le rayon du cristalliseur,  $\varphi_g$  est la fraction volumique de glace formée,  $q_{visqueux}$  est la chaleur perdue due à la viscosité du produit,  $\Delta h_f$  est la chaleur latente de fusion à  $0^\circ\text{C}$  par unité de masse de l'eau.  $C_{p_g}$ ,  $C_{p_s}$  et  $C_{p_e}$ , sont les capacités thermiques massiques de la glace, du soluté et de l'eau, considérées comme étant constantes par rapport à la température,  $\varpi_0$  la fraction de sucre initiale et  $\hat{V}$  et  $\hat{V}_e$  sont les volumes spécifiques de la solution et la glace respectivement. Nous avons également négligé la chaleur de mélange et la température de référence est  $0^\circ\text{C}$ .

Peter M. M. Bongers (2006) présente un modèle dynamique d'un cristalliseur continu à surface raclée. Le bilan d'enthalpie dans ce modèle est formulé comme suit :

$$\frac{d}{dt}(\dot{m}h) = (\dot{m}_{in}h_{in} - \dot{m}_{out}h_{out}) + Q_{visqueux} + Q_{racleur} + Q_{crist} + Q_{frigo} \quad (1.13)$$

où  $\dot{m}$  et  $h$  sont le débit massique et l'enthalpie du produit dans l'échangeur respectivement ( $in$  pour l'entrée et  $out$  pour la sortie),  $Q_{visqueux}$  est la puissance de dissipation visqueuse,  $Q_{racleur}$  la puissance de raclage des lames sur la paroi,  $Q_{crist}$  la puissance absorbée par la cristallisation et  $Q_{frigo}$  la puissance de réfrigération fournie.

La puissance de dissipation visqueuse est exprimée par:

$$Q_{visqueux} = \mu \dot{\gamma} \mathcal{V} \quad \text{et} \quad \mu_{rz} = -K \left| \frac{\partial v_z}{\partial r} \right|^{n-1} \frac{\partial v_z}{\partial r} \quad (1.14)$$

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

où  $V$  est le volume traité,  $v$  est la vitesse axiale ( $r$  et  $z$  représentent les coordonnées radiales et axiales respectivement).

La puissance produite par le raclage est calculée par une équation empirique:

$$Q_{racler} = c_1 x_g^{c_2} (T - T_c)^{5/3} \dot{N}^{1.5} L_{ech} N_{blades} \quad (1.15)$$

où  $c_1$  et  $c_2$  sont des coefficients ajustés par l'expérimentation,  $x_g$  est la fraction de glace,  $L_{section}$  la longueur du cristalliseur et  $N_{blades}$  le nombre de lames utilisées.

T. Benezech et J.F. Maingonnat (1988) ont étudié la puissance consommée dans un échangeur à surface raclée traitant des produits Newtoniens et non-Newtoniens rhéofluidifiants en régime isotherme et laminaire. Ils ont étudié les paramètres suivants: caractéristiques rhéologiques des fluides, taille de l'entrefer, nombre, positionnement dans l'entrefer et vitesse de rotation des lames.

Ces auteurs ont mesuré la puissance parasite consommée par les frottements au niveau des bords d'entrée et de sortie de l'échangeur et des garnitures mécaniques. Ils ont montré que la puissance efficace est la somme de la puissance consommée par le brassage du fluide dans l'entrefer et de la puissance consommée par le raclage de la paroi d'échange. Des relations théoriques pour chacun de ces deux termes permettent de déterminer, pour les fluides Newtoniens, les puissances consommées. Dans le cas de fluides non-Newtoniens la puissance de brassage correspond à sa valeur théorique, mais la puissance de mise en rotation de lames est faible, dû aux conditions de frottement de couteaux sur la paroi d'échange.

### *Bilan de chaleur en régime transitoire*

Le modèle en régime transitoire est nécessaire pour connaître la dynamique du procédé. Cette dynamique permet de simuler l'évolution du procédé en fonction du temps et de l'espace. La connaissance de cette dynamique est très importante dans le développement de nouveaux systèmes de contrôle. Une approche classique pour la caractérisation de la dynamique d'un procédé est la méthodologie de distribution de temps de séjour (DTS). Cette méthode permet notamment d'analyser de manière globale le comportement de l'écoulement à l'intérieur de l'appareil.

Un exemple de l'utilisation de la méthode DTS est donné par Choulak et al. (2004) qui présentent un modèle dynamique d'un procédé d'extrusion en continu (polymérisation de  $\epsilon$ -caprolactone et tetrapropoxytitanium). L'appareil consiste en une machine d'extrusion à double vis entouré d'une enveloppe métallique. Cette enveloppe fournit un flux de chaleur pour la transformation. Dans un objectif de contrôle du procédé, les auteurs ont développé un

modèle dynamique à partir de la caractérisation de l'écoulement à l'intérieur de l'extrudeuse en se basant sur la caractérisation du temps de séjour. Cette caractérisation a permis de sélectionner une approche basée sur une cascade de sept réacteurs agités avec recirculation (figure 1.9):

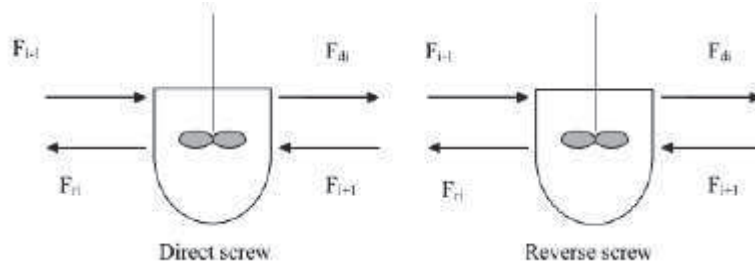


Figure 1. 9. Représentation d'une cascade de réacteurs agités pour la modélisation de l'écoulement d'une extrudeuse bi-vis

Pour la modélisation en dynamique, il propose trois bilans de chaleur: un premier pour la matière en transformation, le deuxième pour l'évolution de la paroi de l'enveloppe et un troisième pour la dynamique des vis. Ces bilans sont présentés ci-dessous.

*Bilan d'énergie pour la matière en transformation:*

$$f_i m_i C_p \frac{dT_i}{dt} = \dot{m}_{i-1} C_p (T_{i-1} - T_i) + \dot{m}_{i+1} C_p (T_{i+1} - T_i) + U f_i S_b (T_i^b - T_i^m) + h_{il} f_i S_s (T_i^s - T_i^m) + f_i Q_{visqueux} + (-\Delta H_r) f_i V_i (-r_i) \quad (1.16)$$

où  $f$  est le taux de remplissage,  $m$  et  $T$  sont la masse et la température de du produit,  $C_p^m$  est la capacité calorifique du produit,  $\dot{m}$  est le débit massique,  $U$  est le coefficient global de transfert de chaleur,  $S_b$  est la surface d'échange de chaleur entre la partie métallique et le produit,  $T^b$  est la température de l'enveloppe,  $h_{il}$  est le coefficient individuel de transfert de chaleur produit/vis,  $T^s$  est la température des vis,  $\Delta H_r$  est la chaleur latente de réaction,  $V$  est le volume et  $(-r)$  correspond au terme de vitesse de réaction. L'indice  $i$  désigne le rang du réacteur.

*Bilan d'énergie sur la partie métallique:*

$$m_i^b C_p^b \frac{dT_i^b}{dt} = h_e S_e (T_e - T_i^b) + h_b f_i S_b (T_i^m - T_i^b) + \frac{\lambda_b S_b}{e_{i-1}} (T_{i-1}^b - T_i^b) + \frac{\lambda_b S_b}{e_i} (T_{i+1}^b - T_i^b) + \Phi_i \quad (1.17)$$

où  $m^b$  représente la masse de l'enveloppe,  $h_e$  est le coefficient de transfert de chaleur entre l'extérieur et l'enveloppe,  $S_e$  est la surface d'échange entre l'enveloppe et l'extérieur,  $T_e$  est la température extérieure,  $\lambda_b$  est la conductivité thermique du fourreau,  $e$  est l'espace entre réacteurs et  $\Phi$  est l'énergie fournie au système. L'indice  $i$  indique le nombre de réacteurs en question pour toutes les variables impliquées.

*Bilan d'énergie sur les vis:*

$$m_i^s Cp^s \frac{dT_i^s}{dt} = h_{il} S_s (T_i^m - T_i^s) + \frac{\lambda_s S_s}{e_{i-1}} (T_{i-1}^s - T_i^s) + \frac{\lambda_s S_s}{e_i} (T_{i+1}^s - T_i^s) \quad (1.18)$$

où  $m_i^s$  est la masse des vis dans le réacteur i et  $Cp^s$  est la capacité calorifique des vis. Ce modèle a permis aux auteurs de prédire l'évolution des températures et des concentrations de monomère et polymère dans chaque élément i.

De manière générale cette hypothèse de réacteurs en série peut être appliquée à l'échangeur de chaleur à surface raclée. On peut marquer rapidement des similitudes entre eux :

- Tous les deux sont des systèmes en continu.
- A l'intérieur des appareils il y a un instrument qui provoque un cisaillement.
- On utilise une source d'énergie pour faire la transformation.

Ainsi, le principe du modèle thermique pour une extrudeuse en continu peut être adapté et utilisé pour un ECSR en continu.

*Coefficients de transfert de chaleur*

Quelques auteurs proposent des relations empiriques afin de calculer le coefficient d'échange en convection pour un écoulement diphasique dans un échangeur à surface raclée.

Mohamed Ben Lakhdar et al. (2005) ont développé un modèle pour prédire le coefficient de transfert de chaleur dans un ECSR en utilisant des solutions d'éthanol à différentes concentrations. Ce modèle est exprimé sous la forme :

$$Nu = 0.63 \cdot Re_r^{0.61} \omega_0^{0.34} \quad \text{avec} \quad Re_r = \frac{\rho \dot{N} D^2}{\mu} \quad (1.19)$$

où  $\dot{N}$  est la vitesse de rotation du racleur en  $s^{-1}$ ,  $D$  est le diamètre du cylindre,  $\omega_0$  est la concentration d'éthanol,  $\rho$  et  $\mu$  la masse volumique et la viscosité de l'écoulement.

Frank Qin et al. (2003, 2006 et 2009) ont caractérisé le coefficient de transfert de chaleur lors de la cristallisation de solutions sucrées à base d'eau dans un ECSR. Ils ont obtenu deux équations différentes, la première pour modéliser l'écoulement à l'état liquide et la deuxième une fois que la glace a été formée, d'où :

$$h_{il} = \begin{cases} \left( \frac{\lambda_1 \rho_l Cp_l \dot{N} \cdot N_{blades}}{15\pi} \right)^{1/2} & \text{Sans changement de phase} \\ k_i \Delta H_f + \theta \left( \frac{\lambda_1 \rho_l Cp_l \dot{N} \cdot N_{blades}}{15\pi} \right)^{1/2} & \text{Avec changement de phase} \end{cases} \quad (1.20)$$

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

où  $\lambda_l$ ,  $\rho_l$  et  $Cp_l$  sont la conductivité thermique, la masse volumique et la capacité calorifique du mix à l'état liquide,  $k_i$  est la vitesse de formation de glace sur la surface d'échange et  $\theta$  est le rapport entre la surface de la paroi sans glace et la surface totale de l'échangeur.

Peter M. M. Bongers (2006) propose également une équation empirique pour le calcul du coefficient de transfert de chaleur dans un échangeur à surface raclée :

$$h_{il} = 2\sqrt{\rho Cp N_{blades} \dot{N} D \lambda} \quad (1.21)$$

où  $\rho$ ,  $Cp$  et  $\lambda$  sont la masse volumique, la capacité calorifique et la conductivité thermique du produit,  $N_{blades}$  est le nombre de lames,  $N_r$  est la vitesse de rotation du racler et  $D$  le diamètre de l'échangeur.

### 1.2.5 Conclusion de l'analyse bibliographique à propos de la modélisation du procédé de cristallisation

La cristallisation est un phénomène de solidification dans lequel des particules cristallines sont formées et croissent. Ce phénomène est fréquemment modélisé par un bilan de population permettant d'obtenir la distribution des cristaux en fonction de leur taille. Ce bilan de population consiste à considérer les phénomènes de création, d'accumulation des particules, de croissance et de disparition des particules. Deux méthodes de résolution de l'équation de bilan de population ont été présentées dans les paragraphes antérieurs : la méthode des classes et la méthode des moments. La première consiste à discrétiser la variable de longueur en « classes ». L'inconvénient de cette méthode est le grand nombre d'équations résultant de la discrétisation qui tend à rendre cette approche peu attractive pour le contrôle.

La deuxième méthode consiste à transformer l'équation aux dérivées partielles du bilan de population en un nombre limité d'équations différentielles en s'appuyant sur la notion mathématique de moments. Le plus souvent, quatre moments sont pris en compte : le moment zéro représentant le nombre total de particules formées, le moment un à partir duquel on peut calculer une longueur moyenne caractéristique de particules, le moment deux qui peut être considéré comme une image de la somme des surfaces des cristaux et le moment trois comme une image de la somme des volumes. L'avantage de cette méthodologie est la réduction du modèle en un système de quatre équations différentielles plus adapté à la conception d'une boucle de contrôle.

## 1.3 Le contrôle du procédé de cristallisation en agroalimentaire

### 1.3.1 Influence des variables du procédé sur la qualité



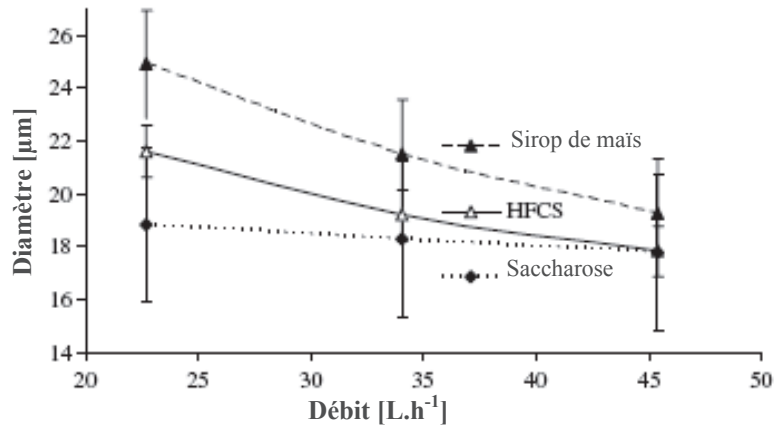
## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Les principaux paramètres du procédé ayant une influence sur la qualité de la crème glacée en sortie sont le débit de mix (ou temps de séjour moyen), la vitesse du racleur, le débit d'air injecté et la température d'ébullition du frigorigène dans la double enveloppe de l'ECSR. Quelques auteurs ont étudié l'influence de ces paramètres sur la qualité du produit, et notamment la distribution de taille des cristaux. L'objectif de ces études était de déterminer les conditions opératoires permettant d'obtenir les cristaux les plus petits possibles tout en gardant une certaine stabilité de structure du produit.

E.M. Drewett et R.W. Hartel (2006) ont étudié la taille moyenne des cristaux en fonction du type de sucre (saccharose, sirop de maïs riche en dextrose et sirop de maïs riche en fructose "HFCS"), de la température de sortie du produit, de la vitesse du racleur et du temps de séjour moyen dans un "freezer" continu. Ils analysent la distribution de taille des cristaux à partir d'images de l'échantillon de produit. Pour réaliser les prélèvements, ils utilisent un compartiment à température contrôlée appelé et un microscope couplé à une caméra fourni d'une optique avec une capacité d'augmentation de 4 x 20 "glovebox". Ils ont ainsi établi une relation empirique entre la taille moyenne des cristaux et les paramètres du procédé:

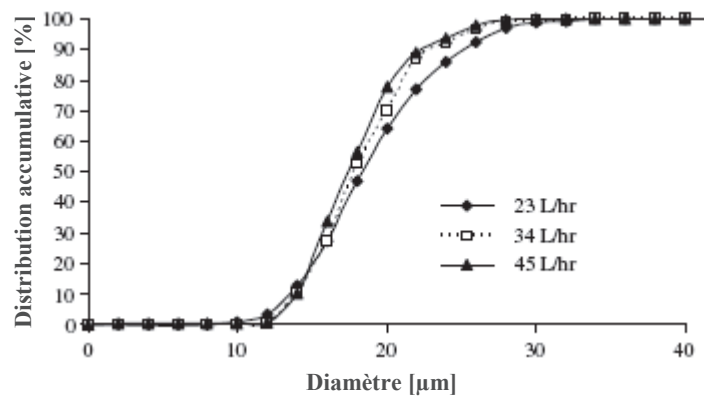
$$\text{Taille moyenne} = 22.464 - 2.565C + 1.665H + 0.004R + 1.372D + 0.063T \quad (1.22)$$

où C et H correspondent au type de sucre utilisé (soit sirop de maïs riche en dextrose ou "HFCS"), R est la vitesse de raclage, D est la température de sortie du produit et T est le temps de séjour moyen. Cette équation a été développée à partir d'un plan d'expérience de 46 points de mesures construit à partir de la méthode statistique de variance ANOVA. Dans un premier temps, ils ont analysé l'influence du type de sucre utilisé pour la fabrication de la crème glacée. Ils ont ainsi montré que le type de sucre a une influence sur la taille moyenne des cristaux de glace, et en particulier que le saccharose permettait d'obtenir le diamètre moyen des cristaux le plus petit suivi de l'HFCS et finalement le sirop de maïs riche en dextrose (figure 1.10). Cette variation de la taille moyenne de cristaux s'explique principalement par la modification des propriétés thermiques des mixes. Un changement de formulation a une influence directe sur l'abaissement du point de congélation, sur la rapidité d'extraction de la chaleur et par conséquent sur les vitesses de nucléation et de croissance pendant la transformation (K. L. K. Cook et R. W. Hartel 2010).



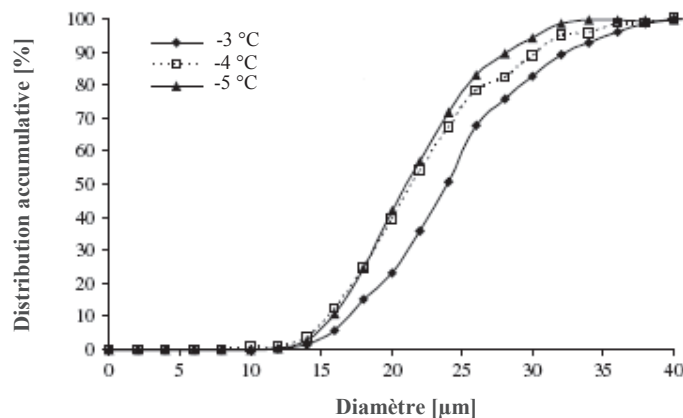
**Figure 1. 10.** Influence du type de sucre et du débit de mix sur la taille moyenne des cristaux de glace pour une crème glacée. Températures de sortie de -4, - 6 et -9°C pour tous les types de sucres et une vitesse de raclage de 500 tr.min<sup>-1</sup> E.M. Drewett et R.W. Hartel (2006).

Le débit de mix a aussi une influence sur la taille moyenne des cristaux puisqu'en diminuant le temps de séjour moyen dans l'ECSR, on réduit le temps de contact du produit avec la surface refroidie et donc la durée de croissance de la particule (figure 1.11). Ce phénomène a été également mis en évidence par Russell et al., (1999), K. L. K. Cook et R. W. Hartel (2010) et Arellano et al., (2011).



**Figure 1. 11.** Influence du débit de mix sur la distribution de taille des cristaux pour une température de sortie de - 6 °C et une vitesse de raclage de 500 tr.min<sup>-1</sup>

Lorsque l'on fait varier la température de sortie de la crème glacée (par variation de la température d'évaporation), les auteurs montrent que la taille des cristaux varie significativement. Pour des températures de sortie faibles, correspondant à des températures d'évaporation du frigorigène basses, les vitesses de nucléation et de croissance accélèrent fortement. D'après les auteurs, cette accélération est cependant plus marquée pour la nucléation, ce qui tend à réduire globalement la taille des cristaux en sortie du procédé (figure 1.12).



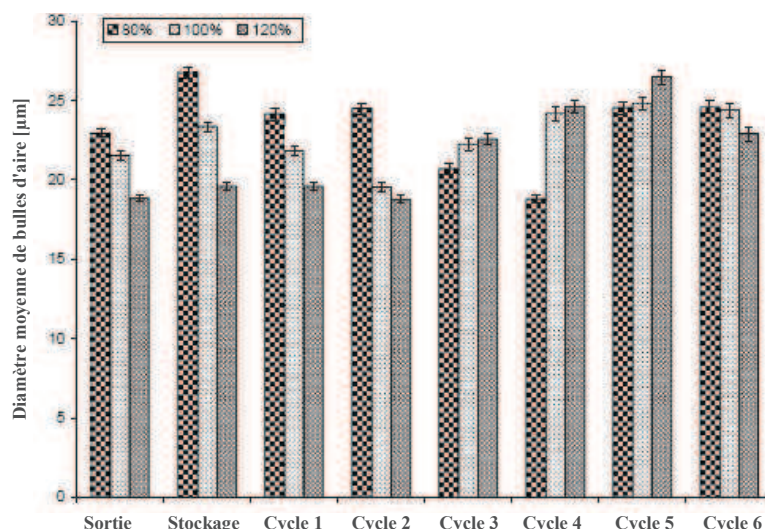
**Figure 1. 12.** Distribution cumulée de la taille des cristaux pour différentes températures de sortie du produit. Vitesse de racleur 500 tr.min<sup>-1</sup>, débit de mix 34 L.h<sup>-1</sup>.

Le mécanisme expliquant l'impact de la vitesse de rotation du racleur diffère selon les auteurs. Certains expliquent l'effet sur la taille des cristaux par le fait qu'elle puisse augmenter la vitesse de recristallisation (Russell et al., 1999). D'autres expliquent qu'une augmentation de la vitesse de raclage réduit l'intervalle de temps entre deux passages de lame, ce qui tend à réduire la taille moyenne des cristaux arrachés de la paroi. Un autre phénomène lié à la vitesse de raclage souvent cité par les auteurs est l'augmentation de la chaleur produite par l'effet de raclage, qui tend à faire fondre les cristaux et à favoriser une recristallisation. (K. L. K. Cook et R. W. Hartel 2010).

L'influence du débit d'air injecté a été étudié par Rosalina P. Sofjan et Richard W. Hartel (2003). Ce débit d'air est couramment exprimé en overrun défini par :

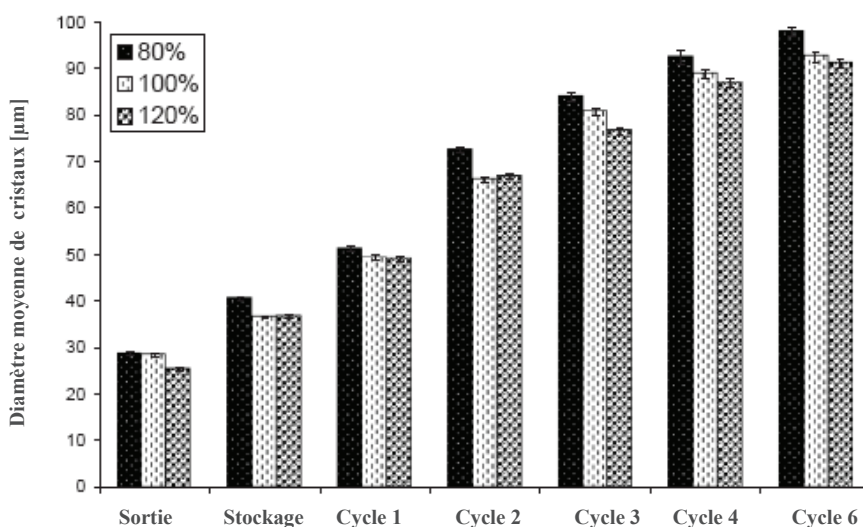
$$overrun = \frac{masse_{mix} - masse_{produit}}{masse_{produit}} \cdot 100 \quad (1.23)$$

qui exprime le pourcentage d'augmentation de volume du produit final dû à l'incorporation d'air. Les auteurs ont ainsi mesuré la taille moyenne des bulles d'air contenues dans une crème glacée et étudié son évolution avec le temps pour différents débits d'air (overrun de 80, 100 et 120 %). Par analyse microscopique, ils ont évalué la taille moyenne de ces bulles à la sortie du "freezer", après un stockage de 8 jours à -30 °C suivi de 6 cycles à -10 °C pendant 3, 9, 14, 28, 56 et 63 jours respectivement. Ils ont alors montré l'influence du contenu d'air, en montrant qu'une fraction d'air plus élevée a pour conséquence une taille moyenne de bulles plus petite (figure 1.13).



**Figure 1.13.** Comparaison de la taille moyenne de bulles d'air avec 80, 100 et 120 % d'overrun à la sortie du "freezer", après stockage de 8 jours à -30 °C et après 6 cycles à -10 °C (cycle 1 de 3 jours, cycle 2 de 9 jours, cycle 3 de 14 jours, cycle 4 de 28 jours, cycle 5 de 56 jours et cycle 6 de 63 jours).

Par ailleurs, la taille moyenne de cristaux a également été évaluée pour les mêmes périodes de temps. Les auteurs ont ainsi montré que la taille des cristaux varie en fonction de l'overrun (figure 1.14). Les auteurs expliquent ce phénomène par le cisaillement à l'intérieur de l'échangeur et l'introduction d'air dans le mix. En effet, l'augmentation du débit d'air accroît ce cisaillement, ce qui tend à provoquer la formation de bulles plus petites. Ces bulles de taille réduite tendent alors à remplir de manière plus efficace les espaces inter-cristaux, ce qui empêche la recristallisation.



**Figure 1.14.** Comparaison de la taille moyenne des cristaux de glace avec 80, 100 et 120 % d'overrun (Sofjan Hartel 2008)

Par ailleurs, K. Inoue et al., (2008) ont étudié l'influence de 5 variables du procédé de cristallisation d'une crème glacé sur 3 variables de réponse en utilisant la méthodologie de surface de réponse dans un "Freezer" en continu. Ces variables du procédé sont le débit, la température de sortie, l'overrun, la pression du cylindre et la vitesse du racleur, en mesurant la fraction de matière grasse déstabilisée, la distribution de taille de bulles d'air et des cristaux.

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Ils mettent en évidence les influences des variables du procédé à partir d'une étude statistique par la méthodologie d'analyse de variance ANOVA et proposent des modèles polynomiaux reliant les conditions opératoires aux variables observées (fraction de matière grasse et taille des particules). Ils concluent notamment que la taille des cristaux augmente pour des températures de sortie faibles.

### 1.3.2 Critères de contrôle pour le cas de la crème glacée

#### *Critères physiques*

L'analyse de la qualité, et notamment de la structure de la crème glacée est effectuée en milieu industriel « hors ligne », ce qui n'assure pas systématiquement une uniformité de la production. Peu de tentatives concluantes ont été réalisées afin de développer une mesure en ligne de la taille des cristaux. On trouve toutefois quelques travaux sur l'utilisation de capteurs granulométriques. Par exemple, Lian et al.(2006) ont utilisé le système d'analyse ELZONE 280 (Micromeritics Inc) afin de mesurer la distribution de taille de cristaux dans une solution sucrée cristallisée. Par ailleurs, Haddad et al., (2010) et Arellano et al., (2011) ont mis en oeuvre avec succès un capteur original nommé Focus Beam Reflectance Measurements (FBRM) avec l'objectif de mesurer en ligne la distribution de taille de cristaux et la taille moyenne de cristal pour des solutions formulées pour la production de la crème glacée.

De nombreux paramètres physiques pouvant être utilisés comme critères ont une influence sur la qualité. Ces critères sont présentés dans le tableau 1.4.

CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Tableau 1. 4. Critères de qualité de la crème glacée

No	Propriété	Référence
1	Taille moyenne des cristaux	Russell et al. (1999) D. P. Donhowe et al. (1996) E. M. Drewett and R. W. Hartel (2007). M. R. Muse and R. W. Hartel (2004) Richard W. Hartel (1996) Arellano M. et al., (2011)
2	Distribution de taille des cristaux	Richard W. Hartel (1996) Lian et al. (2006)
3	Distribution de taille de bulles d'air	Richard W. Hartel (1996) Rosalina P. Sofjan et Richard W. Hartel (2003) M. R. Muse and R. W. Hartel (2004) C. Clarke (2004)
4	Propriétés rhéologiques (viscosité, coefficient de consistance, indice du comportement de l'écoulement) du mix ou du produit final.	M. R. Muse and R. W. Hartel (2004) Cerecero (2003) Haddad (2009)
5	Abaissement du point de congélation, concentration de sucre et/ou fraction de glace.	C. Clarke (2004) Kostadin A. Fikiin (1998) Rosalia Cerecero (2003)
6	Indice de matière grasse déstabilisée	Goff (1997) Goff (2000) Bolliger et al. (2000 a-b) C. Clarke (2004) Goff et al. (1999)
8	Augmentation de volume ("Overrun")	Flores and Goff (1999 ) Rosalina P. Sofjan (2004) M. R. Muse and R. W. Hartel (2004) Rosalina P. Sofjan et Richard W. Hartel (2003)
9	Vitesse de fonte	Rosalina P. Sofjan et Richard W. Hartel (2003) M. R. Muse and R. W. Hartel (2004) E. M. Drewett and R. W. Hartel (2007)
10	Dureté	M. R. Muse and R. W. Hartel (2004) S. Bolliger et al. (2000)
11	Forme des cristaux	C. Clarke (2004)
12	Distribution de taille de globules de matière grasse	Goff et al. (1999)

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

### *Critères sensoriels*

Le critère majeur de qualité du produit est l'acceptation par le consommateur. Ce critère peut être synthétisé à partir de l'analyse de critères sensoriels telles que la fermeté, la dureté, la sensation de froid, la douceur, etc. Il existe de nombreux liens entre la microstructure, les propriétés physiques du produit et les critères sensoriels. Une synthèse de ces liens est présentée dans la figure 1.15.

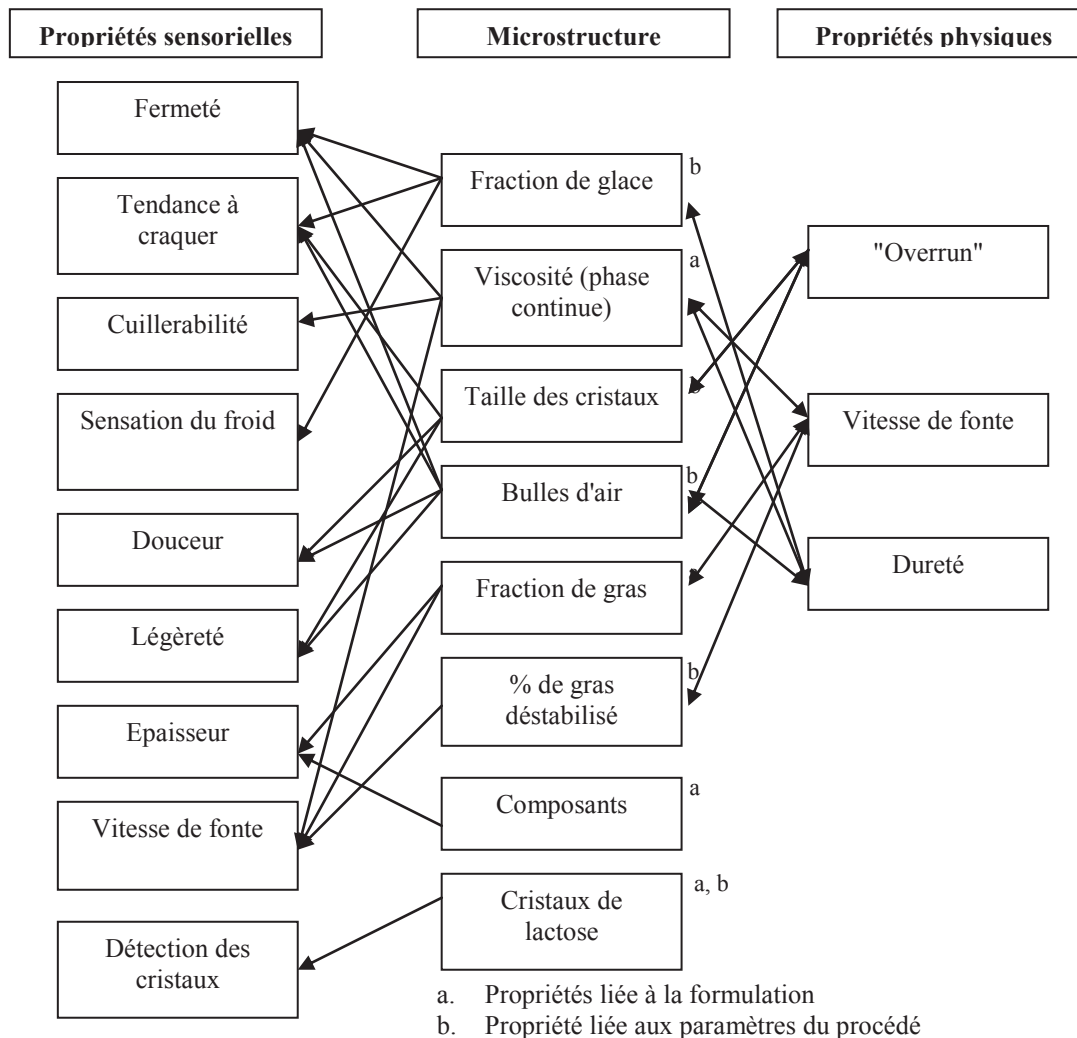


Figure 1. 15. Liens entre propriétés physiques, microstructure et critères sensoriels

### *Critère énergétique*

La réduction de la puissance électrique consommée par le "freezer" pour la transformation du mix en crème glacée ou sorbet peut être également considérée comme un objectif de contrôle.

Un premier poste de consommation électrique est lié au transport du mix jusqu'à l'échangeur réalisé en général par une pompe. Le deuxième poste provient de l'effort nécessaire pour

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

racler les parois et agiter le produit. Ceci est réalisé par un rotor fourni de lames racleuses, entraîné par un moteur. Le troisième poste est lié à la génération du froid, fourni le plus souvent par une installation frigorifique basée sur le principe du cycle à compression de vapeur. Enfin un quatrième poste est dédié au transport du produit final par l'utilisation d'une pompe appropriée (figure 1.16).

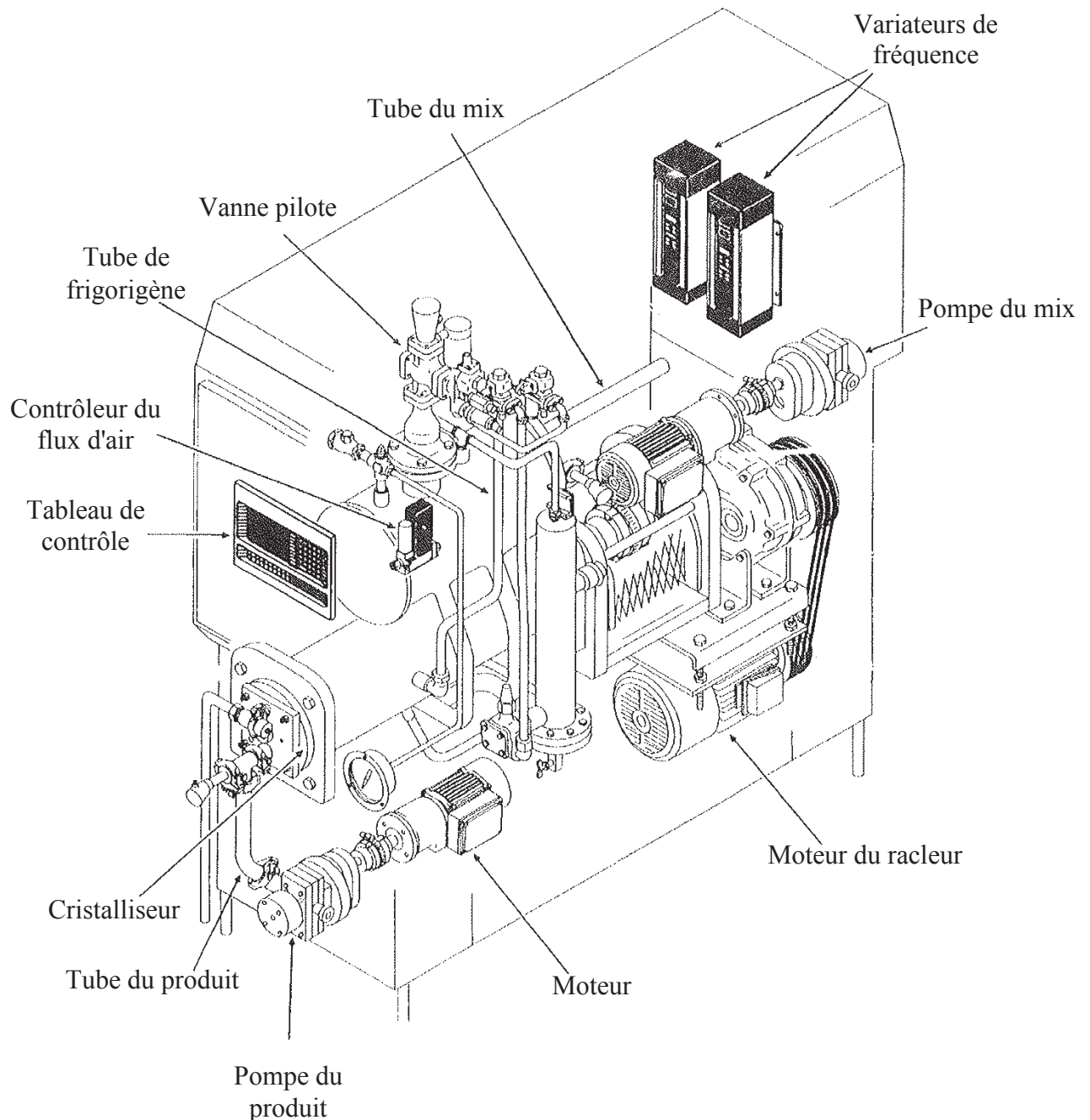


Figure 1. 16. Machine à crème glacée ("freezer") conventionnelle (Marshall et al., 2003)

Un exemple de répartition des puissances électriques consommées est présenté dans la figure 1.17. On peut voir dans cet exemple que le compresseur de l'installation frigorifique consomme à lui seul les trois quart de l'électricité totale. Le raclage représente également une part importante, cette part étant fortement liée à la température de fonctionnement.



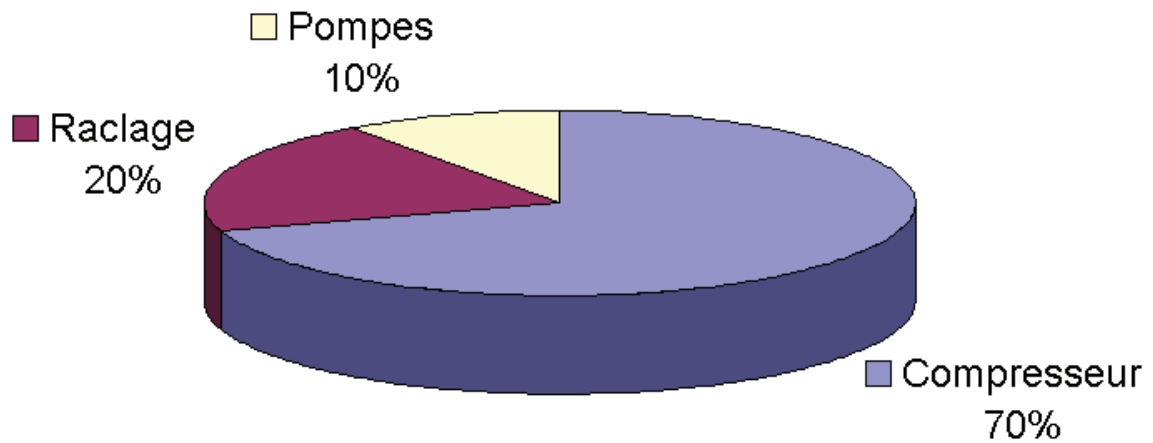


Figure 1. 17. Répartition en pourcentage des consommations électriques des différents moteurs impliqués dans une machine à crème glacée.

### 1.3.3 Capteurs pour la mesure de la qualité de la crème glacée

Le tableau 1.5 présente une synthèse de la disponibilité ou non de capteurs en fonction des différents paramètres physiques et propriétés de microstructure ayant une influence sur la qualité du produit.

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

**Tableau 1. 5.** Des méthodologies et capteurs pour la mesure de la qualité d'une crème glacée ou sorbet

<b>PROPRIETE</b>	<b>ANALYSE</b>	<b>OBSERVATIONS GENERALES</b>	<b>REFERENCES</b>
De la microstructure (Distribution de taille des cristaux, globules de gras ou bulles d'air)	<i>Analyse optiques</i> (SEM, TEM, Cryo-SEM, microscopie optique)	Hors ligne, des besoins des conditions spéciales, coûts élevés d'opération	C. Clarke (2004), Russell et al. (1999), Y. Chang and R. W. Hartel (2002), M. R. Muse and R. W. Hartel (2004), S. Bolliger (2000 a), S. Bolliger (2000 b), Rosalina P. Sofjan et Richard W. Hartel (2003)
	<i>Granulométrie</i> (ELSONE 280, FBRM)	En ligne, prix d'achat élevé	Lian et al. (2006), Haddad (2009), Arellano et al., (2011).
	<i>Vidéo imagerie</i>	Online, limité à certaine fraction de glace	E. Kougoulos et al. (2004), Arellano et al., 2010
	<i>NIR, NMR</i>	Hors ligne	E. J. Windhab et S. Bollger (1999), Hossein Kiani et Da-Wen Sun (2011)
Propriétés rhéologique et de transport	<i>Rhéologie</i>	Hors ligne, rhéologie des mix	M. R. Muse and R. W. Hartel (2004), Haddad 2009, Cerecero 2003.
	<i>Viscosimétrie</i> (Viscosimètres capillaires, ultrasons, calculé par le couple du racleur)	En ligne	Rosalina Cerecero (2003), E. J. Windhab et S. Bollger (1999), Marshall et al., (2003), Elhweg, B. et al., (2009), Grossi, M. et al., (2011), E. J. Windhab et S. Bollger (1999)
Fraction de glace	<i>DSC, NMR, NIR,</i>	Hors ligne, des analyse longues	Goff (2000) Bolliger et al. (2000 a), Goff et al. (1999)
	<i>Ultrasons, conductivité</i>	En ligne	E. J. Windhab et S. Bollger (1999)
"Overrun"	<i>Rapport des poids du mix et du produit</i>	Hors ligne	M. R. Muse and R. W. Hartel (2004), E. M. Drewett and R. W. Hartel (2007), Rosalina P. Sofjan et Richard W. Hartel (2003)
Vitesse de fonte	<i>Mesure du temps pendant lequel une masse de produit se maintient congelée</i>	Hors ligne, des analyse longues	M. R. Muse and R. W. Hartel (2004)
Dureté	<i>Pénétromètre</i>	Hors ligne	M. R. Muse and R. W. Hartel (2004), C. Clarke (2004)

Bien qu'il existe quelques capteurs pouvant être utilisés en ligne, la mise en œuvre d'une stratégie de contrôle de la structure cristalline du produit est rare.

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

### 1.3.4 Stratégies de contrôle existantes pour la cristallisation de crème glacée

Dans le but d'améliorer l'efficacité du procédé et la qualité du produit, les deux critères de contrôle les plus étudiés sont la quantité d'air injectée et la viscosité.

#### *Contrôle de l'overrun*

La majorité des machines à crème glacée automatisées utilisent des débitmètres massiques pour la mesure du débit du mix à travers l'échangeur. Cette information de mesure de débit massique est alors utilisée pour contrôler le débit d'air nécessaire pour l'obtention de l'overrun souhaité.

#### *Contrôle de la viscosité et température de sortie du freezer*

La viscosité du produit est en pratique le plus souvent évaluée à partir du pourcentage de charge du moteur du racleur par rapport à la puissance maximale qu'il peut délivrer. Lorsque le contrôle du procédé s'effectue sur ce critère, une mesure de la charge du moteur différente de la consigne provoquera une action sur la température d'évaporation du fluide frigorigène. Cette action provoquera une évolution adéquate de la température du produit, ce qui permettra de réduire ou d'augmenter selon les cas sa « viscosité ».

#### *Contrôle de la pression dans le cylindre de l'échangeur*

La pression dans le cylindre est un critère de contrôle important puisqu'une valeur trop basse ou trop élevée de cette pression altère la mesure de la charge du moteur de raclage, mais aussi et surtout le phénomène de mélange de l'air au mix pendant la transformation. Ce paramètre est en général systématiquement contrôlé en boucle fermée dans les systèmes existants.

### 1.3.5 Perspectives pour le contrôle de la cristallisation

Comme on a pu le voir dans le paragraphe précédent, les stratégies de contrôle existantes sont limitées par la disponibilité de capteurs adaptés. En particulier, le contrôle fréquemment mis en œuvre de la viscosité apparente par la mesure de la puissance consommée par le rotor, montre que le simple contrôle de température en sortie ne suffit pas à l'utilisateur.

Quelques auteurs proposent des premières améliorations de la métrologie pour ce procédé. Grossi et al., (2011) proposent un nouveau capteur d'impédance basé sur la mesure des propriétés électriques du produit à partir d'électrodes sensibles aux changements de ce type de propriétés. Ces électrodes ont été connectées sur un analyseur Agilent E4980A capable d'estimer l'impédance du produit. Les mesures de l'impédance ont été réalisées à l'utilisation d'un échangeur de chaleur à surface raclée discontinu couplé avec un capteur de température du type Pt100 et d'un ampèremètre pour le racleur. Ils ont ainsi pu mettre en évidence une corrélation entre la fraction de glace, la viscosité du produit et l'impédance. Ils concluent,

donc, que l'utilisation de ce nouveau capteur permet de caractériser la fraction de glace et la viscosité du produit et proposent son utilisation dans une boucle de contrôle.

Haddad (2009) propose l'utilisation d'un dispositif de mesure de taille des particules "FBRM" (Focus Beam Reflectance Measurements) pour la caractérisation de la distribution de tailles d'un produit cristallisé en sortie d'un échangeur de chaleur à surface raclée. En se basant sur ces résultats, Arellano et al. (2011) ont utilisé ce capteur pour la caractérisation de la distribution de taille des cristaux dans un procédé continu de fabrication d'un sorbet. Les résultats ont confirmé la pertinence de ce capteur.

Afin d'évaluer des propriétés sensorielles en ligne, Peter M.M. Bongers (2008) a conçu un système d'analyse à partir de réseaux neuronaux pour des machines à crème glacée en continu. L'objectif de son travail était d'établir un modèle prédictif basé sur l'observation directe des propriétés physiques et sensorielles d'une crème glacée. Il a ainsi décomposé le système en trois fonctions concernant le procédé, les propriétés physiques et l'évaluation du consommateur (figure 1.18).

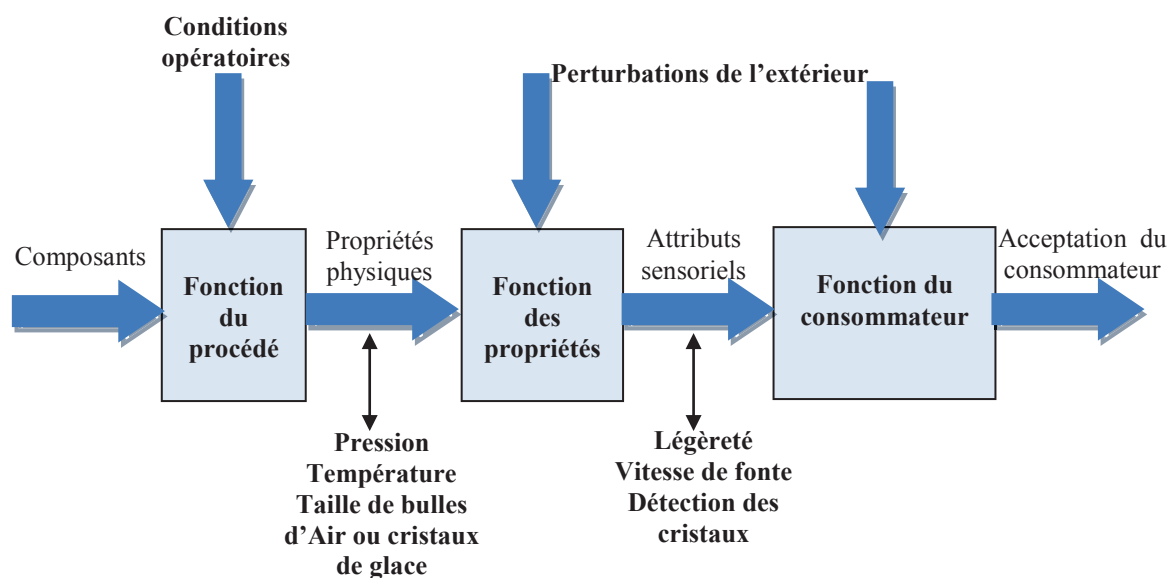


Figure 1. 18. Fonctions entre le procédé, les propriétés physiques et l'acceptation des consommateurs

L'étude s'appuie sur le protocole expérimental suivant :

- Un freezer conventionnel ou un freezer couplé avec une extrudeuse (afin d'étudier l'impact du type d'équipement)
- Un mix dont la formulation en matière grasse pouvait varier entre 8 et 12 %
- Une mesure de la température de sortie du produit (soit -6 °C pour l'utilisation d'un freezer conventionnel ou -13°C pour le freezer couplé avec l'extrudeuse).
- L'évaluation des propriétés sensorielles (par un panel de spécialistes évaluant 25 critères différents).

Ainsi, à partir d'une analyse statistique il propose une structure du réseau neuronal à 7 niveaux pour chacun des critères sensoriels (figure 1.19). Ce modèle des propriétés sensorielles ainsi constitué a montré une bonne capacité de prédiction, y compris lorsque le système était soumis à des perturbations de la formulation ou extérieures.

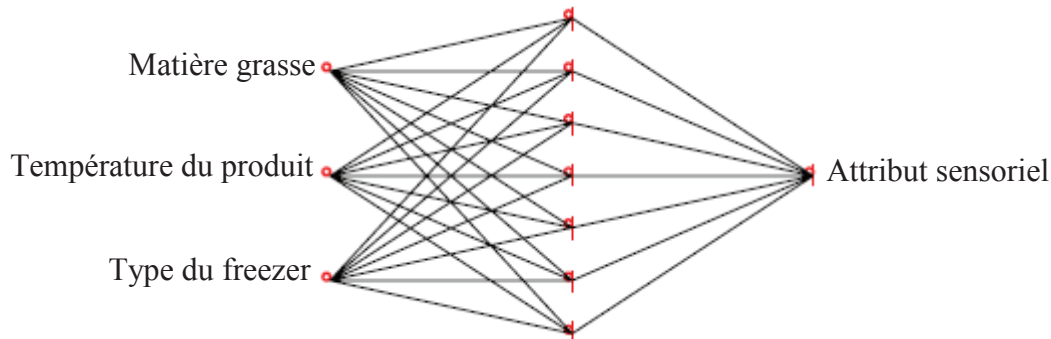


Figure 1. 19. Structure d'un réseau neuronal pour un attribut sensoriel

### 1.4 Conclusion de l'étude bibliographique

Le contrôle d'un procédé de cristallisation, et du procédé de cristallisation de la crème glacée notamment, se heurte à plusieurs difficultés :

- un manque de connaissance de l'influence des variables de contrôle sur le produit cristallisé, et en particulier sur ses attributs liés à la qualité (taille des cristaux par exemple)
- un manque de connaissance sur les propriétés des mix commerciaux et en particulier leurs comportements à l'écoulement
- l'inadéquation des modèles de cristallisation basés sur les bilans de population pour la conception de boucles de contrôle
- la difficulté de disposer de capteurs adaptés à la mesure en ligne des paramètres d'intérêt

Ce travail de thèse a comme objectif d'apporter des éléments de réponse à ces différents points:

1. à partir d'une installation pilote de cristallisation en continu, dans le cas particulier de la cristallisation d'un sorbet sans matière grasse et sans bulles d'air, on propose de caractériser expérimentalement l'influence des différentes variables de contrôle sur le produit cristallisé. En particulier, l'impact sur la taille moyenne des cristaux sera mesuré.
2. afin de permettre la modélisation du procédé, une caractérisation du comportement rhéologique du mix sera réalisée et un modèle développé
3. on propose d'établir un modèle du procédé de cristallisation adapté à la conception de boucles de contrôles, permettant de concevoir et de mettre au point une boucle de contrôle telle que défini dans la figure 1.20

4. enfin une analyse de la consommation énergétique de ce procédé sera effectuée, en se basant sur la caractérisation expérimentale et une stratégie d'optimisation sera proposée

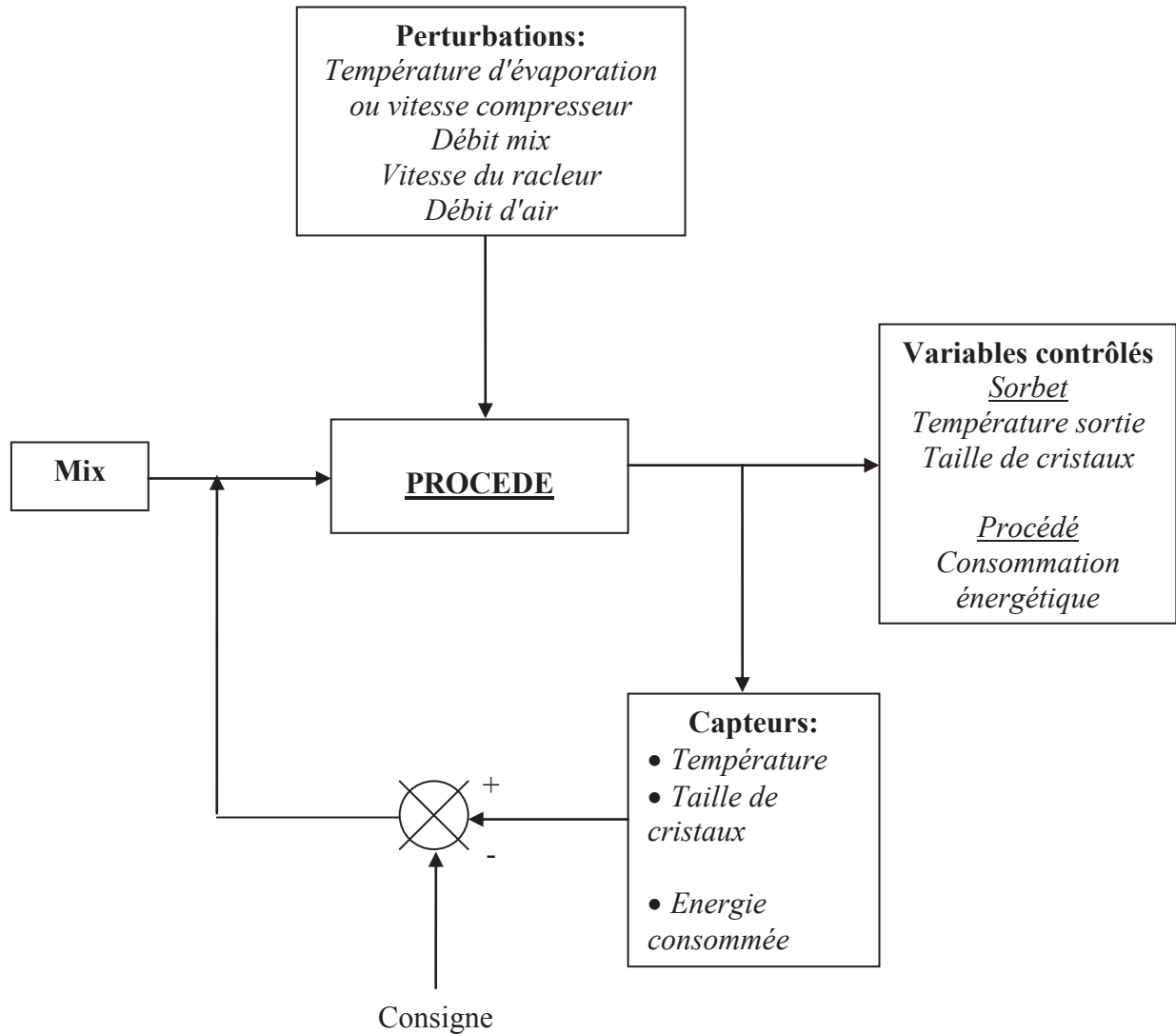


Figure 1. 20. Boucle de contrôle proposée pour le procédé de cristallisation en continu

## Chapitre 2 MATERIELS ET METHODES

### 2.1 La solution utilisée: mix de sorbet

La solution modèle retenue dans cette étude est un mix destiné à la production de sorbet citron. Ce mélange est fourni par la Laiterie Montaigu<sup>®</sup> et sa composition est présentée dans le tableau 3.1.

**Tableau 2. 1**Composition du mix citron utilisé dans les expériences

	<b>% pondéral</b>
	<b>Citron</b>
Jus concentré de citron à 60 °B	3,00
Saccharose	14,60
Fructose	8,00
Dextrose	0,09
Stabilisants	0,50

Pour ce mix, le fabricant donne une concentration en degré Brix (concentration totale en masse des solides) de 25 (+0,5/-1) qui a été confirmé par la mesure de l'index de réfraction à l'aide d'un réfractomètre ATAGO<sup>®</sup> (Japon). Les mesures rhéologiques et les mesures des propriétés thermiques sont présentées dans le paragraphe suivant.

### 2.2 Caractérisation du mix

La caractérisation du mix a consisté à identifier ses propriétés physicochimiques rhéologiques et thermiques. Pour réaliser cette caractérisation, le mix a été soumis à une opération préliminaire consistant à préparer par évaporation sous vide plusieurs échantillons correspondant à différentes concentrations en matière solide. Les mesures sur ces différents échantillons permettent de déduire l'évolution des propriétés lors du procédé de cristallisation, procédé faisant apparaître une solution résiduelle de plus en plus concentrée au fur et à mesure de la formation des cristaux de glace (figure 2.1).

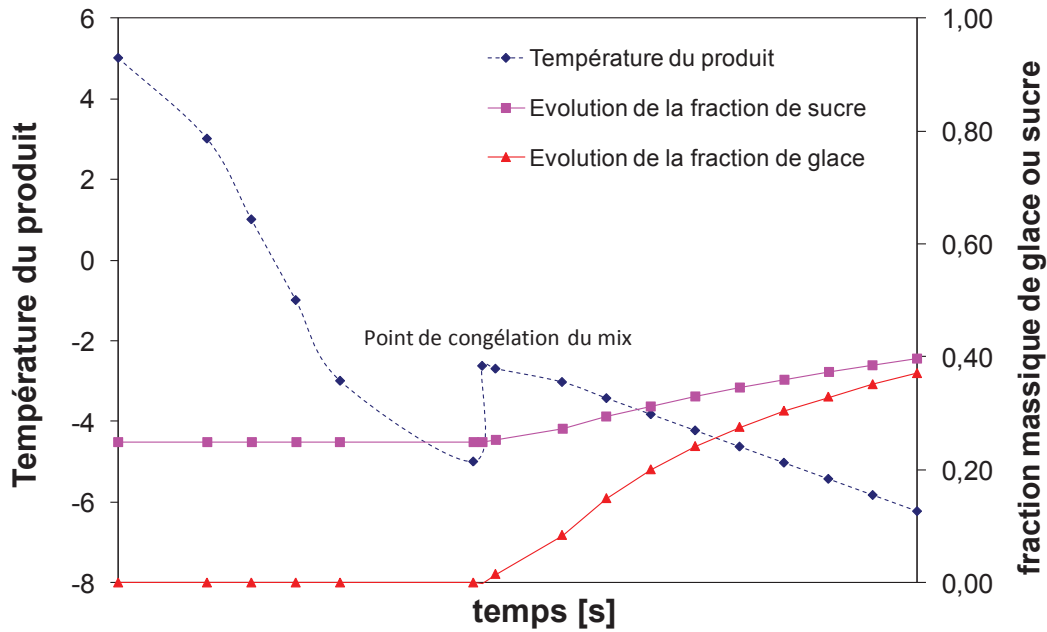


Figure 2. 1. Evolution de la fraction de glace et des solides pendant la production de la crème glacée

*Préparation des échantillons à différentes concentrations:* un volume de 500 ml de mix est introduit dans un verre ballon connecté à un rota-vapeur et couplé à une pompe à vide. La réduction de la pression résultante dans le ballon permet d'effectuer l'évaporation à basse température ( $\sim 50-60$  °C), ceci afin d'éviter une éventuelle caramélisation des sucres, décomposition ou altération des composants. Le mix est chauffé au bain Marie pendant 5 h à une température de 60 °C et une pression de 100 mbar (la température de saturation de l'eau à cette pression est de 49°C). Le chauffage est arrêté lorsque l'eau évaporée atteint 250 ml, quantité correspondant à une concentration deux fois plus élevée en matière solide du mix initial. La solution finale est alors refroidie à 25 °C et diluée avec de l'eau distillée afin de préparer les échantillons à différentes concentrations (32, 36,5, 42 et 49 ° Brix pour les tests rhéologiques; 25,2, 34,5, 40, 47 et 54 ° Brix pour les mesures thermiques). La concentration en solide de chaque solution a par la suite été mesurée à l'aide d'un réfractomètre CETI (Royaume Uni) et/ou ATAGO® (Japon), et les échantillons ont été entreposés à une température de 4 °C.

### 2.2.1 Propriétés thermiques

L'objectif des analyses thermiques est l'obtention du point de congélation et la mesure de l'enthalpie du mix à différentes concentrations de solide.

Les propriétés thermiques ont été caractérisées par microcalorimétrie à l'aide d'une unité Mettler-Toledo® DSC (modèle DSC 822e/200W). La précision de cet appareil est de 0,04  $\mu$ W et 0,2 °K, et est utilisable dans une gamme de températures entre -50 et 500 °C. Cet appareil est équipé d'un système de contrôle de température de la cellule de mesure utilisant un



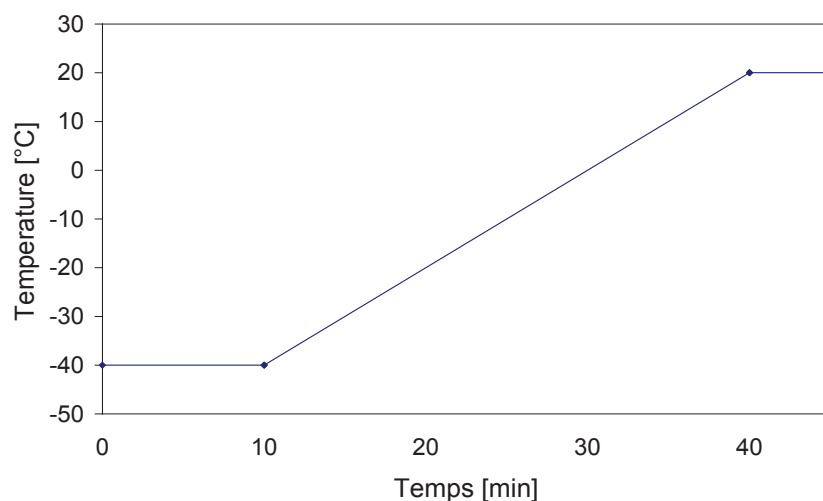
## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES

mélange d'azote liquide et d'air comprimé pour le refroidissement et de résistances électriques pour le chauffage.

L'ensemble est connecté à une interface de communication contrôlée par le logiciel STARe V9.0, permettant de définir un profil de température à suivre (isotherme, température dynamique ou mélange) et de visualiser les courbes de réponse du produit traité en temps réel ainsi que le post-traitement des résultats.

### *Les analyses thermiques*

Pour chaque analyse, une quantité de 8 à 15 mg de chaque solution du mix concentré (pesé dans une microbalance Mettler-Toledo® modèle DT5 d'une résolution de 0,001 mg) est placée dans un creuset standard d'aluminium de 40 µl positionné sur le carousel du DSC. A l'aide du logiciel de STARe, on programme la gamme de températures à tester et on donne la position de l'échantillon sur le carousel d'échantillonnage. Pour les mesures des points de congélation et des enthalpies, l'appareil a été programmé selon la figure 2.2:



**Figure 2. 2.** Protocole de température pour les mesures du microcalorimétrie pour le Mettler-Toledo® DSC (modèle DSC 822e/200W)

On définit une première période de 10 minutes à -40 °C pour obtenir une congélation totale de la solution, puis une remontée en température de -40 °C à 20 °C à une vitesse de 5 °C par minute. Durant cette phase, la solution congelée fond, ce qui permet d'identifier le point de congélation. Pour terminer l'expérience, on maintient la température à 20 °C pendant 5 minutes.

L'analyse des données consiste à identifier le pic caractéristique du changement de phase solide-liquide, et à intégrer l'énergie fournie par rapport à la température afin d'obtenir la valeur de l'enthalpie.

## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES

### 2.2.2 Caractérisation rhéologique

Le comportement rhéologique des mix pour la production de la crème glacée ou sorbets est peu connu, mais il est cependant nécessaire pour la modélisation du procédé de cristallisation, et en particulier lorsque le mix est un fluide non Newtonien et donc la viscosité apparente du mix dépend de la concentration de solides dans le mix de la température et de la vitesse de cisaillement.

L'objectif de la caractérisation rhéologique du mix réalisée ici est l'obtention d'un modèle rhéologique du mix permettant d'évaluer la viscosité de la solution résiduelle lors de la cristallisation en fonction de la température du produit et de la vitesse de cisaillement.

#### *L'appareil de mesure*

Pour la caractérisation rhéologique nous avons utilisé un rhéomètre UDS 200<sup>®</sup> (Physica) équipé d'une cellule sous pression utilisée pour les mesures. La cellule est équipée d'un cylindre externe (diamètre: 27,1 mm) et d'un cylindre interne tournant (diamètre 25 mm). Cette cellule a été conçue pour la caractérisation du comportement rhéologique des produits semi-solides entre -20 et 140 °C sans ébullition.

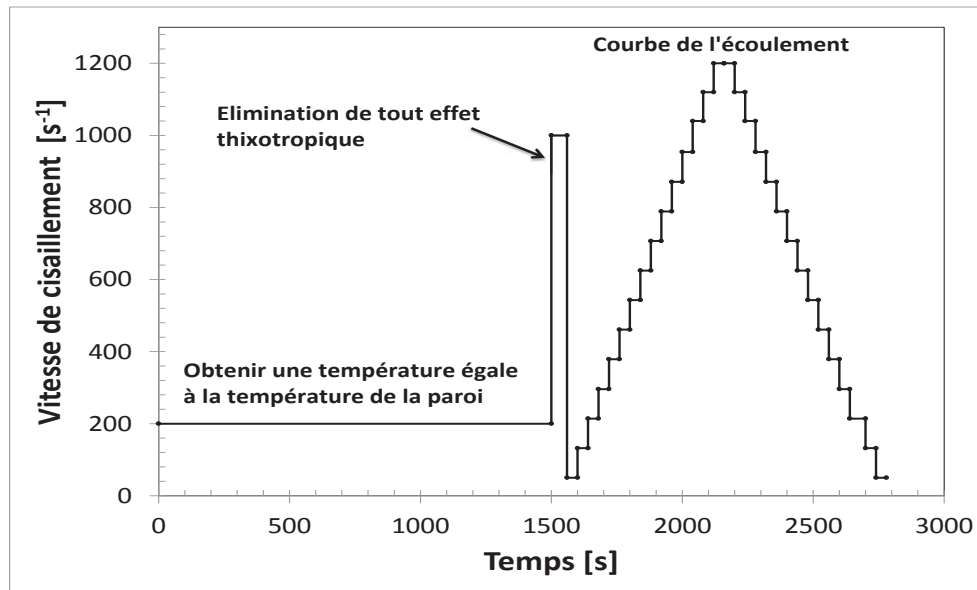
Le cylindre externe a été développé au laboratoire (Alvarez Leguizamo, 2006) pour pouvoir reproduire les conditions thermiques caractéristiques d'un procédé de production des aliments de type semi-solide. Pour le contrôle de la température pendant l'analyse, le dispositif est équipé d'une double enveloppe dans laquelle circule un fluide frigoporteur (de l'huile de silicone) et de résistances électriques chauffantes insérées à intervalles réguliers entre les deux cylindres.

#### *La courbe de l'écoulement et les conditions opératoires*

Les études rhéologiques du mix ont été réalisées dans les conditions suivantes:

- La mesure a été réalisée à pression atmosphérique.
- Les températures choisies sont supérieures au point de congélation initiale du mix (obtenue par la méthode DSC et égal à -2,63 °C, voir résultats).
- Nous avons appliqué un pré cisaillement de 1000s<sup>-1</sup> avant la mesure afin de casser toute structure qui aurait pu se former au repos (thixotropie).
- La plage de vitesse de cisaillement a varié 100 jusqu'à 1000 s<sup>-1</sup>, valeurs de cisaillement correspondant aux valeurs auxquelles est soumis le mix pendant le procédé de cristallisation.

A partir des conditions définies précédemment, on a défini un protocole de mesures, qui vise en particulier à maintenir une température constante pendant l'expérience et à éliminer l'effet de thixotropie (changement structurel du mix par rapport au temps de cisaillement). Le protocole de mesure est illustré figure 2.3:



### 2.3 La machine à crème glacée

Une machine à crème glacée (ou freezer) consiste en un échangeur de chaleur à surface raclée (ECSR) couplé à une machine frigorifique. Cet ECSR est composé d'un cylindre à double enveloppe et d'un rotor muni de lames qui raclent la paroi intérieure du cylindre. De l'autre côté de l'enveloppe circule un fluide frigorigène en ébullition (généralement entre -15 et -20 °C).

#### 2.3.1 Description de la machine à crème glacée ("Freezer")

Le « freezer », pilote semi-industriel (modèle WCB MF-50), est équipé d'une pompe de type piston permettant un débit entre 25 et 75 kg-h<sup>-1</sup> de mix, d'un moteur entraînant le racler de l'ECSR à une vitesse comprise entre 200 et 1000 tr-min<sup>-1</sup>, et d'un système d'injection d'air branché à l'entrée du cristalliseur. Le froid est fourni par une machine frigorifique pouvant fonctionner entre -30 et 0°C, et utilisant le R22 (Chlorodifluorométhane) comme fluide frigorigène qui s'évapore dans une double enveloppe de l'ECSR.

Une cuve de stockage à double enveloppe couplée avec une machine frigorifique a été mise en place afin de maintenir une température constante du mix à l'entrée de la machine à crème glacée. L'ensemble des appareils est présenté dans la figure 2.4.

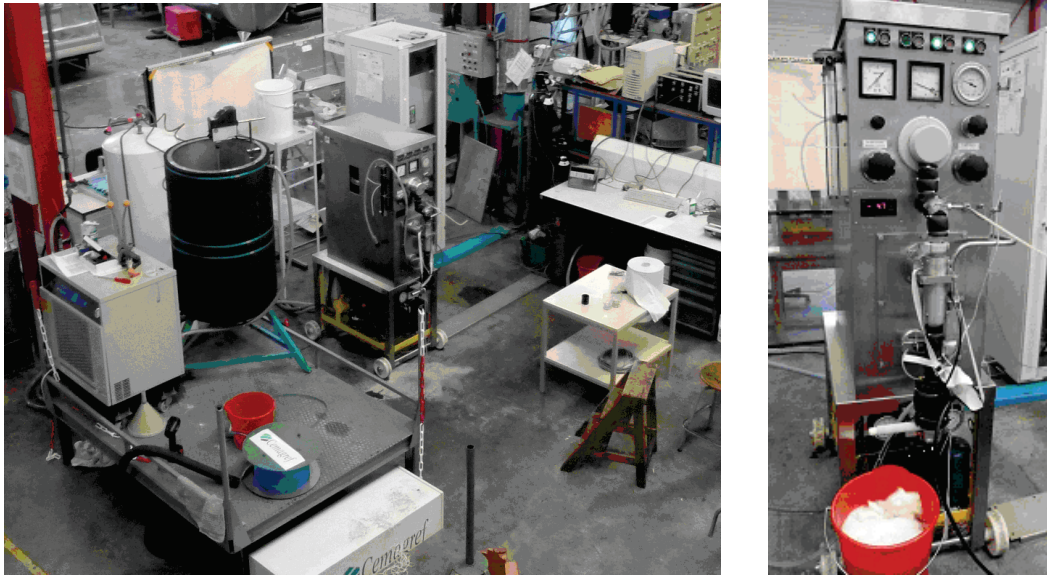


Figure 2. 4. Le Pilote "Freezer"

▪ *Le cristalliseur*

La fonction du cristalliseur est de transformer le mix en sorbet. Ce cristalliseur est composé d'un cylindre de diamètre 0,05 m et d'une longueur de 0,4m. Le volume total du cylindre est de  $7,85 \times 10^{-4} \text{ m}^3$ . A l'intérieur de ce cylindre, on trouve un rotor solide qui occupe 45 % du volume du tube. Sur ce rotor sont fixées deux lames permettant le raclage de la paroi (figure 2.5).

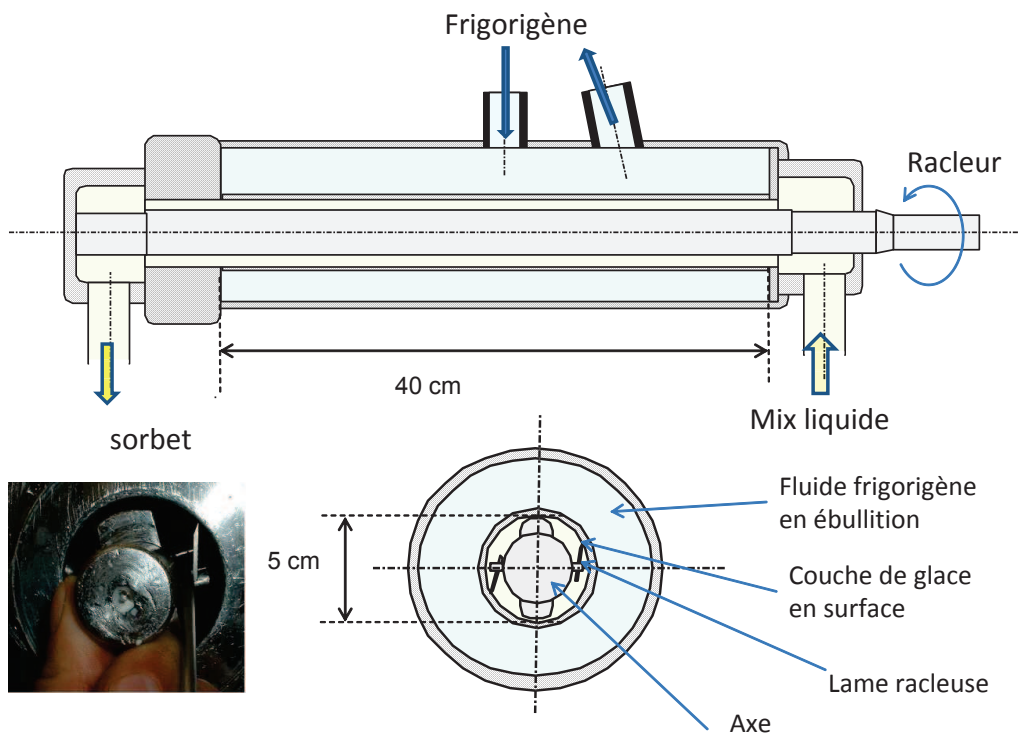


Figure 2. 5. Rotor solide équipé des lames racleuses

Le mix circule dans ce cylindre intérieur (figure 2.5). Dans la double enveloppe circule le fluide frigorigène entrant à l'état liquide-vapeur et sortant uniquement en vapeur. L'ébullition de ce fluide permet d'absorber la chaleur dégagée lors de la cristallisation.

▪ *La machine frigorifique*

La fonction de la machine frigorifique est de transporter l'énergie d'une source froide (ici le mix) vers une source chaude (l'eau de refroidissement). Pour ceci elle utilise l'énergie mécanique fournie au compresseur et met en œuvre une série de transformations endo et exothermiques dans une succession de composants formant un cycle (figure 2.6).

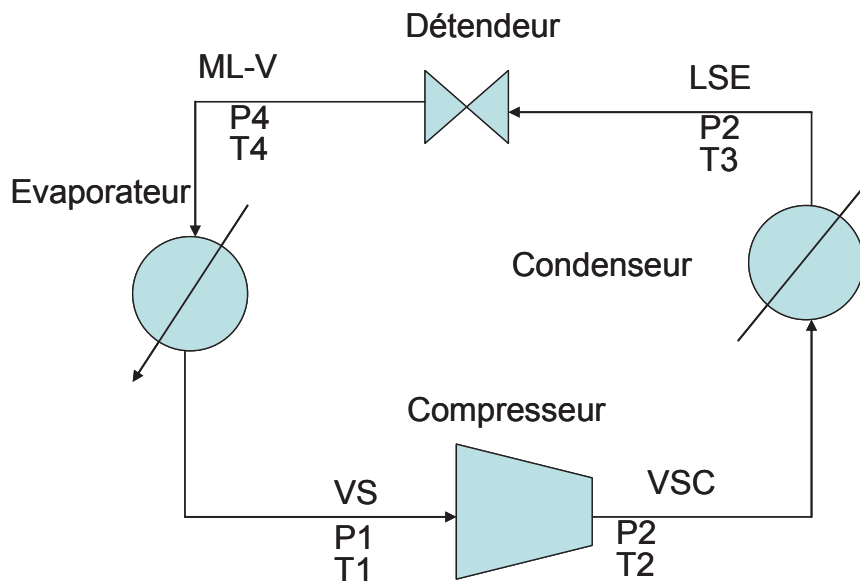


Figure 2. 6. Présentation du cycle de réfrigération

Le cycle de réfrigération commence par la compression d'un fluide à l'état gaz (par exemple de l'ammoniac ou un fluide fluoro-carboné). Le résultat de cette compression est une vapeur surchauffée à haute pression qui est alors refroidie dans un échangeur thermique (le condenseur). La fonction de ce composant est donc de transformer le gaz en liquide sous-refroidi, et ceci à haute pression (une dizaine de bars). Ce liquide est alors soumis à une variation brusque de pression à l'aide d'un détendeur. Cette détente est généralement considérée comme étant isenthalpique. Lors de cette détente, le liquide se transforme en un mélange liquide-vapeur (dont la température est égale à la température de saturation du fluide correspondant à la pression d'évaporation). Ce mélange liquide-vapeur traverse alors un évaporateur qui, en permettant le transfert de chaleur du milieu refroidi vers le frigorigène, provoque l'évaporation du liquide. La vapeur quittant l'évaporateur est alors renvoyée vers le compresseur (W. Maake et al., 1993).

L'architecture de l'installation utilisée dans cette étude est complétée par un échangeur liquide-vapeur permettant de sous refroidir le liquide à la sortie du condenseur, ce qui améliore l'effet frigorifique, mais aussi surchauffe les vapeurs à l'aspiration du compresseur, ce qui tend à dégrader la performance. Le bilan est cependant généralement positif, même s'il

est peu utilisé habituellement pour le R22. L'objectif de ce composant est surtout d'éviter l'injection de liquide à l'aspiration du compresseur en évaporant les éventuelles gouttelettes ayant quitté l'évaporateur. L'installation frigorifique d'origine met également en œuvre une vanne à la sortie de l'évaporateur (appelée ici vanne pilote), permettant de brider le volume massique aspiré par le compresseur et donc de contrôler par ce moyen la puissance frigorifique. Cette méthode de contrôle de la puissance est cependant connue comme particulièrement « énergivore ».

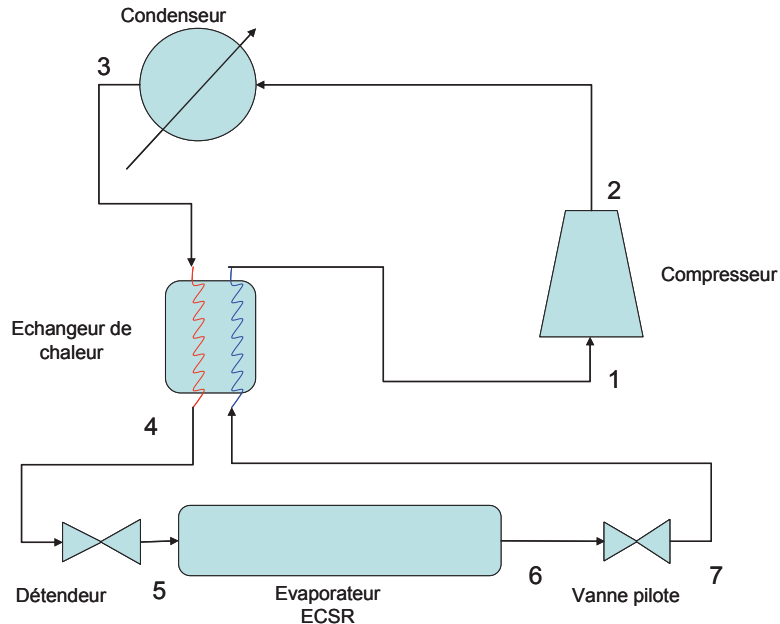


Figure 2. 7. La machine frigorifique pour la production de la crème glacée

Le cycle suivi par le fluide frigorigène dans l'installation frigorifique expérimentale est représenté figure 2.8 dans un diagramme de Mollier. Dans ce diagramme, l'axe des abscisses représente l'enthalpie et l'axe des ordonnées (en échelle logarithmique) la pression. Dans ce diagramme, on peut voir en particulier l'action de la « vanne pilote » entre les points 6 et 7, qui provoque une perte de charge artificielle sur le circuit.

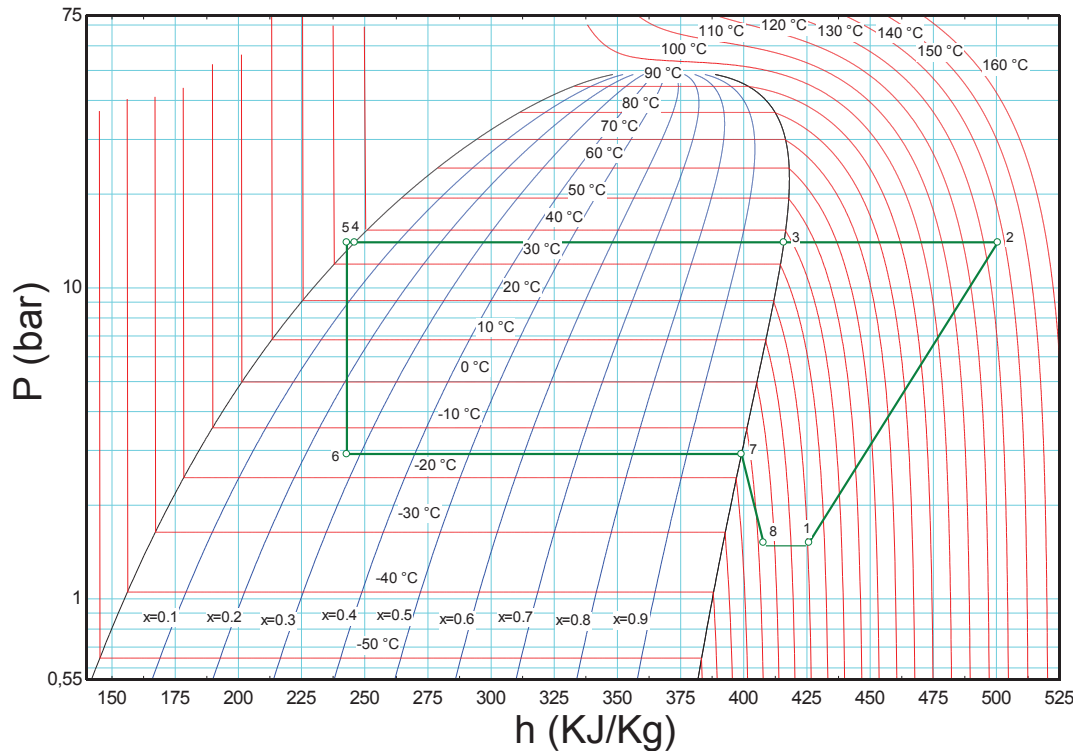


Figure 2. 8. Représentation dans le diagramme de Mollier du cycle réel de réfrigération utilisé dans un machine à crème glacée .

## 2.4 Modification du "Freezer"

Un des objectifs du projet est la mise en place d'une boucle de contrôle de la machine frigorifique. Afin de pouvoir atteindre cet objectif, il a été nécessaire de modifier le principe de fonctionnement du groupe frigorifique.

L'architecture initiale de la machine frigorifique utilisant la vanne à l'aspiration du compresseur (« vanne pilote ») est présentée dans la figure 2.9.

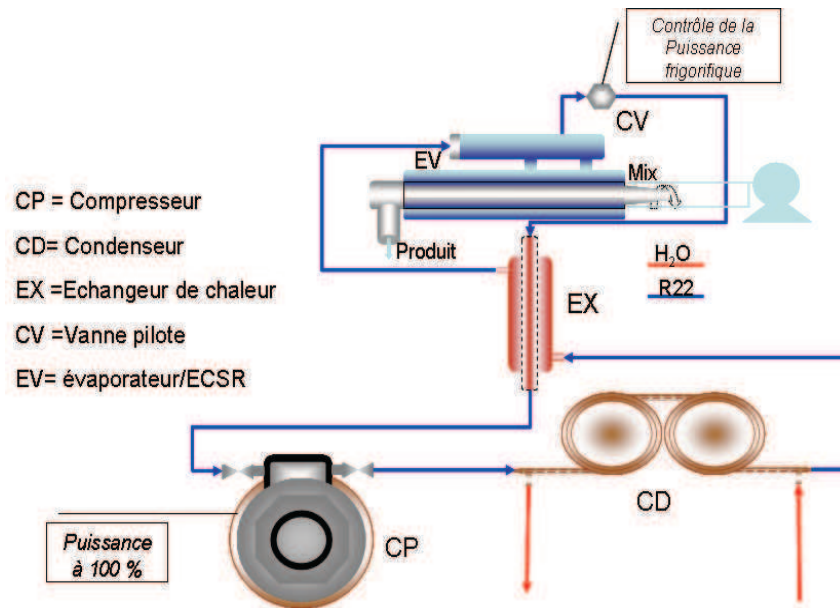


Figure 2. 9. Diagramme général du "Freezer"

Les avantages et inconvénients de cette configuration peuvent être décrits comme suit:

*Avantages :*

- La vanne pilote permet un réglage facile et précis de la température d'évaporation

*Désavantages :*

- Le compresseur fonctionne toujours à vitesse maximale et avec un taux de compression important
- Comme le compresseur est le principal poste de consommation énergétique, la puissance électrique consommée globale du système est importante

#### 2.4.1 Compresseur à vitesse variable

Afin de réduire la consommation énergétique de l'installation frigorifique et de permettre un contrôle distant de la puissance frigorifique, le compresseur, initialement à vitesse fixe, a été remplacé par un compresseur à vitesse variable. La variation de la vitesse du compresseur permet en effet un contrôle du débit volumétrique de frigorigène entraîné, et donc de la puissance frigorifique.

La vanne pilote, initialement utilisée pour contrôler la puissance frigorifique et n'ayant plus d'utilité dans ce cas, a été invalidée par une nouvelle architecture de la machine, mais sans être toutefois retirée. Ceci a permis de comparer les performances dans les deux configurations.

La nouvelle architecture est présentée dans la figure 2.10.



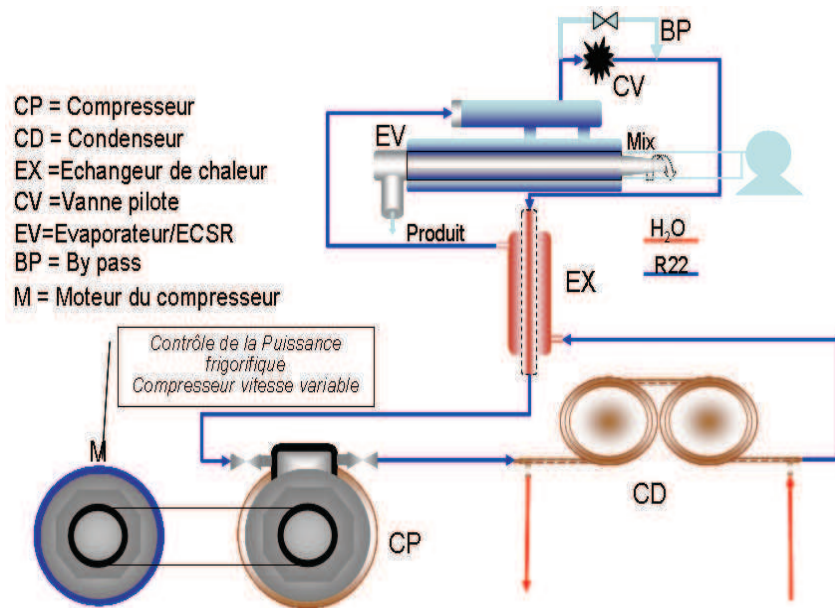


Figure 2. 10. Modification de la machine frigorifique

Cette nouvelle architecture a également des avantages et des inconvénients :

*Avantages :*

- La température n'est plus contrôlée directement par une vanne, mais par l'intermédiaire de la vitesse du compresseur. Le contrôle direct par l'utilisateur de la température d'évaporation nécessite cependant la mise en place d'un régulateur
- Le compresseur fonctionne à charge partielle, en adaptant sa puissance à la demande en froid, et avec un taux de compression variable

*Désavantages :*

- Le contrôle est plus complexe, des éléments supplémentaires (régulateurs) seront nécessaires pour le pilotage

Les différences entre les deux configurations de la machine provoquent un changement important du cycle frigorifique décrit par le frigorigène comme on peut le voir dans la figure 2.11.

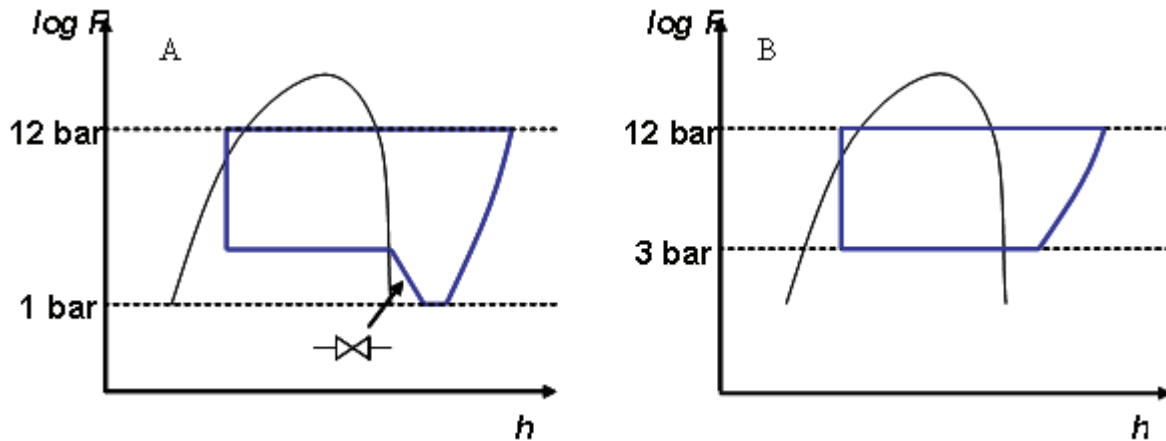


Figure 2. 11. Différences dans le cycle de réfrigération. A) Vanne pilote, B) Vitesse du compresseur

On remarquera en particulier l'évolution du taux de compression « vu » par le compresseur, la pression évoluant de 1 à 12 bar dans le cas A et de 3 à 12 bar dans le cas B. Cette évolution du taux de compression d'une valeur de 12 à une valeur de 4 se traduit bien évidemment par une consommation électrique moindre de ce composant et une amélioration de la performance du cycle.

#### 2.4.2 Variateurs de fréquence

Afin de permettre le pilotage des actionneurs tels que moteurs du racleur, du compresseur et de la pompe d'alimentation, nous avons installé un système permettant la variation de fréquence.

La variation de vitesse du compresseur est obtenue à partir d'une variation de fréquence de son alimentation électrique. Des variateurs de fréquence ont été également ajoutés sur les deux autres postes de consommation électrique : la pompe de mix et le racleur. Trois AC drivers (Series 650 manufacturés par Parker®) ont été ainsi installés et connectés aux moteurs du racleur, du compresseur et de la pompe d'alimentation.

### 2.5 Instrumentation du "Freezer"

L'instrumentation du "Freezer" a été réalisée afin de caractériser le fonctionnement de la machine frigorifique. Nous pouvons donc suivre l'état du fluide frigorigène à l'entrée et à la sortie de chaque composant de la machine frigorifique, mais aussi les caractéristiques d'entrée-sortie du produit, avant et après cristallisation. Des capteurs « offline » ont également été implantés au sein de l'échangeur lui-même afin de suivre l'évolution du produit au cours du procédé. La figure 2.12 présente les différents capteurs mis en place sur l'installation frigorifique.

- T1= Température d'évaporation R22(°C)
- T2= Température sortie de l'évaporateur R22 (°C)
- T3= Température de vapeur R22 a la sortie de l'échangeur de chaleur (°C)
- T4= Température du liquide R22 a la sortie de l'échangeur de chaleur (°C)
- T5= Température de sortie de l'eau en el condenseur (°C)
- T6= Température de sortie R22 du compresseur (°C)
- T7= Température de entrée R22 du compresseur (°C)
- T8= Température de sortie de l'eau au condenseur (°C)
- PT= PT100 Température du produit (°C)
- T10=Température du vapeur R22 a la entrée à l'échangeur de chaleur (°C)
- T12= Température du liquide R22 a la entrée à l'échangeur de chaleur (°C)
- T14= Température du R22 a la sortie du condenseur (°C)
- T10= Température de l'environnement (°C)
- T20= Température de entrée al ICSR du mix (°C)
- DbR= Débitmètre massique du R22 (g/s)
- Dbe= Débitmètre massique de l'eau du condenseur (kg/h)
- HP= Pression sortie compresseur (bar)
- LP= Pression entrée compresseur (bar)
- CP= Consommation électrique du compresseur(KW)
- SP= Consommation totale de la machine (KW)

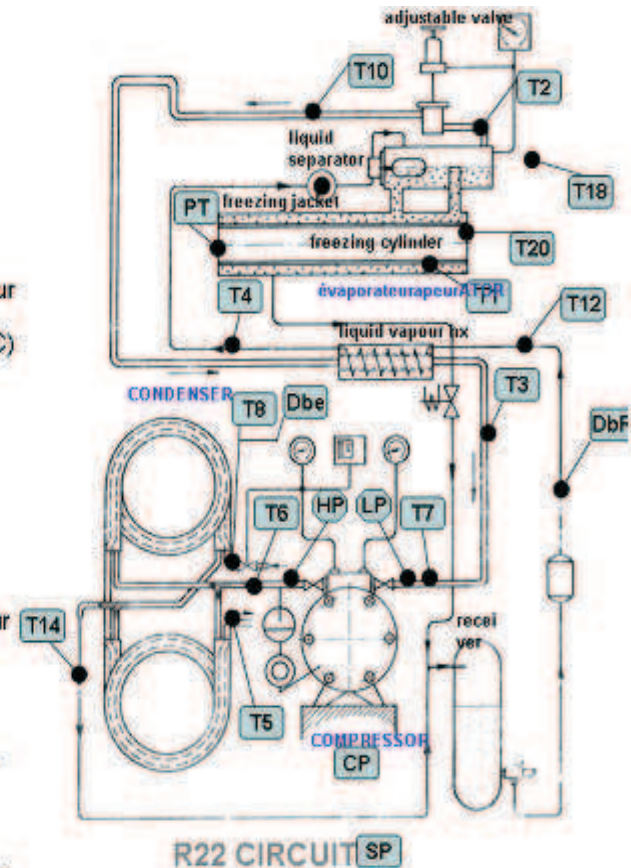


Figure 2. 12. Instrumentation du "freezer"

Cette instrumentation consiste en 14 capteurs de température, 2 capteurs de pression, 2 débitmètres massiques, 2 capteurs de puissance électrique, 1 capteur de vitesse de rotation. Concernant le produit, deux capteurs de température, un débitmètre et 1 capteur en ligne permettant la mesure de la taille des cristaux produits ont été mis en œuvre.

### 2.5.1 Capteurs

- *Capteurs de température*

Des thermocouples de type T avec une précision donnée pour le fournisseur de 0,5 K ont été utilisés. Tous ces capteurs ont été étalonnés dans notre laboratoire de calibration à l'aide d'une sonde d'étalonnage du type PT100 de précision (0,1 K). Après l'étalonnage on estime la précision des thermocouples de 0,25 K dans une gamme d'utilisation entre -250 et 300 °C et une sensibilité de 0,055 mV/°C.

La température de sortie du produit est une grandeur critique pour la caractérisation du procédé et nécessite une précision élevée. En effet la forme de la courbe de liquidus implique qu'une erreur faible sur la mesure de température entraîne une forte imprécision sur l'estimation de la teneur en glace.

## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES

Pour cette mesure, un capteur de température type PT100 de précision (0,03 K) de marque Baumer<sup>®</sup> a été utilisé. Il a été étalonné avec une sonde d'étalonnage dans notre laboratoire de calibration et positionné à l'intérieur de la canalisation de sortie du produit final, juste à 50 mm de la sonde de mesure de taille de cristaux. Avec un diamètre de 5,8 et une longueur de 50 mm, ce capteur est prévu pour fonctionner dans une plage de -50 à +205 °C (figure 2.13).



**Figure 2. 13.** Sonde Pt100 Baumer<sup>®</sup> 5.8x50 mm

- *Capteurs de pression*

Deux capteurs de pression connectés à l'aspiration et au refoulement du compresseur ont été installés. Ces capteurs fabriqués par Baumer Boudon-Haenni<sup>®</sup> (modèle E912) ont une gamme de mesure comprise entre 0 et 25 bars (figure 2.14). Ces capteurs ont été étalonnés dans notre laboratoire de calibration avec un kit d'étalonnage. Leur précision a été estimée à  $\pm 0,2\%$  de la valeur maximale. Ces capteurs sont alimentés par un courant continu entre 11 et 40 VDC, et ils sont équipés d'une sortie analogique de 0-10 V.



**Figure 2. 14.** Capteurs de pression E912

### ▪ *Capteurs de puissance électrique*

Les capteurs de puissance électrique utilisés sont deux wattmètres DIGIWATT qui mesurent simultanément le voltage, le courant, le  $\cos\phi$  et calculent la puissance consommée (figure 2.15). Le premier capteur est branché directement sur l'alimentation électrique du compresseur et le deuxième sur l'alimentation générale du système. L'étendue de mesure est de 0 à 20 kW avec une précision de  $\pm 0,5\%$  de la valeur mesurée. Ils sont également équipés d'une sortie analogique de 0-10 VDC.

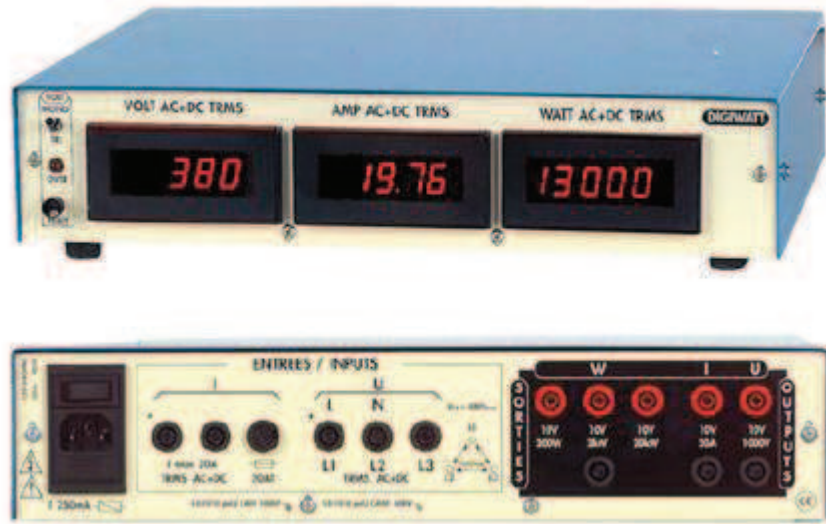


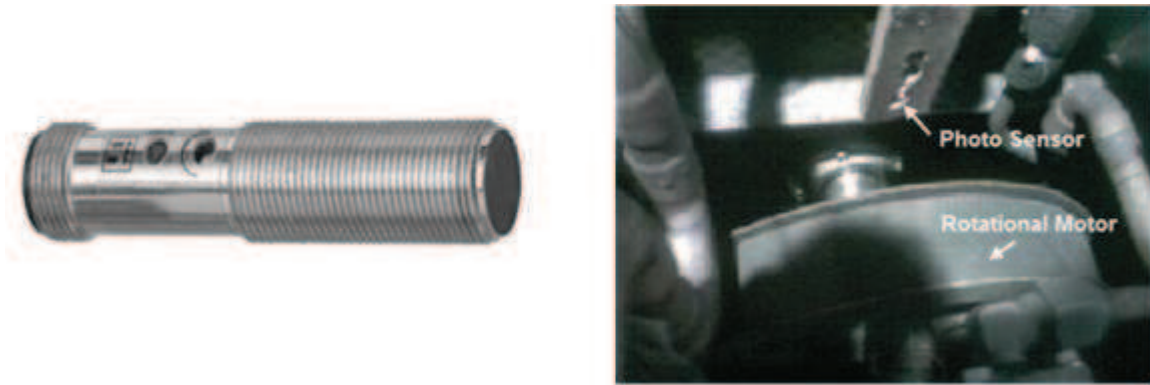
Figure 2. 15. Wattmètre DIGIWATT

### ▪ *Mesure de débit*

La mesure du débit frigorigène sur la machine frigorifique a été calculée à partir d'un bilan d'énergie en considérant un procédé adiabatique sur le condenseur du cycle frigorifique. Un capteur de débit à ultrasons type TransPort<sup>®</sup> (modèle PT878) a été connecté sur le conduit d'eau de refroidissement du condenseur. Ce capteur dispose d'une sortie analogique (0/4-20 mA) délivrant l'information de la vitesse du flux ou du débit volumétrique. L'étendue des vitesses mesurables est comprise entre  $\pm 0.03$  to  $\pm 12 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

### ▪ *Capteur de vitesse de rotation*

Pour la mesure de la vitesse de rotation du racleur, un tachymètre de type FUA9192 (figure 3.15) a été mis en place. Ce capteur est fabriqué par Ahlborn<sup>®</sup> et combine la fonction d'un photomètre et d'un photorécepteur. Il est localisé en face du moteur de rotation (figure 2.16 b), et permet donc la mesure du nombre de tours du moteur par unité de temps. Il a une étendue de mesure comprise entre 8 et  $15.000 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  avec une résolution de  $1 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  et une précision de  $\pm 0.02\%$  sur l'échelle.



**Figure 2. 16.** Tachymètre type FUA9192; gauche: forme du capteur; droite: photo-capteur en face du moteur

- Capteur de taille de particules "Focus Beam Resonance Measurements" (FBRM)

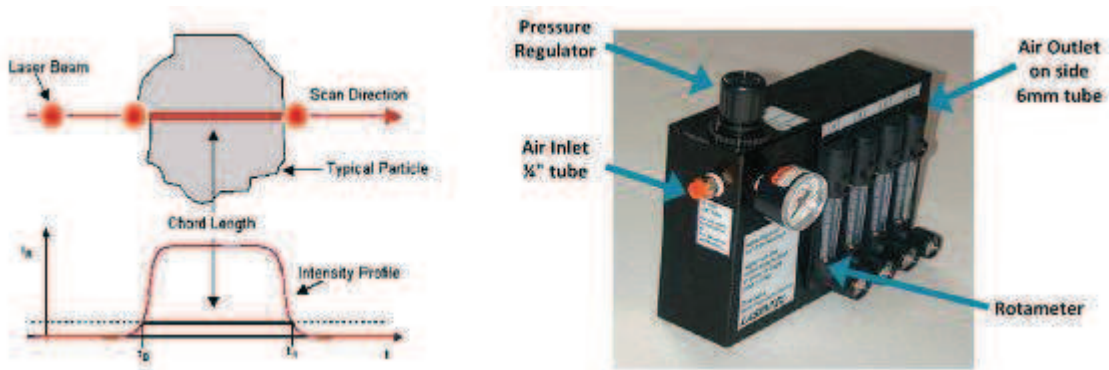
La distribution de taille de cristaux du sorbet est mesurée en ligne à l'aide d'un capteur de type "Focused Beam Reflectance Method" (FBRM). Cette sonde FBRM (modèle S400A-8) est fabriquée par Lasentec®, Mettler Toledo, USA (figure 2.17 gauche). Cet instrument est constitué d'un corps en acier INOX de 8 mm de diamètre et génère un rayon laser d'une longueur d'onde de 780 nm dirigé vers une fenêtre de saphir. Ce rayon tourne à une vitesse tangentielle de  $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  correspondant à 9000 RPM . Le point de mesure est situé sur la fenêtre de saphir (figure 2.17 droite). L'étendue de mesure est de 1 à 1000  $\mu\text{m}$  avec une erreur estimée à  $\pm 3 \%$  sur la mesure.



**Figure 2. 17.** A gauche Capteur FBRM Modèle S400A-8; à droite vue transversal de la sonde FBRM

Cette sonde donne une information sur une distribution de taille de cordes, déterminée à partir de la distribution du temps de rétrodiffusion du faisceau. Ce temps dépend de la taille du cristal, de la position de passage du laser sur le cristal et de la vitesse de rotation du laser. Le temps de rétrodiffusion de la lumière produit par le cristal est multiplié par la vitesse tangentielle du laser, ce qui donne une distance appelée « taille de corde » (figure 2.18 gauche).

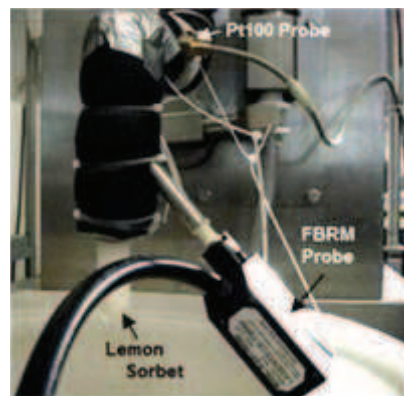
## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES



**Figure 2. 18.** A gauche: le calcul de la taille de corde; à droite: système de purge pour éviter la condensation

Le capteur a été inséré dans la canalisation de sortie du sorbet avec un angle de  $45^\circ$  par rapport au sens de l'écoulement. La figure 3.18 présente la position relative du capteur de température et de la sonde FBRM. Pour éviter la condensation sur la fenêtre de saphir en dessous de  $5^\circ\text{C}$ , la sonde FBRM est connectée à un système de purge (figure 2.18 droite) qui fait circuler de l'azote gazeux à l'intérieur de la sonde. Ce système est régulé à 1 bar de pression et un débit de  $5\text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ .

Ce capteur a précédemment été utilisé dans d'autres applications de cristallisation. Haddad et al., (2010) ont rapporté l'utilisation de la méthode FBRM pour la mesure de la distribution de tailles de cordes dans le procédé de production de crème glacée et sorbet modèle. Une autre application est étudié par O'sullivan B. & Glennon B. (2005). Ils ont suivi de manière satisfaisante la transformation de D-Mannitol à l'aide du capteur en ligne FBRM combiné avec l'ATR-FTIR en ligne. Ils ont démontré la fiabilité du capteur pour son utilisation pour la mesure en ligne d'un procédé de cristallisation.



**Figure 2. 19.** Positionnement des sondes PT100 et FBRM

### 2.6 Centrale de mesures et d'acquisition de données

#### 2.6.1 Convertisseurs analogiques-numériques

Tous les capteurs de mesure ont été connectés à deux centrales de mesures Agilent HP (modèle 34970 A). Deux unités multifonction Agilent HP (modèle 34901 A) ont été utilisées dans ces centrales. Les variateurs de fréquence, peuvent être actionnés à partir d'une entrée analogique 0-10 VDC, ont été connectés également sur ces centrales à l'aide de deux unités de contrôle Agilent HP (modèle 34907 A) équipées de sorties analogiques 0-10 VDC.

Cet appareillage permet d'obtenir une mesure en ligne des conditions opératoires de la machine et donne la possibilité de commander à distance les différents moteurs utilisés dans l'installation.

#### 2.6.2 Acquisition et traitements des données en ligne

Une interface logiciel a été programmée à l'aide du logiciel LabView<sup>®</sup>. Cette interface utilise des protocoles de communication avec les centrales d'acquisition, les appareils de mesures et les cartes de contrôle décrits ultérieurement. Ainsi, nous avons créé une programmation multifenêtre qui permet le démarrage et la visualisation de l'ensemble de la machine (figure 2.20).



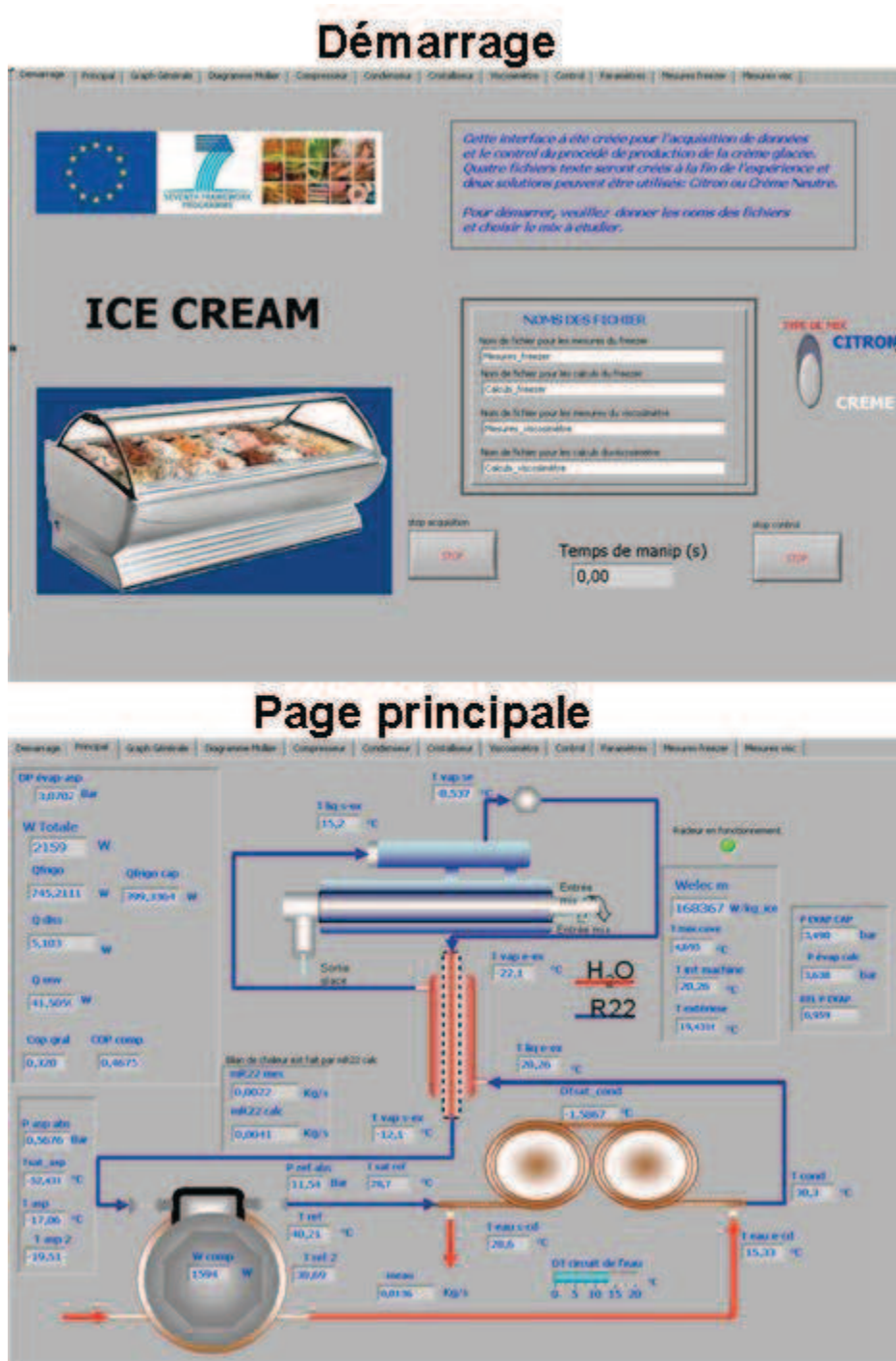


Figure 2. 20. Page de démarrage et visualisation générale de la machine à crème glacée.

Ce logiciel met en œuvre des outils mathématiques permettant une analyse en ligne des données de mesure et le pilotage à distance de la vitesse de chaque moteur de la machine (figure 2.21).

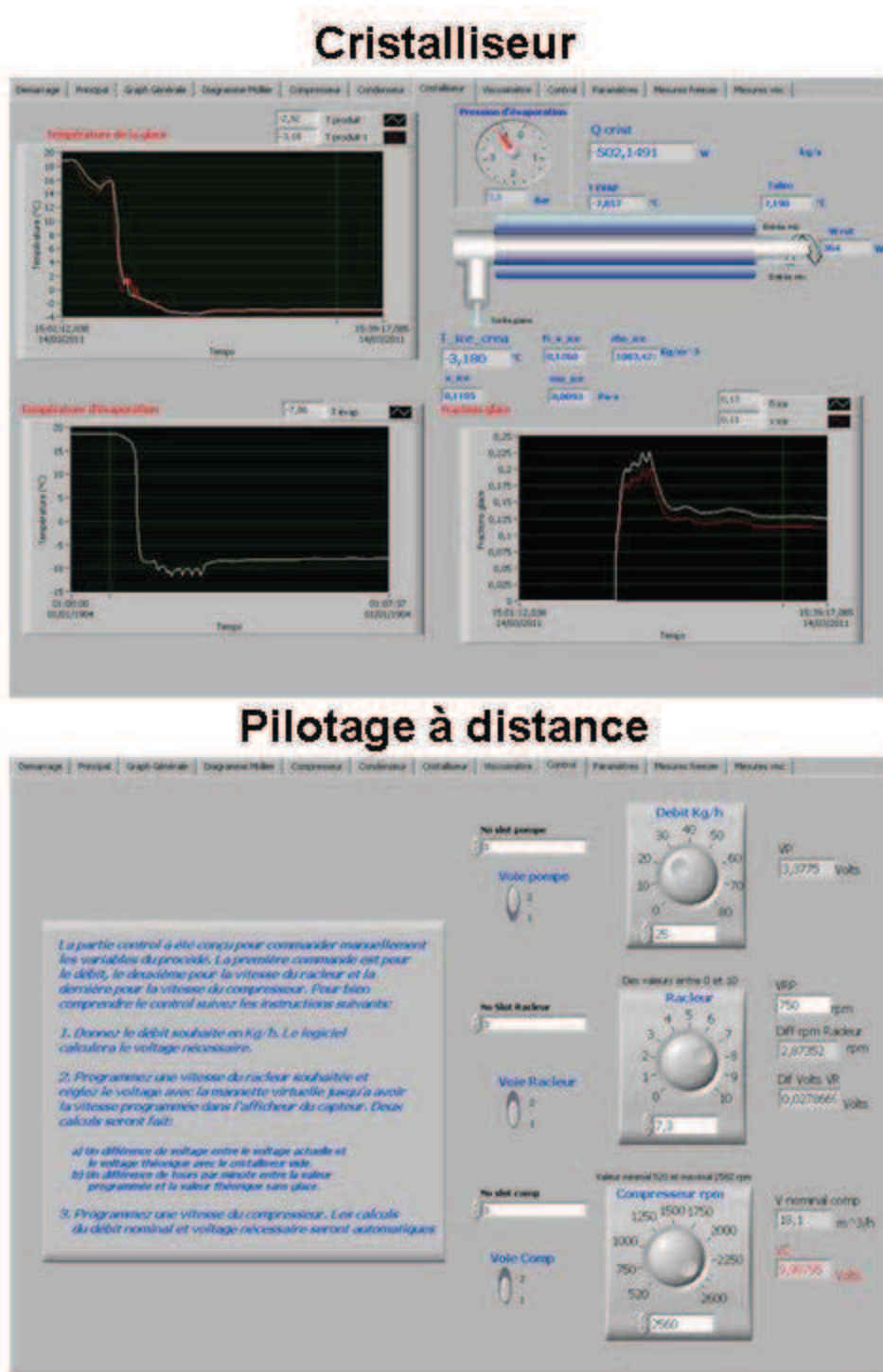


Figure 2. 21. Pages dédiés au cristalliseur et au pilotage à distance

Une page est dédiée à la visualisation en temps réel du cycle de réfrigération sur un diagramme de Mollier (figure 2.22).

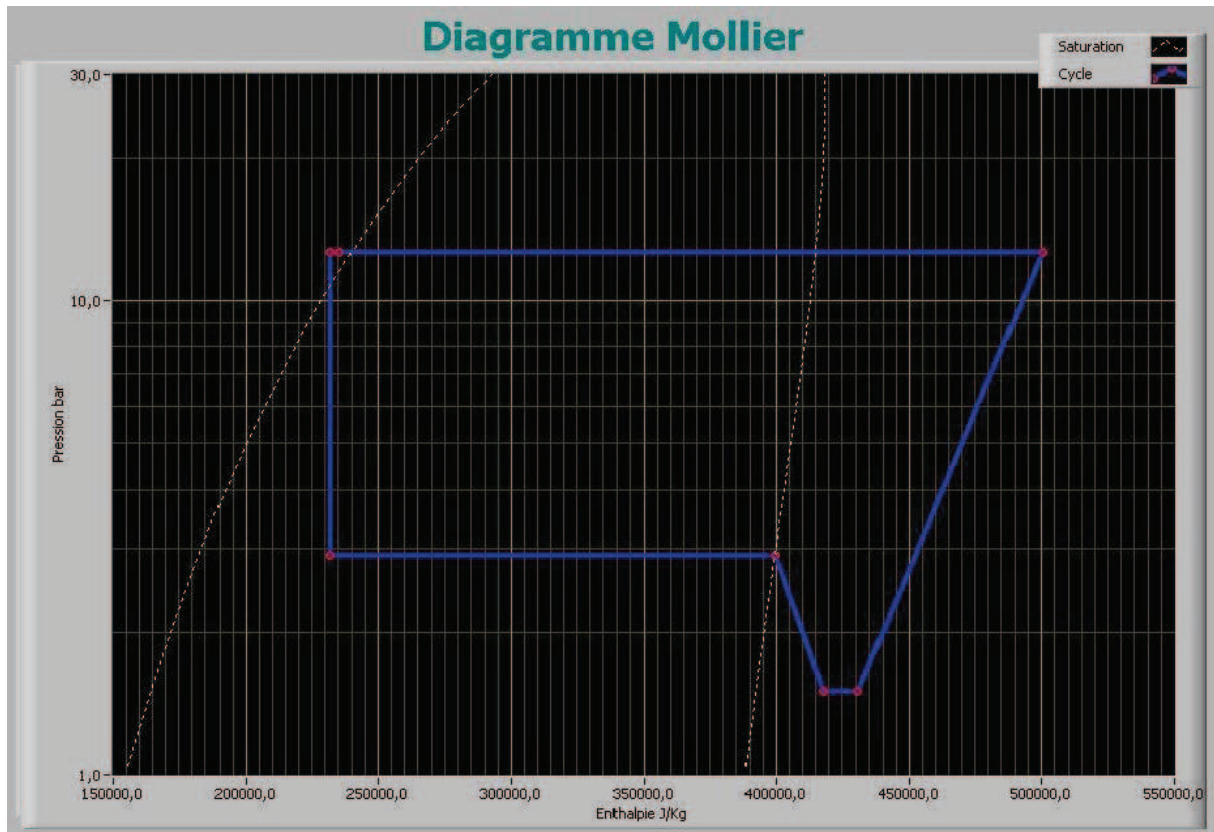


Figure 2. 22. Visualisation en ligne du diagramme de Mollier pour le réfrigérant R22.

Les mesures sont stockées sous forme de deux fichiers. Le premier correspondant aux mesures brutes et le deuxième aux résultats des calculs effectués en ligne. L'acquisition des données de distribution de tailles de cordes par la FBRM n'est pas encore disponible sur l'interface, mais devrait l'être dès que le protocole de communication sera diffusé par le constructeur. La visualisation de ces données pendant l'opération de mesure est actuellement effectuée par un logiciel fourni par le fournisseur du capteur.

## 2.7 Plan d'expériences: approche par surface de réponse

Les plans pour surfaces de réponse permettent d'obtenir une première représentation d'un phénomène sous forme d'un modèle mathématique, de type polynôme généralement du second degré. L'objectif est donc de déterminer les paramètres d'un modèle quadratique du type (pour un exemple à 2 facteurs) :

$$y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_{12}x_1x_2 + a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2 + \varepsilon_{\text{exp}} \quad (2.1)$$

où  $\varepsilon$  est l'erreur expérimentale.

Un plan composite est un type de plan pour surface de réponse constitué d'un plan factoriel (Sablani et al. 2007) à plusieurs facteurs, d'un point central et de plusieurs points axiaux (points expérimentaux sur l'axe des facteurs).

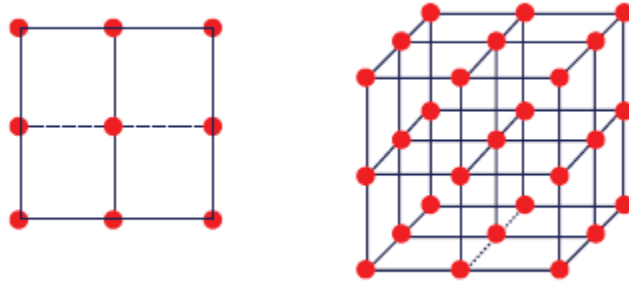


Figure 2. 23. Plan factoriel complet

Un plan composite centré permet de limiter le plan factoriel à un nombre restreint de points de mesure. Le plan factoriel complet (figure 2.23), composé de toutes les combinaisons du minimum, centre et maximum de chaque facteur mène à un nombre d’essais égal à  $3^k$ , où  $k$  est le nombre de facteurs, ce qui peut vite devenir prohibitif si le coût ou le temps nécessaire pour réaliser une expérience est important. Le plan centré composite permet de limiter le nombre d’essais à  $2^k+2k+N_0$  où  $N_0$  est le nombre de répétitions au centre du domaine pour une bonne estimation de la variance de répétabilité. Le modèle associé à ce plan est un modèle quadratique.

Afin d’éliminer des effets liés aux dimensions de chaque facteur, chaque facteur  $x_k$  est recodé de telle manière que  $x_k$  varie entre -1 et 1, tel que présenté dans le tableau ci-dessous :

Tableau 2. 2. Relations entre valeurs codées et valeurs réelles pour un plan d’expériences factoriel

Niveau	Valeur réelle
$-\alpha$	$-x_k^{\min}$
-1	$\frac{x_k^{\min} + x_k^{\max}}{2} - \frac{1}{\alpha} \left( x_k^{\max} - \frac{x_k^{\min} + x_k^{\max}}{2} \right)$
0	$\frac{x_k^{\min} + x_k^{\max}}{2}$
+1	$\frac{x_k^{\min} + x_k^{\max}}{2} + \frac{1}{\alpha} \left( x_k^{\max} - \frac{x_k^{\min} + x_k^{\max}}{2} \right)$
$+\alpha$	$x_k^{\max}$

La valeur du paramètre  $\alpha$  est égale à  $2^{k/4}$  (valeur correspondant à la propriété d’isovariance par rotation). Le plan (figure 2.24) est alors composé du point au centre répété  $N_0$  fois, d’un plan orthogonal correspondant aux facteurs -1 et +1 ( $2^k$  points), et de 2 points additionnels par facteur correspondant aux valeurs  $-\alpha$  et  $+\alpha$  ( $2k$  points).

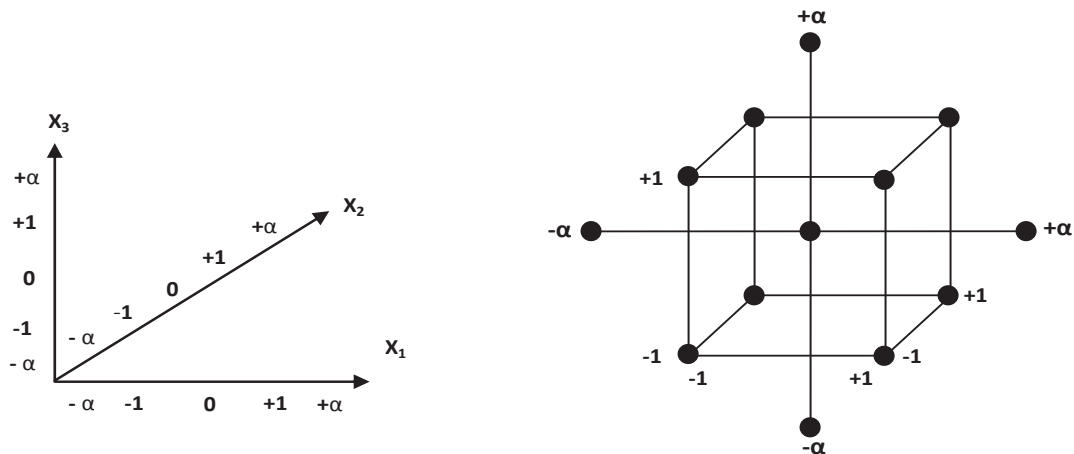


Figure 2. 24. Plan d'expérience de la composite centrale avec 3 variables de procédé.

Ainsi, le nombre d'essais à réaliser est  $2^k+2k+N0$ . Dans notre cas, l'étude est basée sur 3 variables de contrôle (le débit du mix, la vitesse du racleur et la température d'évaporation ou vitesse compresseur). Le nombre d'essais minimum est donc égal à 18, si l'on se fixe 4 répétitions du point central et la valeur codée du composite, définie par  $2^{k/4}$ , est égale à  $\pm 1,682$ .

L'application de cette méthodologie dans notre cas débute par la définition des valeurs minimales et maximales de chaque facteur. Des essais préliminaires ont été effectués afin d'identifier les limites admissibles d'utilisation du pilote "Freezer" de manière à construire les plans d'expérience. Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau 2.3:

Tableau 2. 3. Valeurs minimales et maximales des variables de contrôle de la machine à crème glacée

	Débit Pompe [Kg-h <sup>-1</sup> ]	Vitesse Racleur [Tr-min <sup>-1</sup> ]	Température d'évaporation (vanne pilote) [°C]	Vitesse variable du compresseur [Tr-min <sup>-1</sup> ]
<b>Maximum</b>	75	1000	-10	1500
<b>Minimum</b>	25	250	-20	560

### 2.7.1 Plan d'expériences mis en œuvre

L'objectif de ce plan d'expérience est de connaître l'impact des variables de contrôle sur les principales caractéristiques physiques du produit en sortie d'échangeur : la température de sortie (liée directement à la quantité de glace formée) et la taille moyenne des cristaux (figure 2.25).

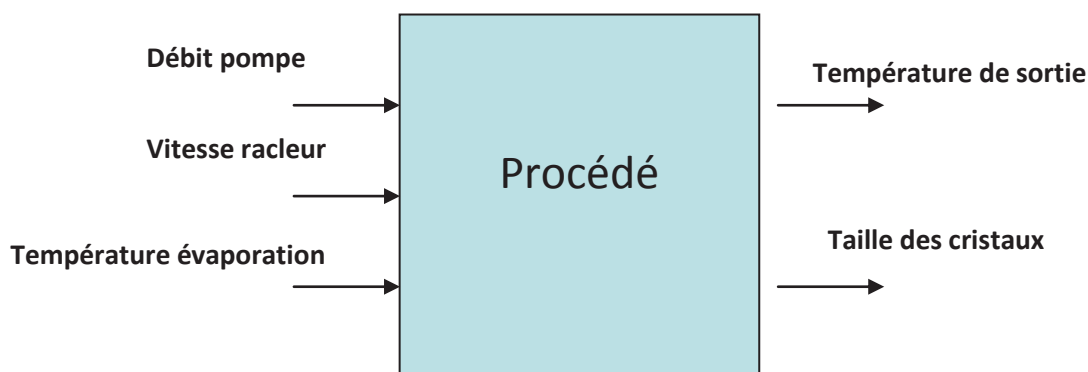


Figure 2. 25. Entrées-sorties du système étudié

Le plan d'expériences est présenté dans le tableau 2.4:

Tableau 2. 4. Plan d'expérience pour l'identification des paramètres

Paramètres du procédé	Valeurs codées				
	$-\alpha$	-1	0	+1	$+\alpha$
Débit [kg/h]	25	35	50	65	75
$T_{\text{Evaporation}}$ [°C]	-10,60	-12,50	-15,25	-18	-19,90
Vitesse du racleur [rpm]	545	600	750	900	1000

Expérience	Débit	T. évap	Vit. racleur
1	-1	-1	-1
2	-1	-1	1
3	-1	1	-1
4	-1	1	1
5	1	-1	-1
6	1	-1	1
7	1	1	-1
8	1	1	1
9	$-\alpha$	0	0
10	$\alpha$	0	0
11	0	$-\alpha$	0
12	0	$\alpha$	0
13	0	0	$-\alpha$
14	0	0	$\alpha$
15	0	0	0
16	0	0	0
17	0	0	0
18	0	0	0

Le nombre d'expériences à réaliser est donc constitué par toutes les combinaisons possibles des valeurs codées  $\pm 1$  ( $2^k=8$  au total) plus les combinaisons des composites  $\pm\alpha$  avec le point

## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES

central 0 ( $2k=6$  au total) et 4 répétitions du point central pour la variance de répétabilité, soit un minimum de 18 expériences.

### 2.7.2 Plan d'expériences pour la caractérisation de la machine frigorifique

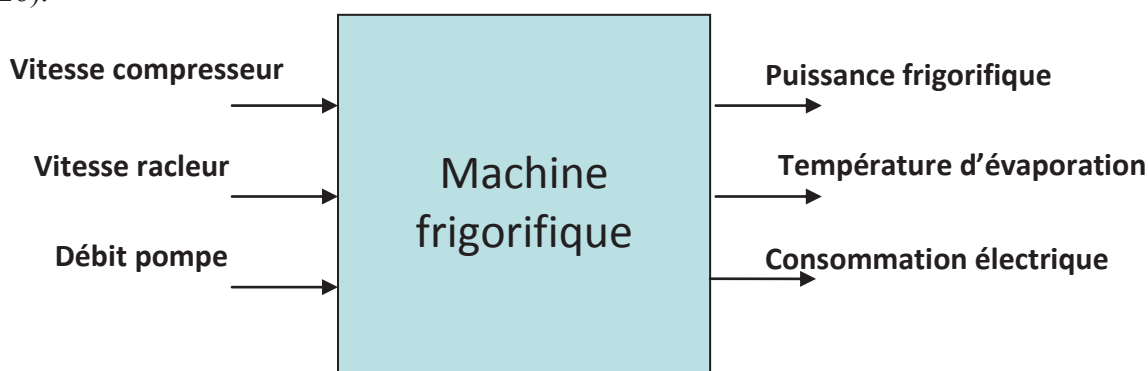
Le deuxième plan d'expérience proposé a pour objectif la caractérisation de la machine frigorifique avec un compresseur à vitesse variable. En se basant sur la même méthode que précédemment, on propose le plan d'expérience suivant:

**Tableau 2. 5.** Plan d'expérience pour la caractérisation de la machine frigorifique

Paramètres du procédé	Valeurs codées				
	- $\alpha$	-1	0	+1	+ $\alpha$
Débit [kg/h]	25	35	50	65	75
Vitesse du racleur [rpm]	303.5	445	652	860	1000
Vitesse du compresseur [rpm]	562	750	1025	1300	1487

La deuxième partie du tableau est identique au tableau 2.4

Dans ce plan, on utilise également trois variables d'entrées (ou facteurs). On mesure en sortie la température d'évaporation, la puissance frigorifique et la consommation électrique (figure 2.26).



**Figure 2. 26.** Entrées-sorties de la machine frigorifique étudiée

Ce plan d'expériences permet de caractériser le fonctionnement de la machine frigorifique. La température d'évaporation est la variable de couplage entre la machine frigorifique et le procédé de cristallisation.

## 2.8 Conclusion

Ce chapitre décrit les différentes étapes pour la réalisation du travail de cette thèse. Ces étapes sont divisées en trois niveaux : Caractérisation des mix, présentation du prototype expérimental (avec l'instrumentation et l'acquisition de données en ligne) et la description des plans d'expériences appliqués.

## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES

Ainsi, dans un premier temps, deux caractérisations des mix seront réalisés : une caractérisation thermique par la méthode DSC et une deuxième pour la partie rhéologique. Toutes les méthodes ont été décrites de manière méthodologie et d'appareil de mesure. Pour la partie méthodologie nous avons créé un protocole pour chacun des tests et pour la partie de l'appareil de mesure nous avons décrit tous les caractéristiques des mêmes.

Dans un deuxième temps, nous avons présenté l'instrumentation du pilote. Cette instrumentation consiste dans l'installation des capteurs de température, pression, puissance électrique, vitesse, débit et distribution de taille des cristaux. Le tableau 2.6 résume cette instrumentation :

**Tableau 2. 6.** Récapitulatif des capteurs en ligne

Type de capteur	Description	Utilisation	Incertitude de mesure (fabricant)
Température	Thermocouple type T	Mesure des températures du cycle frigorifique	$\pm 0,5$ K
	Sonde type PT 00	Mesure de la température du sorbet	$\pm 0,1$ K
Pression	Capteur de pression E912	Mesure des pressions d'aspiration et de refoulement du compresseur	$\pm 0,2$ % sur la mesure
Puissance	Wattmètre DIGIWATT	Mesure des puissances électriques du compresseur et du système complet	$\pm 0,5$ % sur la mesure
Vitesse	Tachymètre de type FUA9192	Mesure de la vitesse de rotation du racleur	$\pm 0,02$ % sur l'échelle
Débit massique	Débitmètre ultrasons type TransPort® (modèle PT878)	Mesure du débit d'eau du système de condensation dans le cycle frigorifique	Échelle de mesure : $\pm 0,03 - \pm 12$ m.s <sup>-1</sup>
DTC	Capteur type FBRM	Mesure de la distribution de taille de cristaux pour le sorbet à la sortie du pilot.	$\pm 3$ % sur la mesure

Tous ces capteurs ont été connectés sur deux centrales d'acquisition HP Agilent. L'acquisition des données a été effectuée à l'aide des cartes multifonction HP Agilent et l'interface développée en langage LabView. Cette interface permet une commande à distance en utilisant des variateurs de fréquence et des cartes de contrôle HP Agilent.

Enfin, deux plans d'expériences basés dans la méthodologie du composé central ont été présentés. Le premier consiste dans la caractérisation du procédé en termes de qualité du sorbet (distribution de taille des cristaux et température du sorbet). Le deuxième consiste à



## CHAPITRE 2. MATERIELS ET METHODES

caractériser la machine frigorifique et sera utilisé pour réaliser une optimisation énergétique en fonction des paramètres de qualité du produit (taille moyenne des cristaux et température) et la qualité du procédé (consommation énergétique). Les données obtenues lors de ces caractérisations seront également utilisées pour la validation des modèles de cristallisation.

## Chapitre 3 RESULTATS

Ce chapitre est divisé en trois parties principales: la première est dédiée aux résultats de caractérisation du sorbet (produit modèle utilisé), la deuxième partie à la caractérisation du procédé de cristallisation dans l'ECSR et la troisième partie est dédiée à la validation du modèle proposé.

La caractérisation du sorbet a principalement consisté à étudier le comportement rhéologique du mix à l'état liquide pour différentes concentrations de solides et plusieurs températures. Les résultats ont permis d'établir une corrélation permettant de prédire la viscosité apparente de la phase non congelée lors de la transformation. La courbe de saturation (« liquidus ») a par la suite été établie à l'aide de mesures DSC.

La caractérisation du procédé de cristallisation a été effectuée à partir d'un plan d'expérience basé sur la méthode « composite centrée » afin de définir l'influence des principales variables de commande du procédé. Les mesures effectuées ont permis de caractériser :

- La distribution de taille des cristaux en sortie du procédé et la température de sortie du produit. Une métrologie spécifique utilisant une sonde FBRM (Focus Beam Reflectance Measurements) a été mise en œuvre pour la mesure de la taille des cristaux, et un capteur PT100 pour la mesure de la température.
- Le fonctionnement de la machine frigorifique. Ces mesures nous ont permis d'évaluer la performance du système et de proposer une modification de l'architecture de la machine. L'impact de cette modification a été caractérisé
- La consommation énergétique du procédé et l'analyse des différentes sources de dissipation
- Le comportement dynamique du système par une mesure de distribution du temps de séjour dans l'échangeur (DTS). Cette étude a été réalisée en collaboration avec le travail présenté par Arellano M. et Gonzalez E. (2011). Il a consisté à caractériser l'écoulement du dispositif expérimental à partir de l'injection d'un colorant à l'entrée de l'échangeur. La concentration en colorant à la sortie est alors analysée par colorimétrie. L'idée ici est d'obtenir des informations globales sur l'écoulement du mix lors de son parcours dans l'échangeur.

Enfin une validation des modèles statiques et dynamiques est présentée.

### 3.1 Caractérisation du sorbet

#### 3.1.1 Caractérisation rhéologique

Le rhéomètre (UDS 200<sup>®</sup> Physica décrit dans le chapitre 3) est équipé d'un mobil muni d'un entrainement magnétique. De ce fait un étalonnage doit être effectué afin d'éliminer l'influence du couple de friction généré par l'accouplement magnétique.

Pour effectuer cet étalonnage, nous avons réalisé des balayages en vitesse de cisaillement sans échantillon (à vide) pour obtenir le couple résiduel dû à cet entrainement magnétique.

Cet étalonnage a été réalisé à température ambiante et l'étendue des vitesses de cisaillements utilisée est de 50 à 1200 s<sup>-1</sup>. La figure 3.1 présente le résultat de cette calibration.

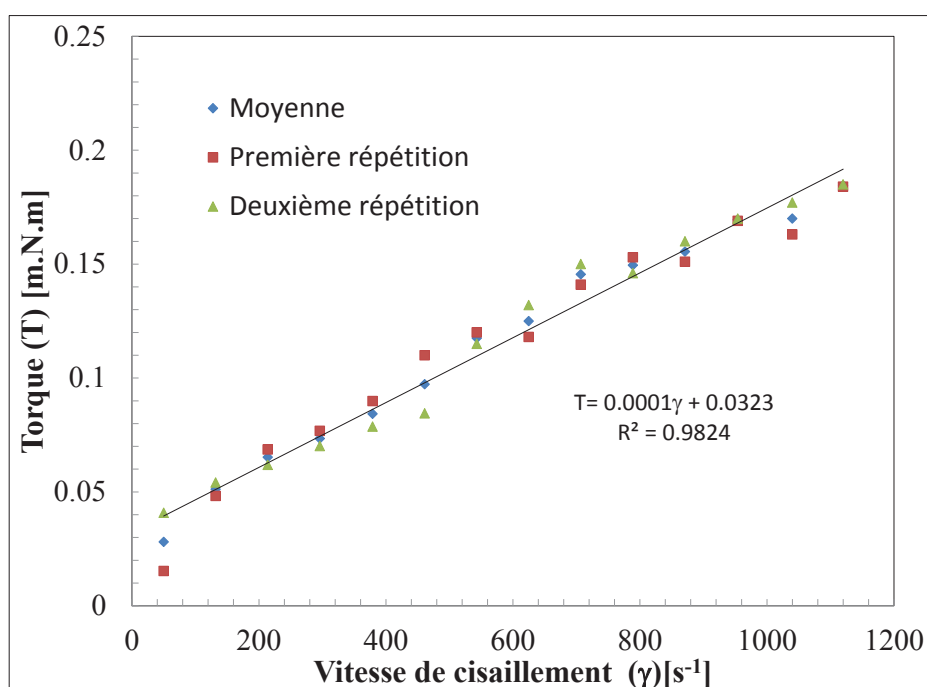


Figure 3. 1. Courbe d'étalonnage du rhéomètre afin d'éliminer l'effet du couplage magnétique

Cet étalonnage nous a permis d'obtenir l'équation présentée dans la figure 4.1 exprimant l'erreur de mesure liée au couplage magnétique. Cette erreur sera systématiquement soustraite lors des mesures.

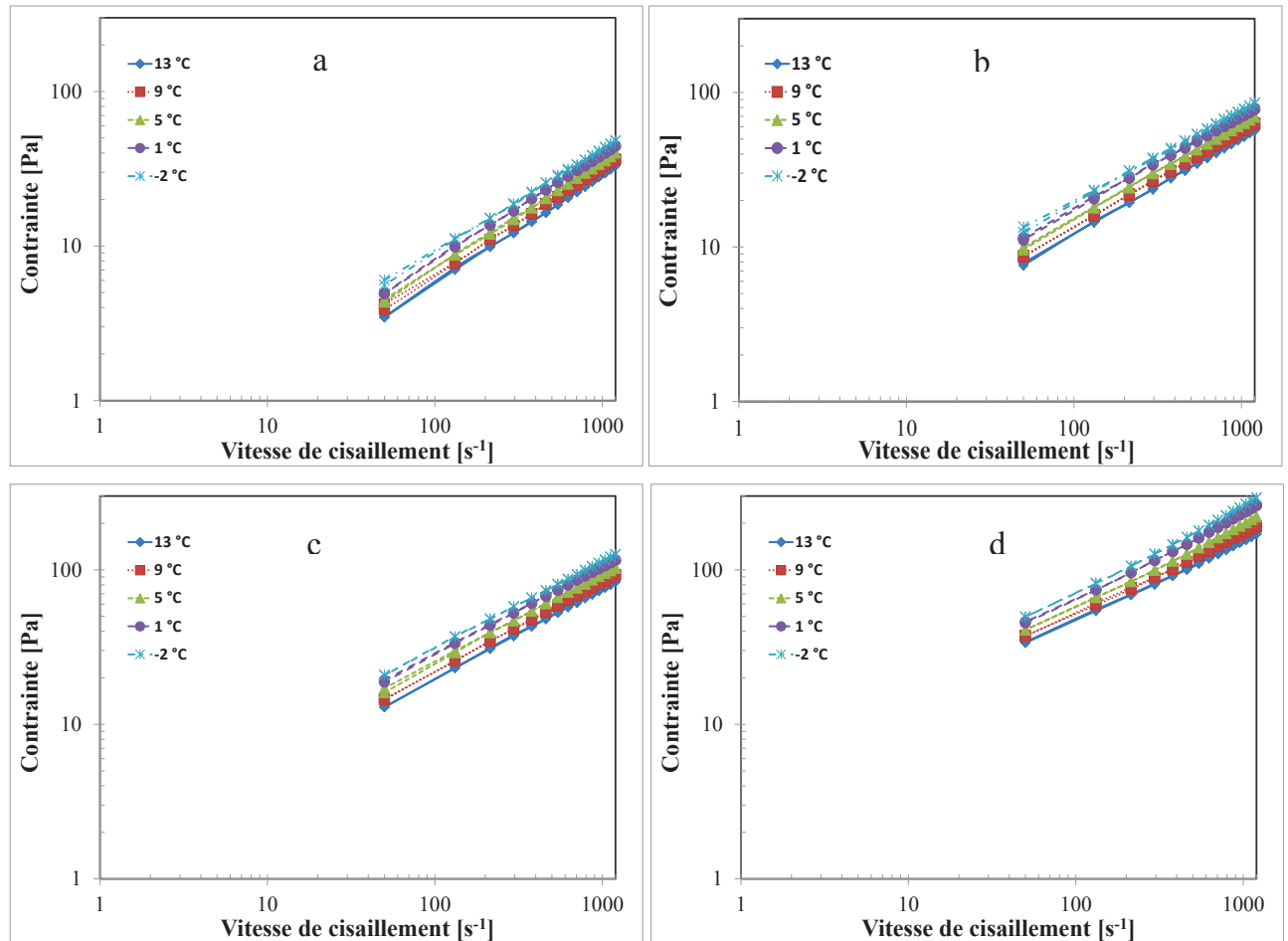
- *Courbe de l'écoulement*

La caractérisation rhéologique, donc, se décompose en trois étapes: une première étape où l'on applique un taux de pré-cisaillement de 200 s<sup>-1</sup> pendant 1500 secondes jusqu'à l'égalisation de la température du produit avec celle de la paroi, une deuxième étape à 1000 s<sup>-1</sup> pour casser la structure en provoquant le phénomène de thixotropie et une troisième pour la construction de la courbe de l'écoulement (50-1200 s<sup>-1</sup>).

### CHAPITRE 3. RESULTATS

La Figure 4.2 présente les résultats "brut" des courbes d'écoulement "aller-retour" pour les différentes températures et concentrations. Une première analyse des courbes montre qu'aucune courbe d'écoulement n'a présenté un niveau d'hystérésis (figure 3.2). Il semble donc que le pré-cisaillement appliqué a permis d'éviter la thixotropie éventuelle dans l'échantillon;

L'ensemble des résultats présentés sur la figure 3.2 montre que le mix utilisé a les caractéristiques d'un comportement de fluide non-newtonien rheofluidifiant. Ce comportement a déjà été identifié dans la littérature pour les mixes utilisés pour la production de la crème glacée (S. Kus et al 2005, C. Clarke 2004, Cerecero 2004). Royon, L. 1998 a caractérisé un coulis de glace stabilisé dont la concentration de particules était inférieure à 45% le diamètre de particules était inférieur à 300 $\mu\text{m}$ . Selon les mesures effectuées dans une géométrie cylindres coaxiaux, il a trouvé que ce coulis stabilisé avait un comportement newtonien avec une dépendance de la température.



**Figure 3. 2.** Courbes de l'écoulement « aller-retour » de 50-1200  $\text{s}^{-1}$  à différentes températures; a) 25,2 % solides b) 32 % solides, c) 37 % solides, d) 52,5 % solides. 200  $\text{s}^{-1}$  pendant 25 mn.

## CHAPITRE 3. RESULTATS

### *Effet de la température et de la concentration en solides*

La Figure 3.2 compare l'effet combiné de la température, pour différentes concentration en solides dans le mix. Nous pouvons constater que l'effet de la température est très important, comme on s'attendait il s'agit d'une thermo-dépendance classique. L'effet de la concentration semble être plus important comme on l'attendait, une augmentation en solides (sucres et gommés) a un impact important dans la courbe d'écoulement.

La viscosité apparente du mix est la relation entre la contrainte ( $\tau$ ) de cisaillement et la vitesse de cisaillement. La viscosité apparente augmente avec la concentration totale des solides et la diminution de la température. La viscosité apparente peut être calculée à partir de la relation suivante :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (3.1)$$

- *Correction des données*

La correction des courbes de l'écoulement a été réalisée selon la procédure proposée par Steffe (2004). La méthode est basée sur les hypothèses suivantes :

- a) Le procédé est en régime laminaire
- b) le fluide est incompressible
- c) La température est toujours élevée
- d) Il n'existe pas de glissement au niveau de la paroi
- e) Les vitesses radiales et axiales sont nulles.

Si on considère que les mix ont un comportement non-Newtonien, la correction se fera en trois étapes:

Dans un premier temps, on considère que le fluide suit le comportement rhéologique qui peut être représenté par la loi de la puissance d'Ostwald caractéristique de nombreux fluides non-Newtoniens (équation 3.2). Nous pouvons identifier les deux paramètres de cette loi de comportement rhéologique l'index de comportement à l'écoulement  $n$  et l'indice de consistance  $K$  [Pas<sup>n</sup>].

$$\tau = K\dot{\gamma}^n \quad (3.2)$$

$$\log(\tau) = \log(K) + n \log(\dot{\gamma}) \quad (3.3)$$

L'ensemble des résultats sont présentés dans le tableau 3.1. L'analyse des résultats montre, comme on l'attendait, que le coefficient de consistance ( $K$ ) augmente lorsque l'on abaisse la température, (dû à la thermo-dépendance) et lorsque l'on augmente la concentration de solides, ce qui est en accord avec S. KUS et al. (2005) et Sevin Kaya et Ali R. Tekin

## CHAPITRE 3. RESULTATS

(2000). En ce qui concerne l'index du comportement à l'écoulement diminue, comme on l'attendait également, montrant une augmentation du caractère rhéofluidifiant avec une augmentation de solides. Plus la concentration de solides s'accroît et plus on s'éloigne du comportement newtonien.

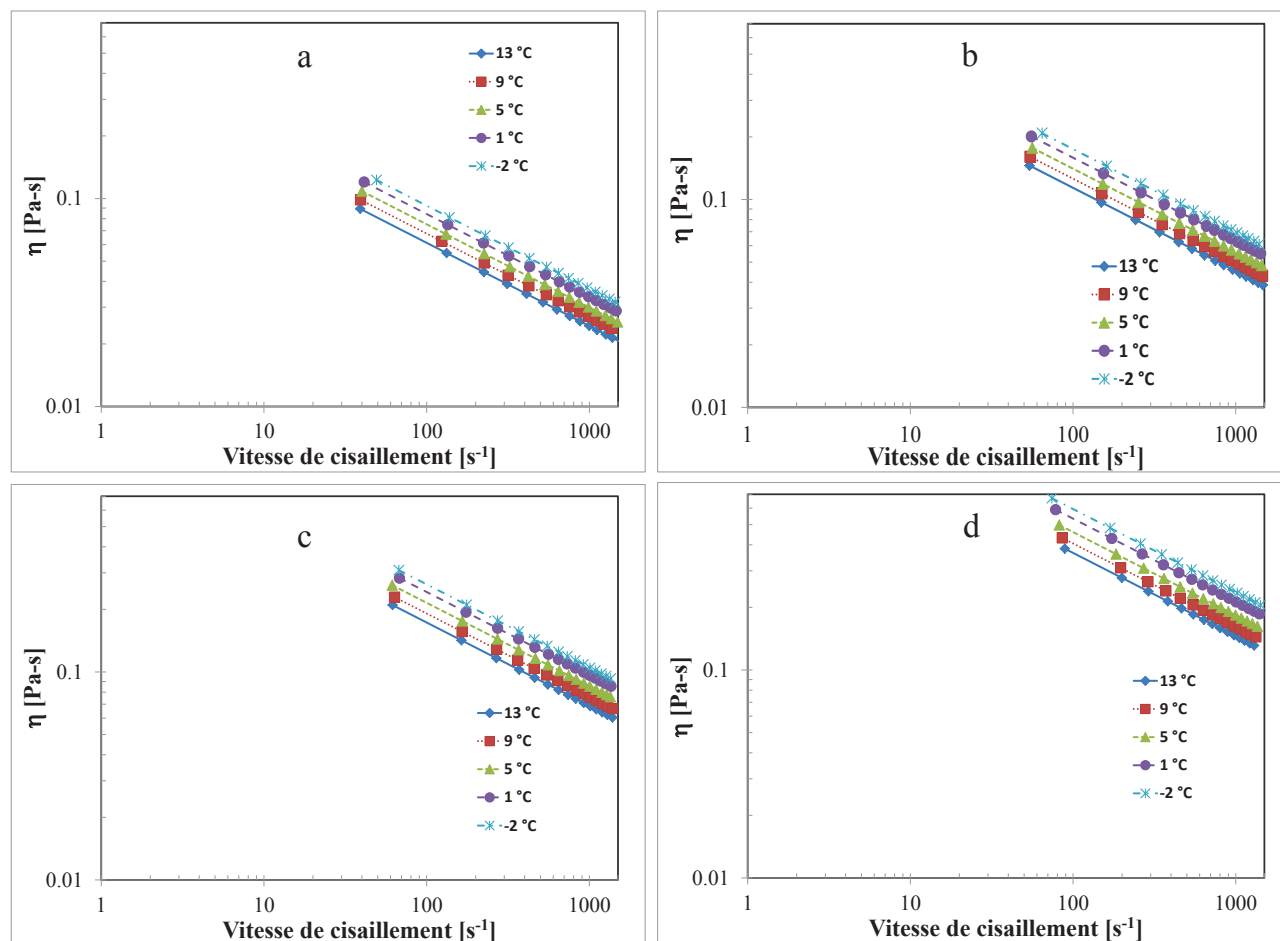
Une explication de ce comportement réside dans le fait que la concentration du mix est une concentration non seulement de sucre dans la dispersion, mais aussi de tous les autres ingrédients et notamment les gommés et stabilisants telles que le xanthane et la gomme guar qui augmentent en concentration. On a donc pour chaque échantillon une composition différente non seulement en sucre, mais également en stabilisants, émulsifiants et sels. Or les propriétés rhéologiques dépendent fortement de la composition (Vesna Hegedušić et al., (1994) Christos Soukoulis et al., (2009), (2010)).

**Tableau 3. 1.** Récapitulation des résultats rhéologiques après correction de la vitesse de cisaillement

C [%]	T [°C]	n	K [Pas <sup>n</sup> ]	R <sup>2</sup>
25,2	13,0	0,699	0,386	0,999
	9,0	0,700	0,428	0,999
	5,0	0,692	0,474	0,999
	1,0	0,684	0,532	0,999
	-2,0	0,655	0,583	0,999
32	13,0	0,624	0,718	1,00
	9,0	0,616	0,794	0,999
	5,0	0,610	0,887	0,999
	1,0	0,605	1,002	0,999
	-2,0	0,581	1,103	0,999
37	13,0	0,582	1,091	0,999
	9,0	0,579	1,206	0,999
	5,0	0,579	1,357	0,999
	1,0	0,560	1,530	0,999
	-2,0	0,561	1,665	0,999
52,5	13,0	0,506	2,308	0,999
	9,0	0,516	2,562	0,999
	5,0	0,533	2,905	0,998
	1,0	0,550	3,373	0,998
	-2,0	0,563	3,750	0,998
<i>Moyenne</i>	---	<i>0,600</i>	---	<i>0,999</i>

- *Influence de la température et de la concentration de solides*

La thermo-dépendance des dispersions du mix sorbet peut être identifiée dans la figure 3.3. On peut remarquer que la viscosité apparente diminue lorsque la température augmente, conformément aux résultats présentés par S. Kus (2005), Sevim Kaya & Ali R. Tekin (2000) ou Soraya Ketjarut et al., (2000) and Vesna Hegedušić et al. (1994).



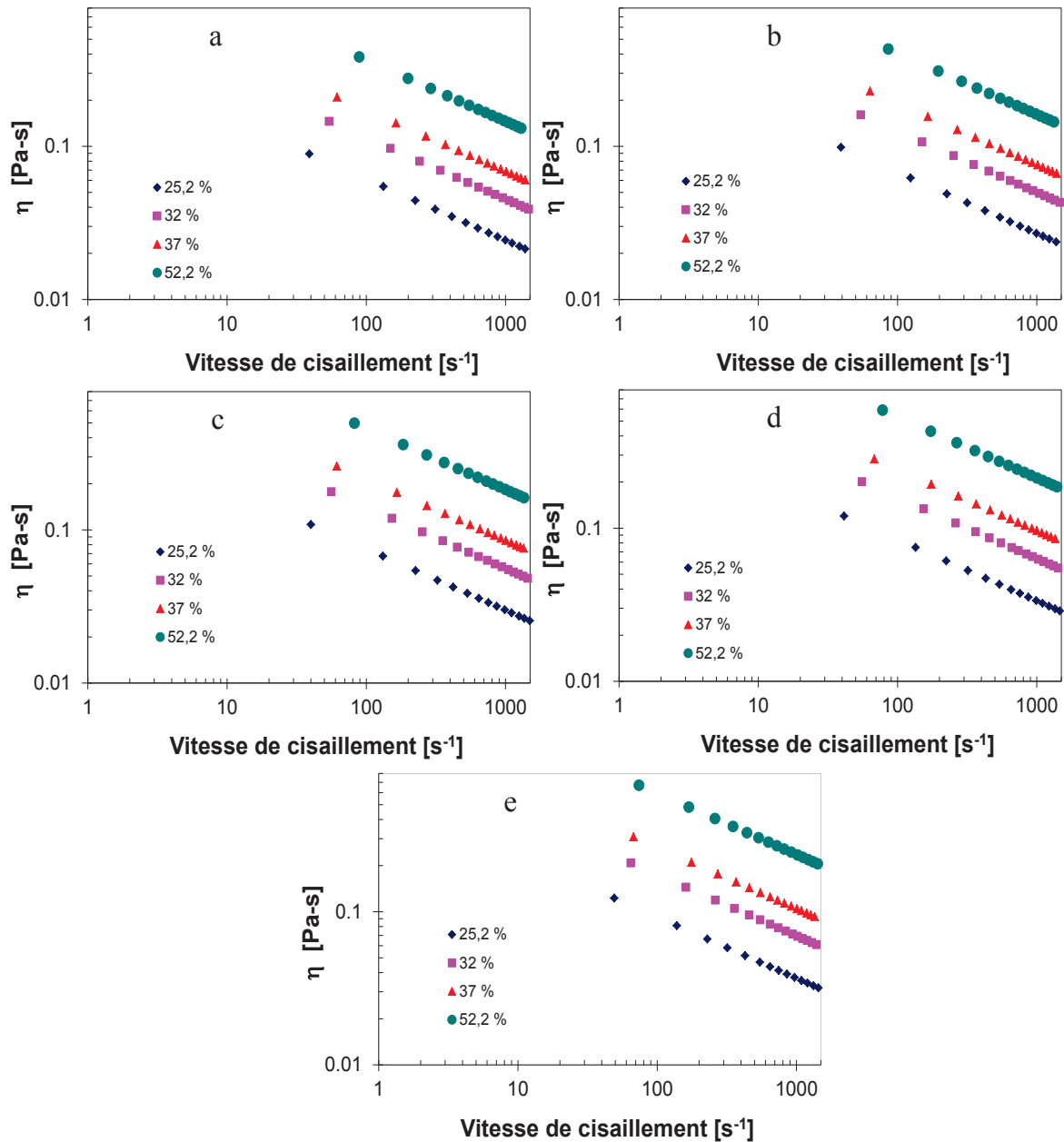
**Figure 3. 3.** Thermo-dépendance de la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement; a) 25,2 % solide b) 32 % solide, c) 37 % solide, d) 52,5 % solide.  $200 \text{ s}^{-1}$  pendant 25 min

On peut également constater que la thermo-dépendance de la viscosité apparente est plus importante lorsque la solution du mix est plus concentrée. L'analyse des résultats montre, comme attendu, une augmentation du coefficient de consistance dans tous les cas lorsque la température diminue.

#### *Influence de la concentration des solides*

L'influence de la quantité des solides totaux en solution est représentée dans la figure 3.4. On constate un effet important du contenu des solides sur la viscosité apparente. Tant que la fraction de solides augmente, la viscosité apparente augmente également, en accord avec S. Kus (2005), Sevim Kaya & Ali R. Tekin (2000) et M.O. Ngadi and L.J. Yu (2000). Cette augmentation de la viscosité apparente est due aux valeurs plus importantes du coefficient de consistance constaté dans le tableau 4.1. D'après les résultats présentés dans ce tableau, on peut également constater que le comportement non-Newtonien est intensifié avec l'augmentation de la quantité de solides. Ce phénomène est décrit par les valeurs de l'indice d'écoulement. Il est bien connu que plus haute est la concentration de solides et plus petite est la valeur cet indice d'écoulement « n ».

Parmi les différents paramètres ayant une influence sur le comportement rhéologique, la concentration en solides est cependant la variable ayant le plus d'influence.



**Figure 3. 4.** Influence de la concentration des solides sur la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement; a) 13 °C, b) 9 °C, c)5 °C, d)1 °C, e) -2 °C.

- *Construction du modèle rhéologique*

La construction du modèle rhéologique est basée sur trois étapes consécutives. La première consiste à utiliser une moyenne de tous les index du comportement du fluide, pour ensuite identifier de nouveaux indices de consistance K correspondants. L'effet de la température est alors modélisé en utilisant un modèle type Arrhenius. Enfin on effectue l'intégration de l'influence de la concentration. La méthodologie et les résultats sont discutés par la suite.



*Optimisation de la vitesse de cisaillement*

La valeur moyenne obtenue pour l'index n est de 0,6 présentée sur le tableau 3.1. En prenant cette dernière valeur et l'indice de consistance est réajusté en utilisant l'équation 3.3. Finalement la courbe d'écoulement est ajustée par la méthode de minimisation des moindres carrés. On répète la procédure pour chacune des courbes d'écoulement.

*Modélisation de l'influence de la température*

La dépendance de la viscosité apparente avec de la température appelée thermodépendance est décrite par la loi d'Arrhenius et est représentée dans la figure 3.5. Cette figure le comportement de l'indice de consistance en fonction de la température et de la concentration du mix. Nous pouvons observer que le comportement est celui attendu: le coefficient de consistance augmente quand la température diminue, il augmente aussi avec la concentration de solides.

En appliquant une régression linéaire sur chacune des droites on obtient une constante ( $k_c$ ) et une énergie d'activation ( $E_a$ ) pour chaque concentration testée. La valeur prise pour la constante de gaz idéal (R) est  $8.3144 \text{ J}\cdot\text{mol}^{-1}\text{K}^{-1}$ . Les résultats sont présentés dans le tableau 3.2.

$$K = k_c \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \tag{3.5}$$

$$\log(K) = \log(k_c) + \frac{E_a}{RT}$$

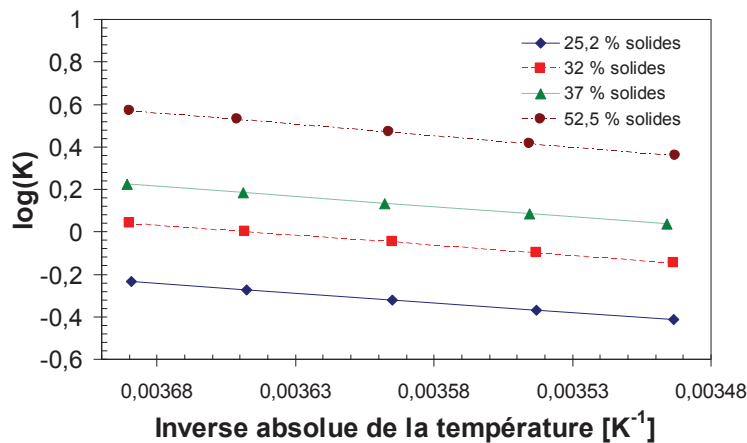


Figure 3. 5. Représentation de l'influence de la température par la loi d'Arrhenius

Tout d'abord nous constatons d'après la figure 3.5 que pour toutes les concentrations on a le même comportement à la thermo-dépendance et selon les pentes correspondant à l'énergie d'activation ont des valeurs du même ordre de grandeur pour toutes les concentrations (Tableau 3. 1).

## CHAPITRE 3. RESULTATS

Les valeurs proches de l'énergie d'activation nous a permis d'effectuer le traitement suivant: nous avons moyenné toutes les valeurs d'énergie d'activation ( $E_a$ ). En utilisant cette moyenne de  $E_a$  on a identifié la valeur  $k_c$  pour chaque température en utilisant l'équation 3.5. La somme des écarts au carré entre les nouvelles valeurs de  $K$  et celles obtenues pour chaque température est alors minimisée par une méthode de moindres carrés. On obtient, ainsi, une valeur ajustée de  $k_c$  pour chaque température (tableau 3.2).

**Tableau 3. 2.** Résultats pour la création de la variable expérimentale de la température

C [%]	T [°C]	$k_c \cdot 10^4$	$E_a$ [J/mol]
25.2	13.0	1.502	17410.38
	9.0		
	5.0		
	1.0		
	-2.0		
32	13.0	2.816	18197.74
	9.0		
	5.0		
	1.0		
	-2.0		
37	13.0	4.265	18272.81
	9.0		
	5.0		
	1.0		
	-2.0		
52.5	13.0	9.321	20695.23
	9.0		
	5.0		
	1.0		
	-2.0		
<i>Moyenne</i>	---	---	18644.03

### *Modélisation de l'influence de la concentration*

L'influence de la concentration a été évaluée à partir des valeurs de  $k_c$  obtenues dans l'analyse de la température (table 3.2). Pour la modélisation de l'effet de la concentration, l'équation 3.6 a été exprimée sous sa forme logarithmique et les coefficients ont été ajustés par la méthode des moindres carrés (figure 3.6)

$$k_c = k'_c (C)^\varepsilon \leftrightarrow \log(k_c) = \log(k'_c) + \varepsilon \log(C) \quad (3.6)$$

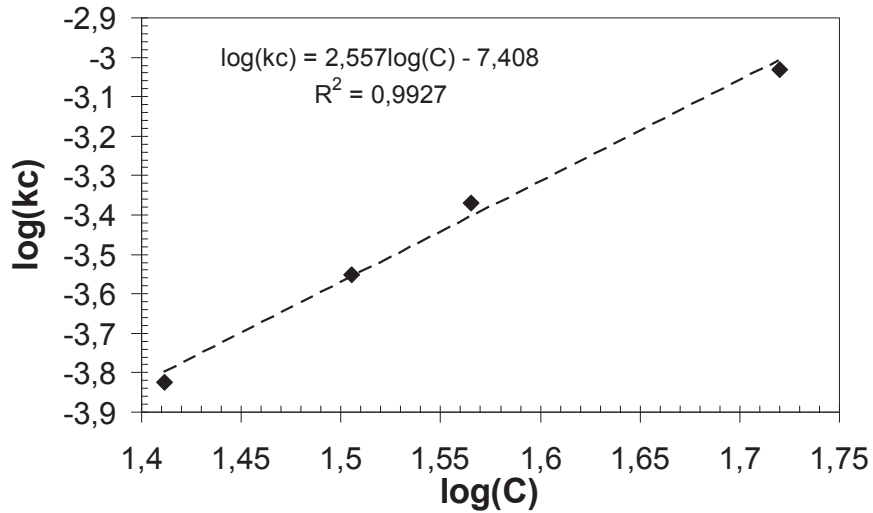


Figure 3. 6. Représentation de l'influence de la concentration

On obtient ainsi les deux constantes de l'équation à partir de la pente de la courbe ( $\epsilon=2.557$ ) et l'inverse logarithmique de l'ordonnée à l'origine ( $k'_c=3.902 \times 10^{-8}$ ).

*Modèle final*

Le modèle rhéologique du mix de sorbet est exprimé par une équation unique qui prend en compte la variation de la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement, la température et la concentration. Ce modèle correspond à l'équation 3.7. Les paramètres de cette équation sont donnés dans le tableau 3.3.

$$\eta = k'_c \cdot \dot{\gamma}^{\bar{n}-1} \cdot \exp\left(\frac{E_a}{RT}\right) (C)^\epsilon \tag{3.7}$$

Tableau 3. 3. Paramètres pour le modèle rhéologique

Constantes	Valeurs
$kc' \times 10^9$	39,02
$\bar{n}$	0,600
E/R	2242,38
$\epsilon$	2,56
<b>R<sup>2</sup></b>	<b>0,996</b>

La figure 3.7 présente une comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées à partir du modèle. On constate que la valeur du R<sup>2</sup> est très proche de l'unité.

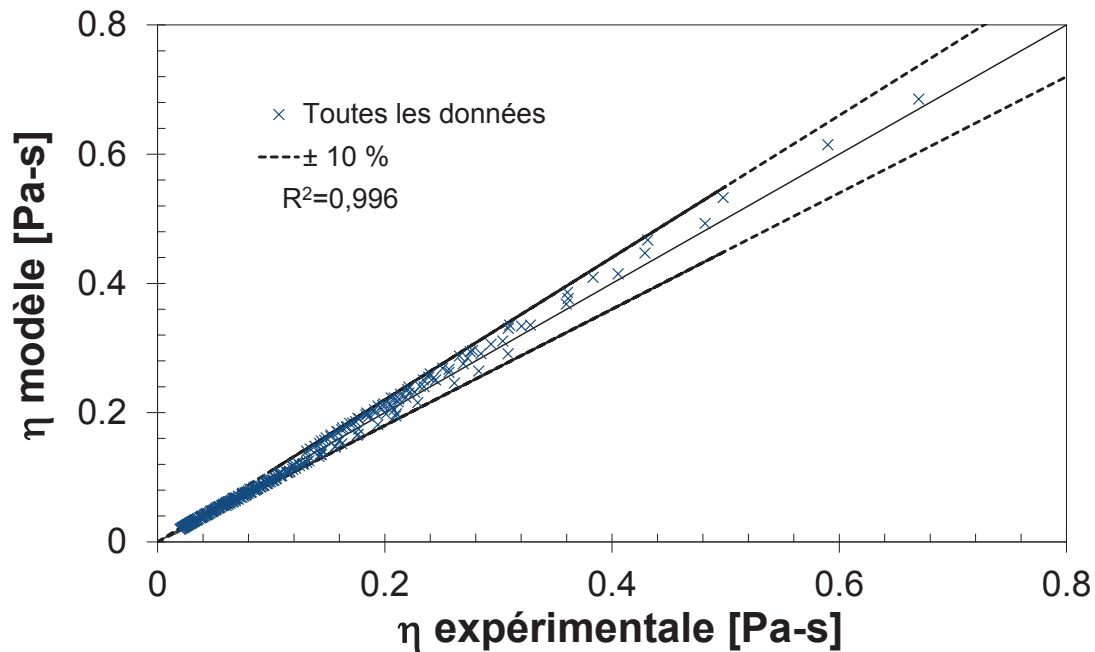


Figure 3. 7. Comparaison des valeurs expérimentales et calculées à partir du modèle rhéologique

Afin de compléter la validation du modèle, nous avons effectué deux expérimentations dans deux conditions hors du champ expérimental utilisé pour l'identification de paramètres. La première expérience correspond à une solution du mix modèle avec 25,2 % de matière solide à 3 °C et la deuxième à un mix avec 38 % de solides et à 0 °C. Dans les deux cas, le modèle a permis de prédire de manière satisfaisante la courbe d'écoulement. Les résultats de ces essais supplémentaires sont montrés dans la figure 3.8.

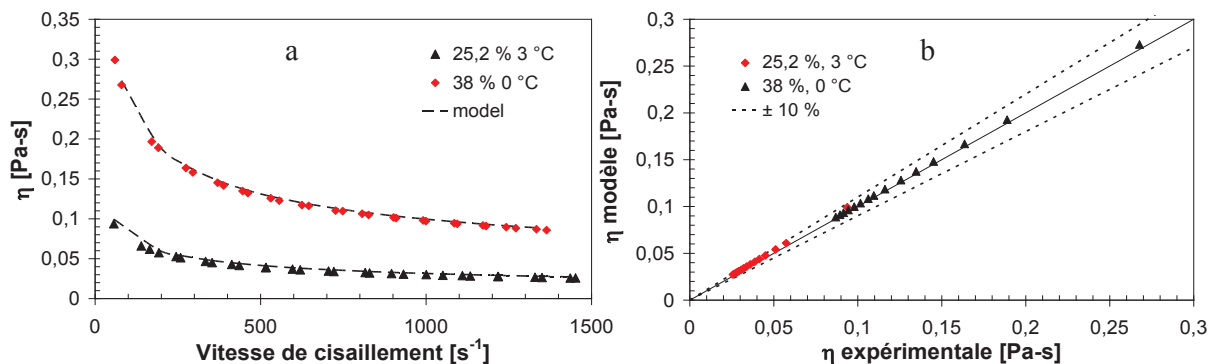


Figure 3. 8. Validation du modèle à partir des essais supplémentaires hors du champ d'expériences; a) Courbes d'écoulement expérimentales et modélisées, b) Comparaison des valeurs expérimentales et calculées à partir du modèle. Le protocole expérimental est le même que celui du plan d'expériences: 200 s<sup>-1</sup> pendant 25 min, 1 min à 1000 s<sup>-1</sup> et allée-retour 50-1200 s<sup>-1</sup>. Les vitesses de cisaillement des courbes ont été corrigées en suivant la méthodologie décrite en 4.1.1.2.

La qualité de prédiction est donc élevée. Ce modèle peut être utilisé pour la prédiction de la viscosité de la solution résiduelle au fur et à mesure que le mix se concentre. Ainsi, donc, ce modèle rhéologique sera utilisé pour la prédiction de la viscosité de la suspension de cristaux au cours de la cristallisation. En effet la viscosité de la suspension de cristaux de glace peut être estimée à partir de l'équation de Thomas (1965) éq. (3.8).

$$\mu = \mu_s \left( 1 + 2,5\varphi_g + 10,5\varphi_g^2 + \Gamma \cdot 0.00273 \exp(16,6\varphi_g) \right) \quad (3.8)$$

Cette équation prédit la viscosité des suspensions en fonction de la fraction volumique la phase solide ( $\varphi_g$  cristaux de glace) et de la viscosité de la phase continue  $\mu_s$ . Au cours de la cristallisation dans le ECSR, la fraction de glace augmente, la solution résiduelle se concentre, le modèle rhéologique ici développé permettra de mieux prédire la viscosité d'une suspension dont la phase continue a un comportement non newtonien qui évolué avec la concentration et avec la température,

- *Conclusion*

Un modèle rhéologique a été développé. Dans ce modèle on considère l'influence de la vitesse de cisaillement, l'influence de la température et également l'effet de la concentration de solides sur la viscosité apparente. L'équation développée présente un très bon accord entre l'expérience et le modèle avec une erreur de prédiction inférieure à 10%. Le modèle a été validé à partir d'essais indépendants non utilisés pour l'identification et on a pu constater la validité des courbes d'écoulement prédites.

Etant donné le manque de modèles pour prédire la rhéologie de mixes, ce modèle représente une contribution dans la recherche de la modélisation rhéologique des mix pour la production de crèmes glacées. La méthodologie suivie pour la modélisation de ce mix destiné à la fabrication de la crème glacée peut être utilisée pour la caractérisation de n'importe quel mix modèle. Ce modèle sera par la suite utilisé pour la modélisation du procédé de cristallisation, afin de simuler le comportement à l'écoulement de la phase non-congelée.

### 3.1.2 Courbe de liquidus et chaleur latente de cristallisation

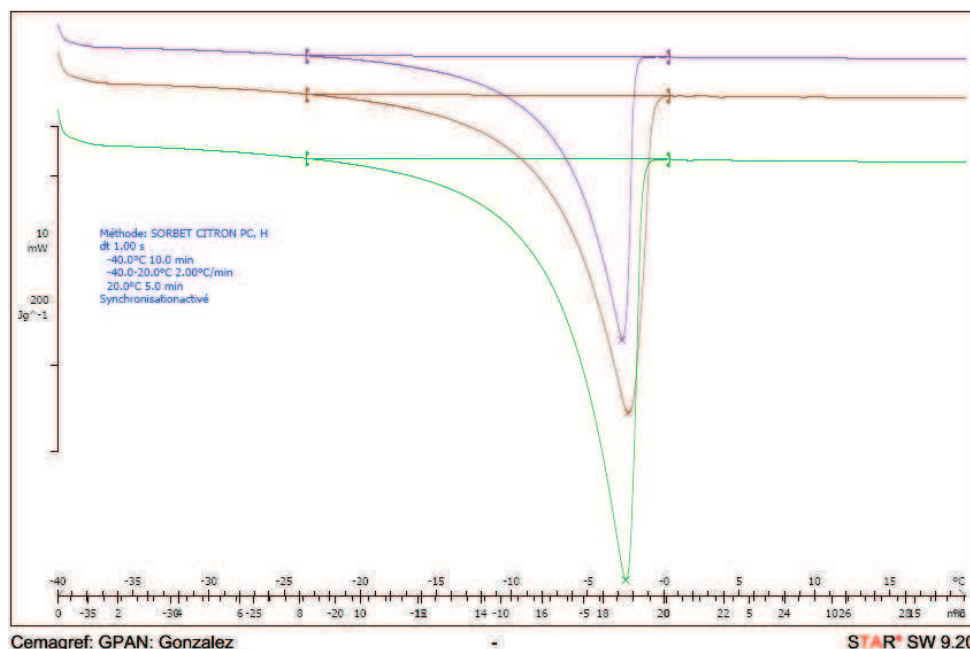
La courbe de liquidus pour une solution binaire donnée est aussi une donnée indispensable dans la modélisation de la cristallisation. Cette courbe détermine les températures de congélation commençante tout le long de l'échangeur, et indirectement la quantité de cristaux de glace formés.

Ainsi à partir de mesures par microcalorimétrie (DSC), le point de congélation du mix sorbet à différentes concentrations a été déterminé, ainsi que la chaleur latente de cristallisation. L'ensemble de ces mesures a permis de construire la courbe dite de "liquidus".

- *Courbes DSC : caractérisation du point de fusion et de la chaleur latente*

La courbe obtenue par la mesure DSC (avec un Mettler-Toledo® modèle DSC 822e/200W, décrit dans le chapitre 3) montre la quantité de chaleur fournie à l'échantillon pendant l'expérimentation. Cette courbe est le résultat de la comparaison entre une référence et l'échantillon en mesurant la quantité de chaleur fournie ou libérée. Les courbes de la figure

3.9 présentent ces résultats pour le mix citron. Chacune de ces mesures ont été répétées trois fois afin de vérifier la répétabilité de la réponse de l'appareil de mesure.



**Figure 3. 9.** Courbe de flux de chaleur pour le mix citron à 25,2 % de solides. Méthode: -40 °C pendant 10 min, passage de -40 à 20 °C (2 °Cmin<sup>-1</sup>) et 20 °C pendant 5 min.

Chacune de ces courbes ont par la suite été analysées à l'aide du logiciel STAR 9.2 couplé à l'appareil DSC. Ce logiciel permet de réaliser une intégration des courbes ou de portions des courbes en fonction du temps. Le résultat de cette intégration permet d'obtenir la chaleur fournie ou extraite à la masse de l'échantillon objet de la mesure lors du phénomène de changement de phase (chaleur latente de fusion). Ces courbes permettent également d'identifier la température de fusion du produit. Dans le cas du mix citron, les résultats obtenus à partir de cette analyse ont permis d'identifier une température de fusion de -2,63 °C et une chaleur latente de  $323.10^3 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}$ .

- *La courbe de "liquidus"*

Afin de pouvoir établir la courbe de liquidus (ou courbe d'équilibre thermodynamique de saturation), on a procédé à l'analyse de solutions de mix citron à différentes concentrations telles que données dans le tableau 3.4.

**Tableau 3. 4.** Températures de fusion pour les solutions du mix citron à différentes concentrations de solides. La concentration de sucre équivalente présente dans chaque échantillon a été mesurée par réfractométrie

° Brix	T <sub>f</sub>
25,2	-2,63 ± 0.03
34,5	-4,74 ± 0.04
40	-6,10 ± 0.09
47	-8,90 ± 0.07
54	-12,70 ± 0.1

L'évolution de la température du point de fusion en fonction de la concentration en solides est présentée dans la figure 4.10. Dans cette figure, on compare les résultats obtenus et une courbe de saturation obtenue pour une solution sucrée établie à partir de la relation de Bubnik (Bubnik et al., 1995) donnée par l'équation 3.8

$$T_{sat} = -(5.1757\omega + 13.27\omega^2 - 24.16\omega^3 + 75.52\omega^4) \quad (3.9)$$

La différence entre les points de fusion entre les deux courbes est probablement due à la nature des composants constituant le mix citron, et en particulier à la présence de fructose et de sels de calcium qui ont sûrement un effet important dans l'abaissement cryoscopique. L'utilisation de fructose comme sucre est en effet connue pour abaisser le point de fusion. En effet, la présence de monosaccharides dans la structure du fructose explique ce comportement (Baer and Keating (1987), Marshall et al., (2003), Richard W. Hartel (2001), E. M. Drewett and R.W. Hartel (2007)). Jaskulka et al., (1995) a établi une relation empirique pour calculer le point de congélation en utilisant une diversité de composants. Dans son étude, il montre un impact significatif sur le point de fusion des mix pour chaque composant étudié.

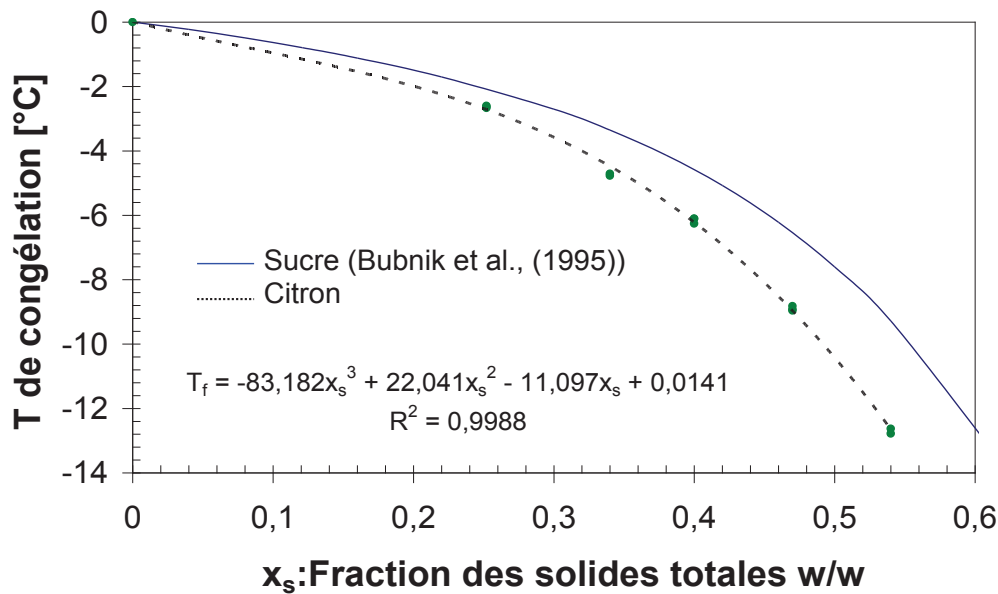


Figure 3. 10. Comparaison entre la courbe de saturation du mix citron analysé et celle d'une solution sucrée

On observe également dans la figure 3.10 que l'écart entre les courbes tend à augmenter lorsque la concentration de solides augmente. Ce phénomène s'explique par l'effet de la concentration des mix sur les masses molaires des différents constituants. Plus le mix est concentré et plus la concentration présente de chaque composant augmente en ayant l'effet attendu : un effet dans l'abaissement cryoscopique. Les différences de masse molaires entre le saccharose (courbe théorique sur la Figure 3.10) et le mélange de notre mix qui contient du saccharose, du fructose et des sels (points verts sur la Figure 3.10) font que le mix a sans doute une masse molaire inférieure, ce qui peut expliquer que les points de fusion soient très différents. Or le point de fusion est une propriété qui dépend des masses molaires des

constituants (K.L.K. Cook and R. W. Hartel 2010). Plus faible est la masse molaire et plus faible sera le point de fusion (Robert T. Marshall et al., 2003, Christos Soukoulis et al., 2009, Tala Miller-Livney and Richard W. Hartel, 1996).

- *Etude de l'enthalpie par rapport à la température*

L'enthalpie peut être déterminée à partir des mesures issues de la DSC. Si l'on se fixe une référence arbitraire de 0 J/g à 0 °C, on peut représenter les résultats de mesures sur un graphe tel que présenté dans la figure 3.11 (Cogne et al. (2003a,b)). Comme on peut le voir sur cette figure, l'enthalpie du mix est une fonction de la température et de la concentration initiale de solides. On rappelle que la concentration du mix à l'origine est de 25,2 %.

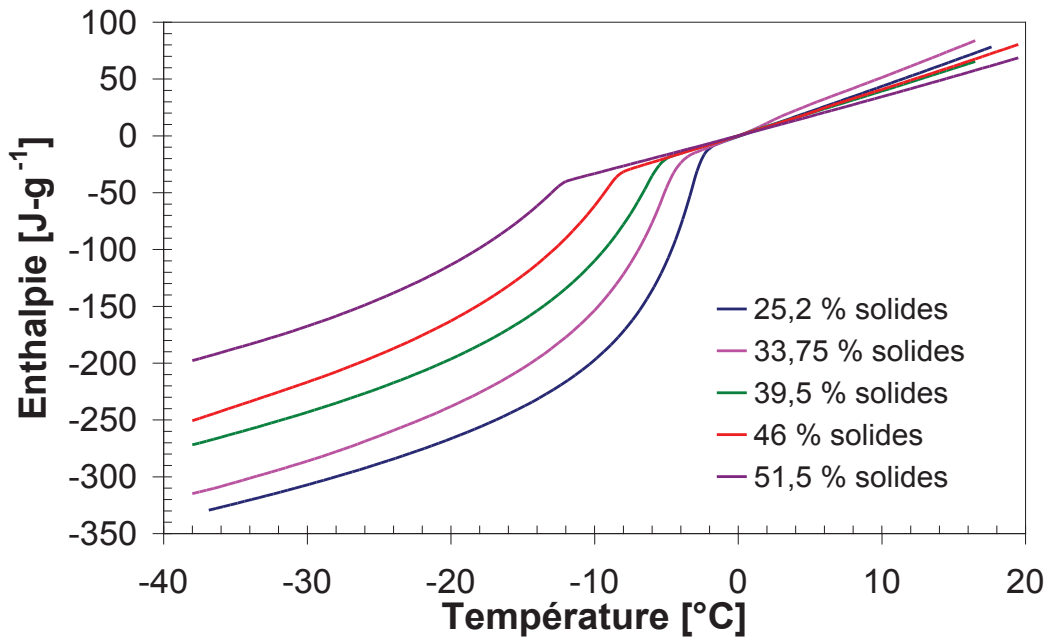


Figure 3. 11. Evaluation de l'enthalpie en fonction de la température à différentes concentrations de solides

Cerecero (2003) propose le calcul de l'enthalpie d'une solution sucrée lors du changement de phase. La référence est de même fixée à 0 J/g à 0 °C (température de congélation de l'eau pure) :

$$h_m = x_g \left( \Delta H_f + \int_0^T C_p(T) dT \right) + (1 - x_g) \int_0^T C_{p_{sol}}(T) dT \quad (3.10)$$

où  $h_m$  est l'enthalpie du mélange diphasique,  $x_g$  est la fraction massique de glace,  $C_p$  est la capacité calorifique du mélange diphasique et  $C_{p_{sol}}$  est la capacité calorifique de la solution obtenue à partir de:

$$C_{p_{sol}} = (\varpi_0 \cdot C_{p_s} + (1 - \varpi_0) \cdot C_{p_e}) \quad (3.11)$$

où  $\varpi_0$  représente la fraction de solides.



Cogne et al., (2003a, b) ont également modélisé l'enthalpie de mix pour la fabrication de crèmes glacées. Ils proposent de calculer la capacité calorifique à partir de la fraction massique de chaque composant:

$$Cp(T) = \sum_j x_j Cp_j - \Delta H_f \frac{dx_g}{dT} \quad (3.12)$$

$\frac{dx_g}{dT}$  représente la variation de la fraction de glace par rapport à la température. Cette fraction massique  $x_g$  peut être modélisée en fonction de la température par la relation de Miles (1983):

$$x_g = (1 - \varpi_0) \left( 1 - \frac{T_f}{T} \right) \quad (3.13)$$

où  $T_f$  est la température de fusion du mix et  $T$  la température en °C. En appliquant la dérivée par rapport à la température sur la fonction de la fraction glace, on obtient:

$$\frac{dx_g}{dT} = (1 - \varpi_0) \left( \frac{T_f}{T^2} \right) \quad (3.14)$$

En combinant les équations 3.14 et 3.12, et en exprimant les intégrales de l'équation 3.8, on obtient une relation donnant l'enthalpie du mix. On considère ici le saccharose comme composant unique de la fraction de solides ( $\varpi_0$ ) et la température de fusion  $T_f$  égale à -2.63 °C (d'après la mesure). La figure 3.12 présente la comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs du modèle.

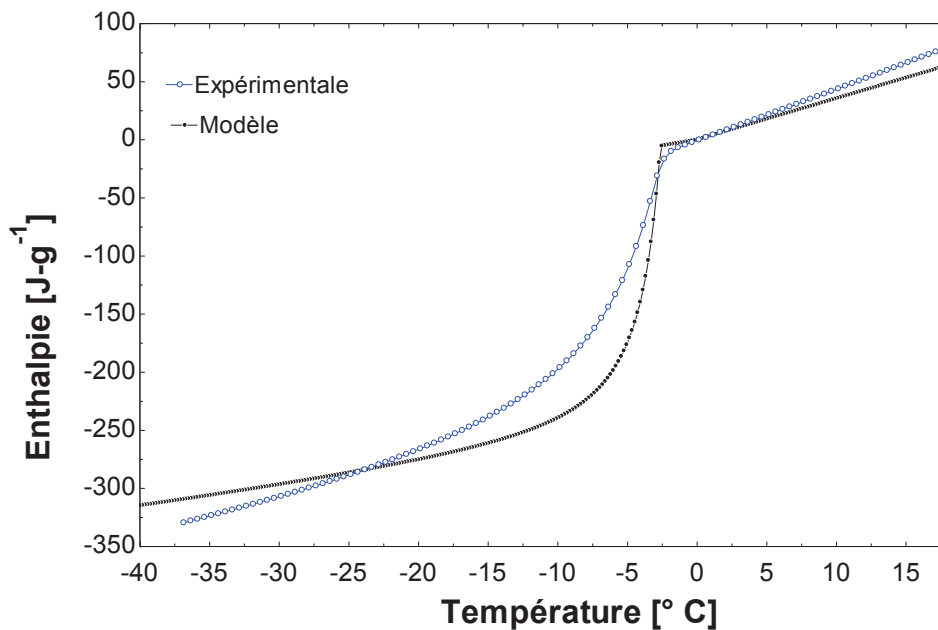


Figure 3. 12. Comparaison entre la courbe d'enthalpie expérimentale et du modèle

## CHAPITRE 3. RESULTATS

On observe dans la figure 3.12 une déviation de la courbe au début du changement de phase et aux extrêmes. Cette déviation entre les courbes peut être due par la présence d'autres composants que le saccharose.

- *Conclusion*

L'étude DSC nous a permis de construire la courbe de saturation ("liquidus") pour notre solution modèle. Cette courbe dépend de la composition, et notamment des sucres et sels présents. La comparaison avec la modélisation fait apparaître des différences probablement dues à la présence de fructose et autres substituts de sucres. Ce phénomène est bien connu et expliqué par la présence de monosaccharides dans la structure du fructose. La température de saturation est un paramètre utilisé pour la modélisation de la cinétique de cristallisation. De ce fait, la courbe de "liquidus" sera utilisée plus tard dans notre modèle.

### 3.2 Caractérisation du procédé

Afin de connaître l'effet des variables de procédé sur les variables de sortie telles que la température de sortie, la fraction volumique de cristaux de glace et la taille de cristaux, nous avons effectué deux plans d'expérience à partir de la méthode « composites centrées » présentée dans la partie matériel et méthodes. Le premier a visé à caractériser l'influence des différentes variables de contrôle sur le procédé et le second avait pour objectif la caractérisation de la machine frigorifique.

#### 3.2.1 Influence des variables de contrôle sur les propriétés de la crème glacée

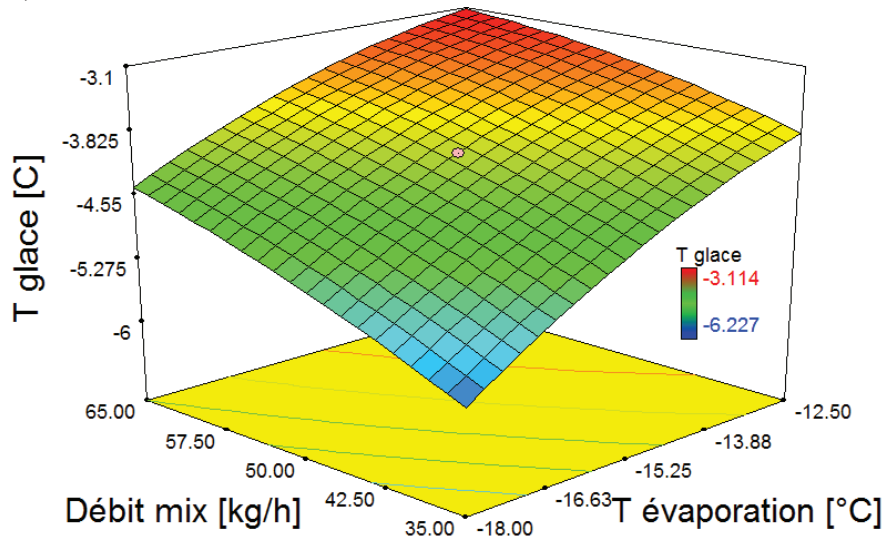
Nombreux sont les paramètres du procédé qui peuvent affecter la qualité d'une crème glacée (R. W. Hartel 1996). On peut citer le type de "Freezer", la forme des lames, une éventuelle recirculation du produit, la pression dans le cylindre, la quantité d'air injectée, le débit du mix, la vitesse du racleur et la température d'évaporation du frigorigène. Afin d'avoir un système modèle relativement plus "simple", nous n'avons pas injecté d'air afin d'étudier un système seulement diphasique. On analyse dans cette étude l'influence de trois variables du procédé manipulables : le débit de produit, la vitesse du racleur et la température d'évaporation. Il faut souligner dans le cas présenté ici l'absence d'injection d'air pour toutes les expériences.

#### *Température de sortie du produit*

La température du sorbet détermine la fraction volumique de glace formée, et est par conséquent un paramètre important de contrôle de la qualité du produit. (H. W. Hartel 1996, Drewett et R. R. Hartel 2007, A. B. Russell et al. 1999).

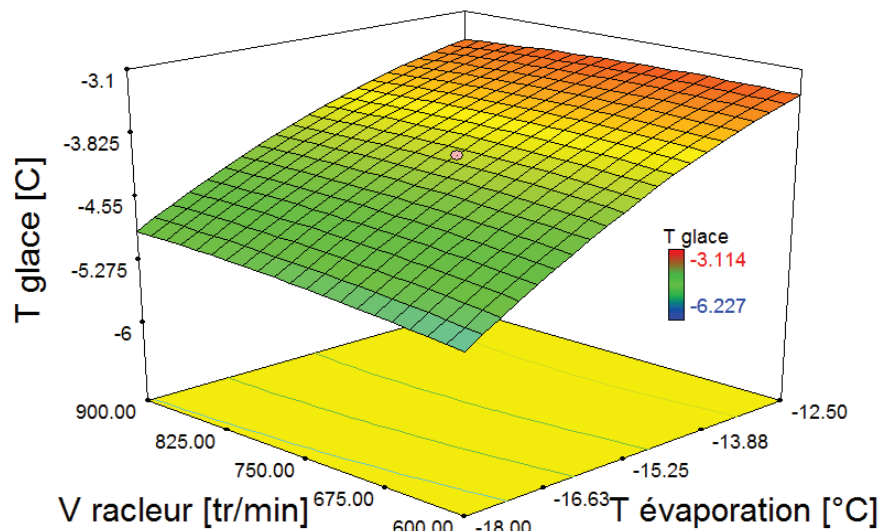
Le plan d'expériences réalisé a permis d'analyser l'effet des trois variables de contrôle du procédé étudié. La figure 3.13 montre l'influence de la température d'évaporation et le débit de mix sur la température de sortie du produit. Les deux variables ont un effet significatif sur la

température de sortie. Celle-ci est d'autant plus faible que la température d'évaporation est faible et le débit est également faible (le temps de séjour du produit dans l'échangeur est alors plus important).



**Figure 3. 13.** Surface de réponse pour la température de sortie du sorbet ( $T_{\text{glace}}$ ) en fonction de la température d'évaporation ( $T_{\text{évaporation}}$ ) et le débit du mix; vitesse du racleur  $750 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$

La figure 3.14 représente l'effet de la température d'évaporation et de la vitesse du racleur sur la température du sorbet en sortie d'échangeur. On remarque lors de ces essais très peu d'effet de la vitesse de rotation du racleur sur la température de sortie malgré l'augmentation de la dissipation de chaleur due à la dissipation visqueuse et au raclage des lames sur la paroi. Il faut cependant rappeler que les essais ont été réalisés à température d'évaporation constante et non à puissance frigorifique constante.



**Figure 3. 14.** Surface de réponse pour la température de sortie du sorbet ( $T_{\text{glace}}$ ) en fonction de la température d'évaporation ( $T_{\text{évaporation}}$ ) et la vitesse du racleur ( $V_{\text{racleur}}$ ); vitesse du racleur  $750 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$

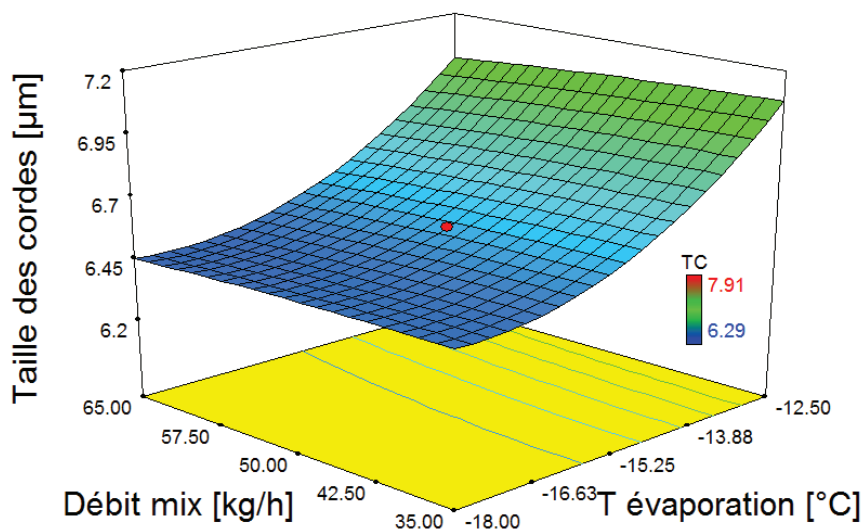
*Tailles moyenne des cristaux*

## CHAPITRE 3. RESULTATS

La taille moyenne des cristaux est un critère de qualité important de la crème glacée. Un objectif commun à beaucoup de travaux (A. B Russel et al., 1999, E. M. Drewett et R. W. Hartel 2007, R. W. Hartel 1996) est de fournir un produit composé de cristaux les plus petits possibles.

Les mesures présentées ici sont basées sur les résultats obtenus à partir de la sonde FBRM présentée dans la partie matériels et méthodes. Ce capteur permet d'obtenir une distribution de taille de cordes correspondant aux temps de réfraction du laser. La valeur présentée dans les graphiques qui suivent est la taille moyenne des cordes lors de chaque essai.

La figure 3.15 présente l'influence de la température d'évaporation et le débit de mix sur cette propriété, représentée par une surface de réponse où le point central est le point rouge au centre. On remarque une influence forte de la température d'évaporation, la taille moyenne des cordes étant plus faible lorsque l'on abaisse cette température. Ceci s'explique principalement par l'intensification de la nucléation avec la réduction de température qui tend à former un grand nombre de « petits » cristaux (E. M. Drewett et R. W. Hartel 2007).



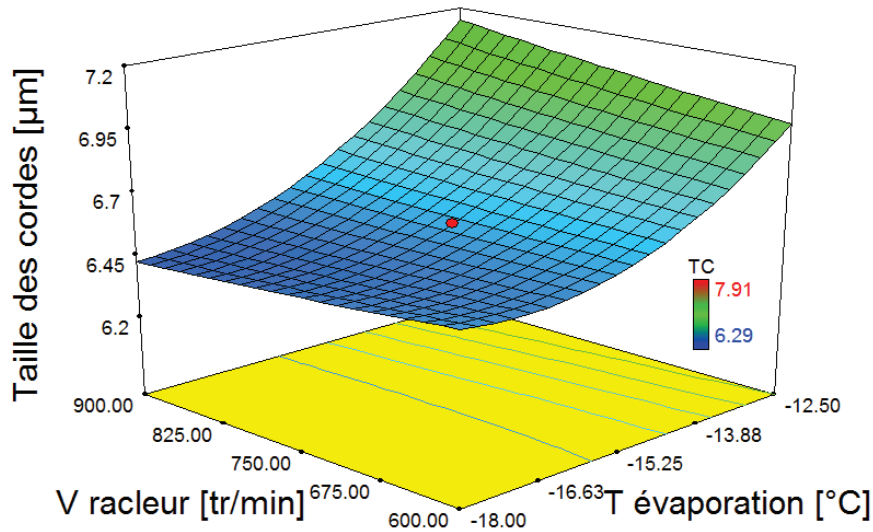
**Figure 3. 15.** Surface de réponse pour la taille moyenne des cordes en fonction de la température d'évaporation ( $T$  évaporation) et le débit du mix; vitesse du racleur  $750 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$

Ces résultats sont en accord avec d'autres auteurs qui ont montré qu'à plus faible températures de sortie du produit la taille moyenne des cristaux tend à être plus petite (A. B Russel et al., 1998, E. M. Drewett et R. W. Hartel 2007).

Peu d'influence du débit de mix a pu être constaté lors des expériences. Un effet rapporté dans la littérature est une réduction de la taille moyenne de cristaux lorsque le temps de séjour est faible (Guoping Lian et al., 2006, A. B Russel et al., (1998) et E. M. Drewett et R. W. Hartel (2007)). Une tendance similaire (très faible) a été identifiée expérimentalement.

Comme on peut le voir dans la figure 3.16, la vitesse du racleur a une influence significative, mais faible, sur la taille des cristaux. La taille moyenne des cordes tend à diminuer lorsque la vitesse de rotation du racleur augmente. Ceci pourrait s'expliquer principalement par les

phénomènes d'attrition et de fusion qui tendent à augmenter avec l'augmentation de la vitesse de rotation.



**Figure 3. 16.** Surface de réponse pour la taille moyenne des cordes en fonction de la température d'évaporation (T évaporation) et la vitesse du racleur (V racleur); vitesse du racleur 750 tr·min<sup>-1</sup>

En conclusion, comme on l'attendait la taille des cristaux est principalement gouvernée par la température d'évaporation. La réduction de cette température a pour effet d'augmenter le taux de nucléation et de réduire ainsi la taille moyenne des cristaux. Le débit de mix et la vitesse de racleur ont également un effet sur la taille moyenne des cristaux. Cet effet est cependant beaucoup plus faible que celui lié à la température d'évaporation. Ceci est un résultat surprenant car on attendait un effet important de la vitesse de rotation de lames. La réduction du temps de séjour dans le cas du débit, et l'augmentation des phénomènes d'attrition et de fusion dans le cas de la vitesse du racleur expliquent l'impact de ces variables opératoires sur la taille des cristaux.

### 3.2.2 Estimation du coefficient de transfert de chaleur

Afin d'évaluer le coefficient de transfert de chaleur, on se base sur l'hypothèse d'une évolution de la température telle que représentée dans la figure 3.17. La longueur de l'échangeur est divisée en deux sections : la première correspond au refroidissement du mix jusqu'à la température initiale de congélation du mix et la deuxième correspond à la zone de cristallisation du produit. On considère que le coefficient d'échange est uniforme tout au long de l'échangeur. A partir de la puissance frigorifique mesurée et des températures d'entrée et de sortie du mix, il est alors possible d'estimer ce coefficient d'échange par le système d'équations 3.15 et 3.16.

$$Q = US\Delta\bar{T} \quad (3.15)$$

$$\begin{aligned}
 Q_1 &= US_1 \left( \frac{T_{cong} - T_i}{2} \right) \\
 Q_2 &= US_2 \left( \frac{T - T_{cong}}{2} \right) \\
 S_1 + S_2 &= S \\
 Q_1 + Q_2 &= Q_{frigo}
 \end{aligned}
 \tag{3.16}$$

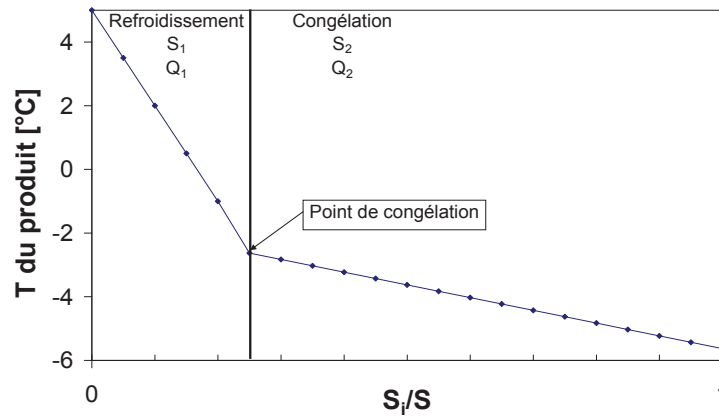


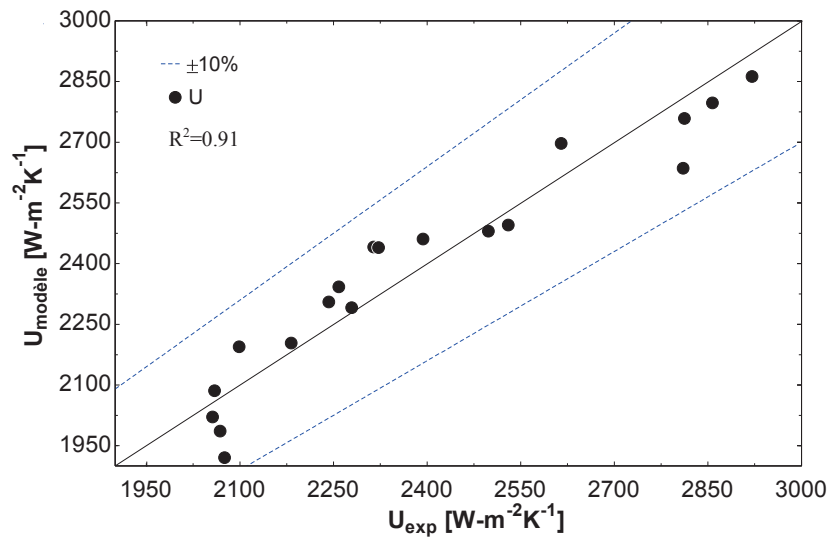
Figure 3. 17. Découpage en deux zones pour l'évaluation du coefficient d'échange

Le tableau 3.5 présente l'estimation du coefficient de transfert pour chaque expérience.

Tableau 3. 5. Valeurs estimées pour le coefficient de transfert de chaleur (U) entre la paroi et le produit en fonction du débit du mix, la vitesse du racleur (VR) et la température d'évaporation ( $T_{évap}$ ).

No	Débit [Kg-h <sup>-1</sup> ]	VR [tr-s <sup>-1</sup> ]	T <sub>évap</sub> [° C]	U [W-m <sup>-2</sup> C <sup>-1</sup> ]
1	25	750	-17,99 ± 0.05	2811
2	25	750	-15,28 ± 0.19	2183
3	25	750	-20.00 ± 0.06	2315
4	34,75	900	-18,03 ± 0.04	2858
5	34,75	600	-18,03 ± 0.06	2615
6	34,75	900	-12,46 ± 0.04	2057
7	34,75	600	-12,5 ± 0.04	2076
8	50	750	-20,05 ± 0.04	2531
9	50	750	-10,48 ± 0.04	2259
11	50	750	-15,37 ± 0.12	2280
12	50	1000	-15,44 ± 0.18	2499
13	50	545	-15,38 ± 0.12	2323
14	65	600	-17,93 ± 0.04	2813
15	65	900	-17,99 ± 0.06	2921
16	65	600	-12,63 ± 0.08	2069
17	65	900	-12,67 ± 0.14	2060
18	75	750	-15,4 ± 0.12	2243

On présente dans la figure 3.18 la comparaison entre la relation empirique et les résultats expérimentaux. L'erreur maximale entre modèle et mesures est de 10%.



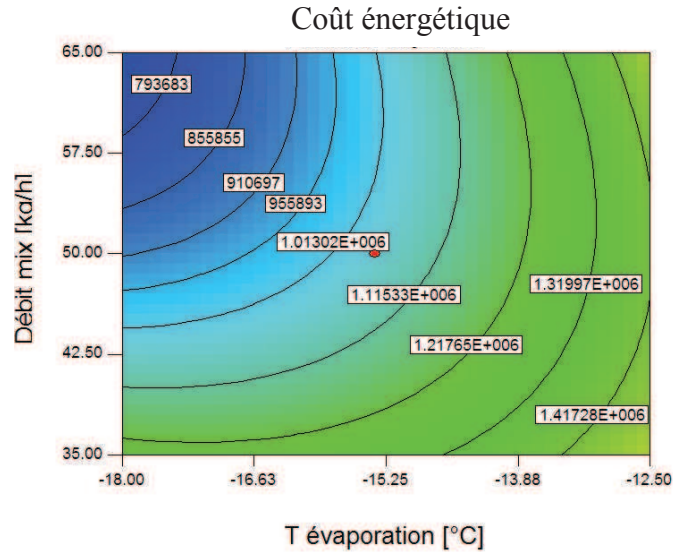
**Figure 3. 18.** Comparaison entre le coefficient de transfert chaleur calculé à partir du modèle empirique et les résultats expérimentaux.

### 3.2.3 Efficacité énergétique du procédé

Afin d'analyser l'efficacité du procédé de cristallisation, une fonction de coût énergétique définie comme le rapport entre la puissance électrique consommée et la quantité de glace formée par unité de temps (équation 3.18) a été évaluée pour les différentes conditions opératoires

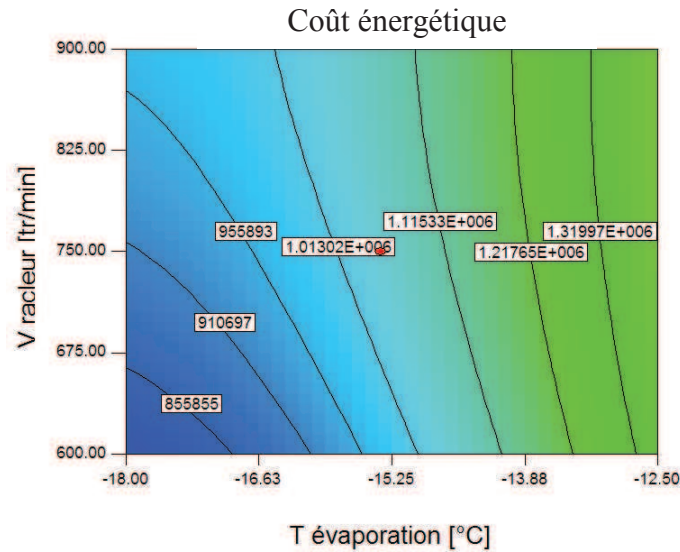
$$CE = \frac{\sum_i W}{\dot{m}_g} = \frac{\sum_i W}{\dot{m}_{mix} \cdot x_g} \quad (3.18)$$

Les résultats sont présentés dans les figures 3.19 et 3.20 en fonction de la température d'évaporation, du débit de mix et de la vitesse du racleur. La figure 3.19 montre que le coût énergétique par kg de glace produit est minimal lorsque la température d'évaporation est faible et le débit est maximum.



**Figure 3. 19.** Surface de réponse pour la fonction objective CE par rapport à la température d'évaporation et le débit de mix. Vitesse de racleur 500 tr·s<sup>-1</sup>.

La figure 3.20 montre que le coût énergétique par kg de glace produit est minimal lorsque la température d'évaporation est faible et la vitesse du racleur est faible.



**Figure 3. 20.** Surface de réponse pour la fonction objective CE par rapport à la température d'évaporation et la vitesse du racleur. Débit de mix 50 kg·h<sup>-1</sup>.

L'analyse expérimentale de l'efficacité énergétique du procédé permet ainsi de mettre en évidence des conditions opératoires optimales :

- Une température d'évaporation la plus basse possible
- Le débit de mix le plus élevé possible
- La vitesse de racleur la plus basse possible

Le critère énergétique n'est cependant qu'un critère parmi d'autres ; il faut en particulier tenir compte également de l'impact des conditions opératoires sur la qualité du sorbet et en particulier sur sa structure cristalline.



### 3.3 Remarques sur le contrôle de la température d'évaporation

La régulation de la température d'évaporation de la majorité des cristalliseurs industriels est effectuée par l'intermédiaire d'une vanne qui agit sur le débit de frigorigène à l'aspiration du compresseur (figure 3.21). C'est le cas de l'installation pilote utilisée dans cette étude. Ce principe de régulation consiste donc à provoquer une perte de pression artificielle de l'écoulement du fluide frigorigène afin de limiter la puissance frigorifique produite. Cette perte de pression est une source de dissipation d'énergie et réduit considérablement l'efficacité de l'installation.

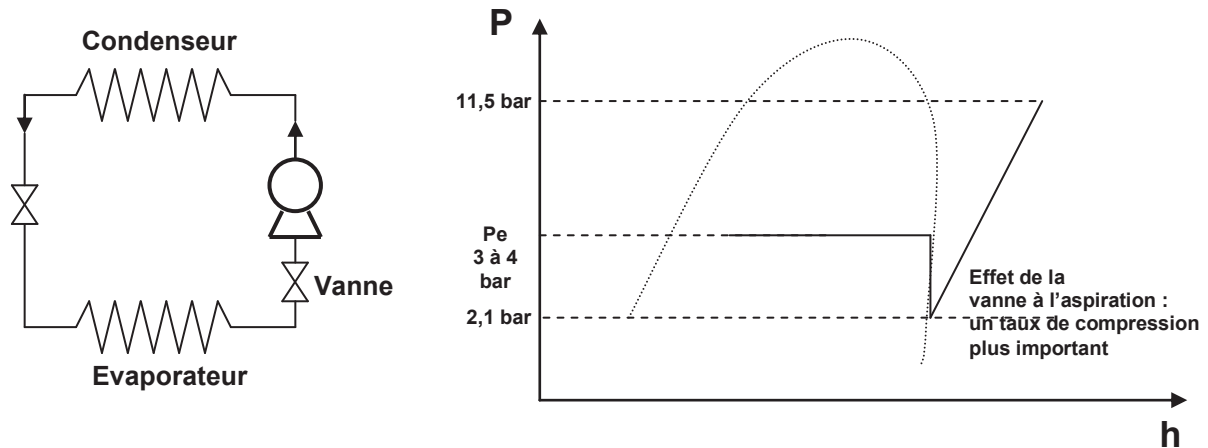
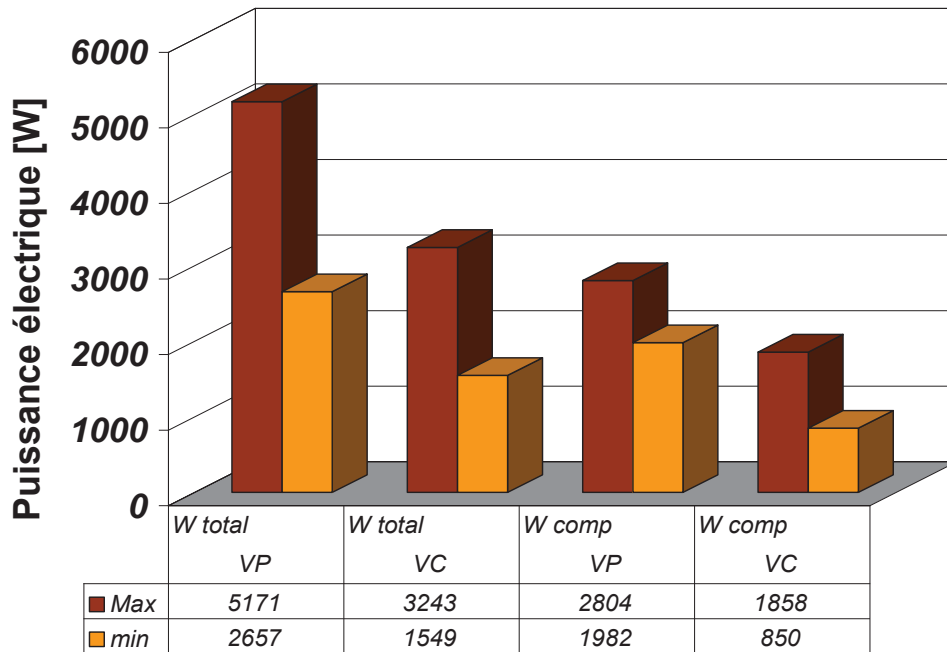


Figure 3. 21. Principe de régulation de puissance du cristalliseur

Un autre mode de régulation de puissance d'une installation frigorifique consiste à agir sur la vitesse de rotation du compresseur, et donc sur le débit volumétrique aspiré par celui-ci. Ce type de régulation a été installé et évalué sur l'installation pilote.

La figure 3.22 présente les valeurs maximales et minimales de la consommation énergétique en utilisant, dans un cas la vanne à l'aspiration (VP), dans l'autre cas la vitesse variable du compresseur (VC). On peut constater une réduction importante de la consommation énergétique en faveur de la régulation par vitesse variable.



**Figure 3. 22.** Consommation électrique maximale et minimale pour l'installation et pour le compresseur seul.  
 VP = en utilisant une vanne à l'aspiration du compresseur; VC = vitesse variable du compresseur

L'utilisation de compresseurs à vitesse variable permet de plus une régulation plus adaptée permettant la mise en œuvre de techniques classiques de régulation continue (PID par exemple) ou de techniques plus avancées.

## Chapitre 4 MODELISATION DU CRISTALLISEUR

Un modèle de cristalliseur doit décrire les écoulements, les échanges de chaleur, les bilans de matière et le phénomène de cristallisation et leurs interactions. La cristallisation en elle-même est un phénomène complexe incluant des processus de nucléation, de croissance, d'agglomération et de brisure des cristaux et peut être décrit par un bilan de population (BP) permettant de prédire la granulométrie des cristaux à la sortie de l'appareil.

De manière très générale, l'équation de bilan de population peut s'écrire sous la forme :

$$\underbrace{\frac{\partial \Psi}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} + \underbrace{\vec{v} \cdot \nabla \Psi}_{\text{Convection}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial L}(G\Psi)}_{\text{Croissance}} = \underbrace{N}_{\text{Naissance}} - \underbrace{F}_{\text{Disparition}} \quad (4.1)$$

où  $\Psi$  représente une fonction de densité des particules en fonction d'une longueur caractéristique  $L$ . L'intégration de cette équation aux dérivées partielles est le plus souvent effectuée par une discrétisation en classes de longueur ainsi qu'en temps. Cette approche se révèle cependant assez coûteuse en temps de calcul (Mersmann et al., 2002, Lian et al., 2006).

Une alternative possible pour l'intégration de cette équation est d'utiliser la méthode des moments. Cette approche a l'avantage de transformer l'équation de bilan de population en un système d'équations différentielles beaucoup plus adapté à la commande.

### 4.1 La méthode des moments

Les moments sont définis par l'expression :

$$M_j = \int_0^{\infty} L^j \Psi(L, t) dL \quad (4.2)$$

Les quatre premiers moments ( $i = 0$  à 3) peuvent être interprétés physiquement : si l'on suppose par exemple que les particules sont sphériques, que  $L$  est le diamètre de la particule et que  $n$  est la densité de particules par unité de volume, le moment d'ordre zéro ( $M_0$ ) représente alors, pour une unité de volume, le nombre total de particules,  $M_1$  la somme des diamètres,  $M_2$  un nombre proportionnel à la somme de leurs surfaces et  $M_3$  à la somme de leurs volumes (Caliane Bastos Borba Costa, et al., 2007, B. Diemer et. al., 2002 a, b).

Timothy Chiu and Panagiotis D. Christofides (1999) ont utilisé la méthode de moments pour réduire l'équation de BP afin de l'implémenter dans une boucle de contrôle d'un cristalliseur continu; Dan Shi et al., (2004) ont également utilisé cette approche pour le contrôle de la distribution de taille de cristaux d'un cristalliseur en continu et/ou batch.

K. L. Choong and R. Smith (2004) ont proposé la réduction de l'équation de BP par la méthode de moments pour l'élaboration de stratégies d'optimisation de procédés de cristallisation en batch ou semi-batch.

#### 4.1.2 Transformation de l'équation de BP par la méthode des moments

Si l'on ne tient compte que de la nucléation (et donc en négligeant les phénomènes d'agglomération et de rupture), l'équation 4.1 peut être réécrite de la manière suivante :

$$\frac{\partial \Psi(L,t)}{\partial t} + \bar{v} \bar{\nabla} \Psi + \frac{\partial}{\partial L} (G\Psi) = N\delta(L - L_c) \quad (4.3)$$

où  $\delta$  est la fonction Dirac et  $L_c$  la longueur initiale de la particule lors de son apparition.

La méthode des moments consiste alors à multiplier l'équation de bilan de population par  $L^j$  et d'intégrer par la suite l'équation résultante par rapport à la longueur caractéristique  $L$  :

$$\int_0^{\infty} L^j \left( \frac{\partial \Psi(L,t)}{\partial t} + \bar{v} \bar{\nabla} \Psi + \frac{\partial}{\partial L} (G\Psi) \right) dL = \int_0^{\infty} L^j (N\delta(L - L_c)) dL \quad (4.4)$$

Détaillons chaque terme :

a. Terme d'accumulation:

Si l'on se réfère à la définition du moment d'ordre  $j$ , le terme devient :

$$\int_0^{\infty} L^j \frac{\partial \Psi(L,t)}{\partial t} dL = \frac{dM_j}{dt} \quad (4.5)$$

b. Terme de convection:

De même le terme de convection, en considérant que toutes les particules ont la même vitesse, devient :

$$\int_0^{\infty} L^j \bar{v} \bar{\nabla} \Psi dL = \bar{v} \bar{\nabla} M_j \quad (4.6)$$

c. Terme de croissance

L'intégration par partie du terme de croissance, en considérant que  $G$  est indépendant de la taille, mène à :

$$\int_0^{\infty} L^j \frac{\partial}{\partial L} (G\Psi(L,t)) dL = G[L^j \Psi]_0^{\infty} - jG \int_0^{\infty} L^{j-1} \Psi dL \quad (4.7)$$

Comme  $L^j \Psi(L) \xrightarrow{L \rightarrow \infty} 0$  et que  $L^j \Psi(L) \xrightarrow{L \rightarrow 0} 0$ , on obtient :

$$\int_0^{\infty} L^j \frac{\partial}{\partial L} (G\Psi(L, t)) dL = -jG \cdot M_{j-1} \quad (4.8)$$

d. Terme de nucléation

En tenant compte des propriétés de la fonction Dirac, l'intégration du terme de nucléation mène à :

$$\int_0^{\infty} L^j N \delta(L - L_c) dL = L_c^j N \quad (4.9)$$

Ainsi, le système d'équations final obtenu, si l'on ne considère que les quatre premiers moments, s'écrit :

$\frac{dM_0}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_0 - N = 0$ $\frac{dM_1}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_1 - GM_0 - L_c N = 0$ $\frac{dM_2}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_2 - 2GM_1 - L_c^2 N = 0$ $\frac{dM_3}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_3 - 3GM_2 - L_c^3 N = 0$	(4.10)
------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	--------

▪ *Modèle de cristallisation : hypothèses*

Les hypothèses formulées pour la modélisation du cristalliseur sont présentées ci-dessous:

1. Nous supposons que les particules de glace sont sphériques
2. Nous supposons une taille initiale  $L_c$  des cristaux lors de leur formation. Cette taille est cependant difficile à caractériser expérimentalement.
3. Les phénomènes de disparition et d'attrition sont négligés. Lors de précédentes simulations mettant en œuvre la méthode des classes pour l'intégration et le phénomène d'attrition, la prise en compte de cet effet n'a pas permis de montrer une influence significative.
4. Le phénomène d'agglomération est également négligé (Dan Shi et al., 2006).

Nous supposons ici un écoulement dans l'échangeur de type flux piston. Le schéma général est observé dans la figure 4.1 :

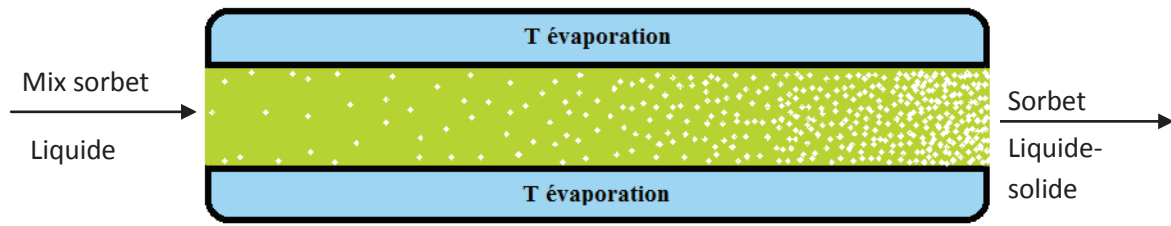


Figure 4. 1. Représentation d'un flux piston à l'intérieur de l'échangeur

▪ *Cinétiques de nucléation et de croissance des cristaux*

La vitesse de nucléation proposée est exprimée à partir de la relation 4.11.( Haddad 2009) :

$$N = \underbrace{\alpha(T_{sat} - T)^\delta}_{\text{nucléation homogène}} + \underbrace{\alpha'(T - T_e)^{\delta'}}_{\text{nucléation hétérogène}} \quad (4.11)$$

où  $\alpha$  et  $\alpha'$  sont les coefficients de vitesse de nucléation homogène et hétérogène respectivement,  $\delta$  et  $\delta'$  l'ordre des lois de nucléation,  $T_{sat}$  la température à l'équilibre thermodynamique ou température de saturation et  $T_e$  est la température de la paroi de l'échangeur.

On distingue donc ici deux catégories de nucléation : la nucléation homogène et la nucléation hétérogène. La nucléation homogène se produit spontanément en tout point de l'écoulement alors que la nucléation hétérogène ne se produit que sur la paroi de l'échangeur.

Il existe de nombreux modèles théoriques ou empiriques pour exprimer la cinétique de croissance des cristaux; la plupart s'exprime sous la forme :

$$G = K_G (C - C^*)^m \quad \text{ou} \quad G = \beta (T_{sat} - T)^\sigma \quad (4.12)$$

où  $K_G$  ou  $\beta$  sont des coefficients de vitesse de croissance des cristaux,  $m$  ou  $\sigma$  des exposants ou des ordres de cristallisation,  $C$  la concentration de glace Dans notre cas, la vitesse de croissance sera exprimée comme une fonction du sous-refroidissement de la solution.

## 4.2 Modèle stationnaire du cristalliseur

### 4.2.1 Hypothèses

Les principales hypothèses utilisées pour modéliser le cristalliseur sont présentées ci-dessous:

1. La diffusion radiale dans l'échangeur est négligée
2. La température d'évaporation ou de paroi est supposée constante sur toute la longueur de l'échangeur

## CHAPITRE 4. MODELISATION DU CRISTALLISEUR

3. On considérera ici un écoulement de type piston; en conséquence le terme de convection n'est pas utilisé dans les équations

### 4.2.2 Aspects thermiques

L'équation de bilan d'énergie pour une unité de volume dans le cristalliseur s'exprime par :

$$\frac{du}{dt} = \vec{v} \cdot \vec{\nabla} u + q_{crist} + q_{visqueux} \quad (4.13)$$

$u$  est l'énergie interne volumique; à l'équilibre, cette variable est une fonction de la température  $T$  et de la fraction de glace  $\varphi_g$ . En considérant des capacités thermiques massiques constantes par rapport à la température pour chacun des constituants, en négligeant la chaleur de mélange et en prenant comme référence  $T=0^\circ\text{C}$ , l'équation d'état est établie à partir de l'équation 1.12 :

$$u = \underbrace{\frac{\varphi_g}{\hat{V}_e}}_{\frac{\text{kg glace}}{\text{m}^3 \text{ sorbet}}} (-\Delta H_f + C_{p_g} T) + \underbrace{\frac{\varpi_0}{\hat{V}}}_{\frac{\text{kg solution}}{\text{m}^3 \text{ sorbet}}} C_{p_s} T + \underbrace{\left( \frac{1-\varpi_0}{\hat{V}} - \frac{\varphi_g}{\hat{V}_e} \right)}_{\frac{\text{kg eau (liquide)}}{\text{m}^3 \text{ sorbet}}} C_{p_e} T \quad (4.14)$$

où  $\Delta H_f$  est la chaleur latente de fusion à  $0^\circ\text{C}$  par unité de masse de l'eau,  $C_{p_g}$ ,  $C_{p_s}$  et  $C_{p_e}$  sont les capacités thermiques massiques de la glace, du soluté et de l'eau (considérées constantes en fonction de la température),  $\varpi_0$  la fraction de sucre initiale et  $\hat{V}$  et  $\hat{V}_e$  sont les volumes spécifiques de la solution et la glace respectivement.

En négligeant la différence de capacité thermique de l'eau et de la glace (ce qui revient à considérer que la chaleur de fusion est indépendante de la température), on a :

$$u = \frac{\varphi_g}{\hat{V}_e} (-\Delta H_f) + \left( \frac{\varpi_0 C_{p_s} + (1-\varpi_0) C_{p_e}}{\hat{V}} \right) T \quad (4.15)$$

On peut ainsi obtenir une équation explicite de la température en fonction de  $u$  et  $\varphi_g$  de la forme:

$$T = a \cdot u + b \cdot \nabla \varphi_g \quad (4.16)$$

où

$$a = \frac{1}{\rho(\varpi_0 \cdot Cp_s + (1 - \varpi_0) \cdot Cp_e)} \quad (4.17)$$

et

$$b = \frac{\Delta H_f \cdot \rho_e}{\rho_s(\varpi_0 \cdot Cp_s + (1 - \varpi_0) \cdot Cp_e)} \quad (4.18)$$

Dans l'équation 4.13, le terme  $q_{crist}$  représente le flux de chaleur traversant la paroi du cristalliseur:

$$q_{crist} = PS \cdot U(T_e - T) \quad (4.19)$$

où  $U$  est le coefficient global de transfert de chaleur,  $T_e$  la température de paroi, que l'on considérera égale à la température d'évaporation (on néglige donc la résistance de conduction de la paroi) et  $PS$  la surface d'échange par unité de volume, obtenue à partir de:

$$PS = \frac{Surface_{echange}}{Volume_{cristalliseur}} = \frac{2\pi r_e L_{ech}}{\pi(r_e^2 - r_i^2)L_{ech}} = \frac{2r_e}{(r_e^2 - r_i^2)} \quad (4.20)$$

où  $r_e$  le rayon de l'échangeur,  $r_i$  le rayon équivalent du racleur et  $L_{ech}$  la longueur de l'échangeur.

Le terme  $q_{visqueux}$  de l'équation 4.13 représente la production de chaleur provoquée par la dissipation visqueuse. On utilise ici un modèle largement utilisé dans la littérature pour des équipements mettant en œuvre une vitesse d'agitation ou de cisaillement (Lian et al., 2006, Steefy 1996, Choulak et al., 2004):

$$q_{visqueux} = \mu \dot{\gamma}^2 \quad et \quad \dot{\gamma} = \chi \cdot 2\pi \dot{N} \quad (4.21)$$

où  $\mu$  est la viscosité de l'écoulement,  $\dot{\gamma}$  la vitesse de cisaillement,  $\chi$  un coefficient d'ajustement et  $\dot{N}$  la vitesse de rotation du racleur. La viscosité de l'écoulement a été évaluée à partir de la relation de Thomas (1965) citée par Haddad (2009). Cette relation utilise la viscosité de la solution non congelée ( $\mu_s = f(T, C_s, \dot{\gamma})$ , voir l'expression du modèle dans la partie résultats de l'étude rhéologique), la fraction volumétrique de glace  $\varphi_g$  et un facteur de correction  $\Gamma$ :



$$\mu = \mu_s \left( 1 + 2,5\varphi_g + 10,5\varphi_g^2 + \Gamma \cdot 0.00273 \exp(16,6\varphi_g) \right) \quad (4.22)$$

Le système d'équations résultant du modèle de cristalliseur est un système de 5 équations différentielles et d'une équation algébrique présenté ci-dessous:

$$\begin{array}{l} T = a \cdot u + b \cdot \frac{\pi}{6} M_3 \\ \frac{du}{dt} = U \cdot PS(T_e - T) + \mu \dot{\gamma}^2 \\ \frac{dM_0}{dt} - N = 0 \\ \frac{dM_1}{dt} - GM_0 - L_c N = 0 \\ \frac{dM_2}{dt} - 2GM_1 - L_c^2 N = 0 \\ \frac{dM_3}{dt} - 3GM_2 - L_c^3 N = 0 \end{array} \quad (4.23)$$

Le tableau 4.1 récapitule parmi les différentes variables intervenant dans ce système d'équation, les variables d'état du modèle, les paramètres fixés par rapport à la littérature et les paramètres à identifier par l'expérimentation:

**Tableau 4. 1.** Liste des paramètres et variables du modèle stationnaire

Description	Variables ou paramètres
Variables d'état	$M_0, M_1, M_2, M_3$ et $u$
Paramètres à identifier	$\chi, \Gamma$ et $U$
Paramètres fixés d'après la littérature ou par des expériences antérieures	$\alpha = 0, \alpha' = 7,6 \times 10^8$ $\delta = 1, \delta' = 2$ $\beta = 5 \times 10^{-7}, \sigma = 1$ $L_c = 5 \times 10^{-6}$

Les équations différentielles sont intégrées en utilisant une méthode de Runge Kutta à pas variables (ODE45 dans Matlab). Cette intégration est effectuée sur une période correspondant au temps de séjour moyen du mix dans l'ECSR. Ce modèle, bien que défini à partir d'équations différentielles, est donc un modèle en régime stationnaire du procédé.

### 4.3 Construction du modèle dynamique

Un des objectifs de cette thèse est l'étude de la dynamique du procédé de fabrication du sorbet. Cet objectif nécessite de développer un modèle en régime transitoire basés sur les

## CHAPITRE 4. MODELISATION DU CRISTALLISEUR

bilans d'énergie des différents éléments intervenant dans l'appareil, le bilan de particules (par la méthode des moments) et un modèle de la machine productrice de froid.

### 4.3.1 Bilan d'énergie du racleur:

L'écriture de ce bilan d'énergie et son introduction dans le modèle permet de prendre en compte l'inertie thermique de la masse métallique que constitue le racleur. Nous ne considérerons dans cette équation que l'échange par convection avec le produit.

$$\begin{aligned}
 Cp_r \frac{m_r}{n_r} \frac{dTr_1}{dt} &= h_r s_r (T_1 - Tr_1) \\
 \vdots & \\
 Cp_r \frac{m_r}{n_r} \frac{dTr_j}{dt} &= h_r s_r (T_j - Tr_j) \\
 \vdots & \\
 Cp_r \frac{m_r}{n_r} \frac{dTr_n}{dt} &= h_r s_r (T_n - Tr_n)
 \end{aligned} \tag{4.28}$$

où  $m_r$  est la masse totale du rotor,  $s_r$  la surface d'échange entre le produit et le rotor,  $Cp_r$  la capacité calorifique du matériel du racleur (inox), les indices 1, j et n faisant référence aux compartiments.

### 4.3.2 Bilan d'énergie pour la paroi d'échange (évaporateur):

Ce bilan d'énergie permet de prendre en compte l'inertie thermique de la paroi de l'échangeur. Cette paroi permet de transmettre la chaleur entre le fluide frigorigène en ébullition et le produit qui cristallise:

$$Cp_{met} \frac{m_{met}}{n_r} \frac{dTp_j}{dt} = \frac{h_e \cdot s_e}{n_r} (T_j - Tp_j) + Q_j^{frigo} \tag{4.29}$$

où , la chaleur sensible  $m_{met}$  est la masse métallique de l'évaporateur,  $s_e$  la surface d'échange,  $Cp_{met}$  la capacité calorifique du matériau de l'évaporateur,  $Tp_j$  est la température de paroi du réacteur j et  $Q_j^{frigo}$  est la puissance frigorifique échangée pour le réacteur j

Le bilan d'énergie du frigorigène pour chaque réacteur j s'exprime :

$$Q_j^{frigo} = h_{eb} (Tp_j - T_e) \tag{4.30}$$

où  $h_{eb}$  est le coefficient de transfert en ébullition pour le réfrigérant

## CHAPITRE 4. MODELISATION DU CRISTALLISEUR

La puissance frigorifique totale  $Q_{frigo}$  et la température d'évaporation  $T_e$  sont couplées à la puissance frigorifique dans chaque réacteur par :

$$Q_{frigo} = \sum_{j=1}^n Q_j^{frigo} = \dot{m}(h_{sc} - h_{asp}) \quad (4.31)$$

### 4.3.3 Bilans de masse et d'énergie pour le compresseur :

Le bilan de masse du fluide frigorigène traversant le compresseur s'écrit :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{ref} &= \dot{m}_{asp} \\ \text{ou} \\ \dot{m} &= \frac{VC}{60} V_{cyl} \rho_{asp} \eta_V \end{aligned} \quad (4.32)$$

où  $\dot{m}_{ref}$  et  $\dot{m}_{asp}$  sont les débits de refoulement et d'aspiration du compresseur, VC est la vitesse du compresseur,  $V_{cyl}$  est la cylindrée,  $\rho_{asp}$  est la masse volumique du gaz à l'aspiration et  $\eta_V$  est le rendement volumétrique.

La modélisation du phénomène de compression est basé sur l'hypothèse d'une compression non-isentropique (Leducq 2004). Une compression isentropique (l'entropie est conservée entre l'aspiration et le refoulement) s'exprime par :

$$\begin{cases} s_{chbf} = s(P_{asp}, T_{chbf}) \\ s_{refcylis} = (P_{ref}, T_{refcylis}) \\ s_{chbf} = s_{refcylis} \end{cases} \quad (4.33)$$

La variation d'enthalpie réelle est exprimée à partir du travail de compression isentropique et du rendement isentropique  $\eta_{is}$  :

$$h_{refcyl} = h_{asp} + \frac{1}{\eta_{is}} (h_{refcylis} - h_{asp}) \quad (4.34)$$

Afin de tenir compte de l'inertie de la masse de métal du compresseur et son influence sur la température de refoulement à la sortie du compresseur, on propose d'introduire une variable d'état  $T_{ref}$  représentant la température de refoulement et une équation différentielle donnée par :

$$\frac{dT_{ref}}{dt} = I_{comp} (T_{ref} - T_{refcyl}) \quad (4.35)$$

## CHAPITRE 4. MODELISATION DU CRISTALLISEUR

où  $I_{comp}$  est un paramètre d'inertie dépendant de l'intensité de l'échange thermique entre le fluide frigorigène et la masse métallique du compresseur. Ce paramètre est difficile à évaluer précisément et sera déterminé expérimentalement.

La puissance de compression réelle et la puissance électrique consommée par le moteur sont exprimées par :

$$W_{comp} = \dot{m}(h_{ref} - h_{asp}) \quad (4.36)$$

et

$$W_{elec} = \frac{W_{comp}}{\eta_{elec}} \quad (4.37)$$

- *Bilan d'énergie du condenseur*

Nous négligerons ici le comportement dynamique du condenseur. La pression de condensation étant régulée par une vanne modulant le débit d'eau de refroidissement, nous supposons cette régulation parfaite et la température de condensation stabilisée. En considérant que le frigorigène sort à l'état liquide saturé, on peut donc exprimer l'enthalpie du frigorigène à la sortie du condenseur par :

$$h_{sc} = h_{liq}(T_c) \quad (4.38)$$

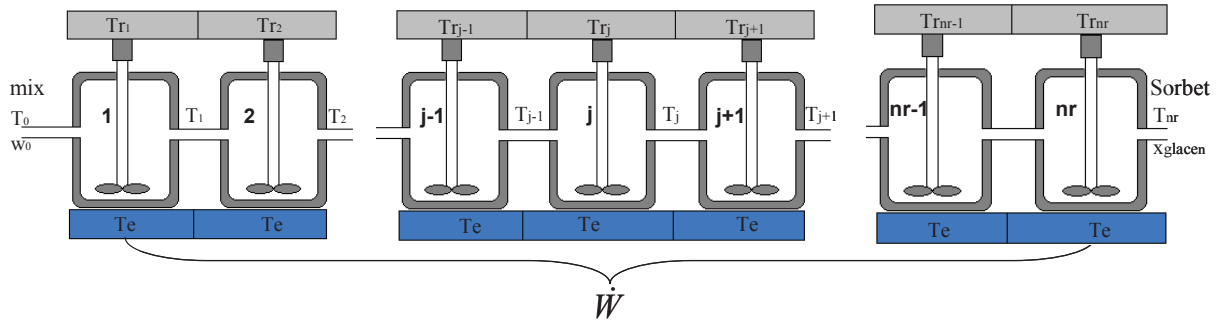
où  $h_{liq}$  est obtenue d'après les propriétés thermodynamiques du frigorigène.

### 4.3.4 Modèle dynamique du cristalliseur

La mise en œuvre du contrôle d'un procédé nécessite l'établissement d'un modèle dynamique du système. Ce modèle peut être empirique, en supposant par exemple que le comportement du système est linéaire. Dans ce cas, les méthodes issues de l'automatique permettent d'identifier un modèle par l'expérience. Les paramètres d'un tel modèle n'ont cependant aucune signification physique, et le modèle n'est pas facilement transposable à un système similaire.

Une approche alternative est de recourir à un modèle physique du système, faisant intervenir cette fois des paramètres physiques. Nous avons adopté cette démarche pour établir le modèle dynamique du procédé de cristallisation. Le comportement dynamique du système dépend en particulier du type de l'écoulement : écoulement de type piston, système se comportant comme une succession de réacteurs en cascade, etc. Afin de caractériser le type d'écoulement, une approche classique du génie des procédés consiste à procéder à une mesure de la distribution des temps de séjour du produit dans l'appareil.

L'étude de la distribution de temps de séjour a été réalisée dans notre cas par Arellano et al., 2011 et est présentée dans l'annexe B. Les résultats de cette analyse suggèrent que le comportement dynamique de l'échangeur est proche d'une cascade de réacteur agités connectés en série (figure 4.2). Le nombre de réacteurs à mettre en œuvre a également été obtenu à partir de la caractérisation expérimentale de l'écoulement par la méthodologie de distribution de temps de séjour (DTS).



**Figure 4. 2.** Représentation d'une cascade des réacteurs agités pour modéliser l'écoulement pendant la production de la glace dans un ECSR

- Hypothèses

Les principales hypothèses pour le modèle dynamique sont:

1. La diffusion radiale est négligée.
2. La température d'évaporation est supposée indépendante de la position. La température de paroi varie par contre en fonction de la position
3. Les réacteurs sont considérés comme remplis à l'instant zéro.
4. Les expériences et résultats du modèle sont obtenus sans incorporation d'air

- Bilan d'énergie pour le produit : formulation en régime transitoire

L'équation de bilan d'énergie pour un volume unitaire de produit peut être écrite sous la forme:

$$\frac{du}{dt} = \vec{v} \cdot \vec{\nabla} u + q_{paroi} + q_{visqueux} + q_{racleur} \quad (4.39)$$

Où  $q_{paroi}$  est la puissance échangée à la paroi de l'évaporateur,  $q_{visqueux}$  la puissance générée par dissipation visqueuse et  $q_{racleur}$  la puissance échangée avec le rotor.

Ainsi, pour les  $n$  réacteurs, le système d'équations obtenu s'exprime par :

$$\begin{aligned}
 \frac{du_1}{dt} &= \bar{v}(u_0 - u_1) + U \cdot PS(Tp_j - T_1) + \mu\dot{\gamma}^2 + h_r PS'(Tr_1 - T_1) \\
 &\vdots \\
 \frac{du_j}{dt} &= \bar{v}(u_{j-1} - u_j) + U \cdot PS(Tp_j - T_j) + \mu\dot{\gamma}^2 + h_r PS'(Tr_j - T_j) \\
 &\vdots \\
 \frac{du_n}{dt} &= \bar{v}(u_{n-1} - u_n) + U \cdot PS(Tp_j - T_n) + \mu\dot{\gamma}^2 + h_r PS'(Tr_n - T_n)
 \end{aligned} \tag{4.40}$$

où  $h_r$  est le coefficient de transfert de chaleur du coté produit,  $T_j$  et  $Tp_j$  sont la température du produit et de la paroi dans l'élément  $j$ ,  $Tr_j$  la température du racleur dans chaque réacteur et  $n$  est le nombre des réacteurs en cascade. L'énergie interne du fluide à l'entrée est calculée par :

$u_0 = \frac{T_0}{a}$  si l'on considère que la température  $T_0$  est très supérieure à la température de congélation commençante. La température  $T_n$  est considérée comme la température de sortie du produit.

$PS'$  est le rapport entre la surface du rotor échangeant avec le produit et le volume interne de l'échangeur :

$$PS' = \frac{2r_i}{(r_e^2 - r_i^2)} \tag{4.41}$$

Le coefficient de transfert de chaleur ( $h_r$ ) entre le mix et le racleur a été calculé à partir de l'équation proposée par Qin (2006,2009), pour le cas du changement de phase :

$$h_r = k_i \Delta H_f + \theta \left( \frac{\lambda_s \rho_s C_{p_s} \dot{N} \cdot N_{blades}}{15\pi} \right)^{1/2} \tag{4.42}$$

où  $k_i$  est la vitesse de formation de glace sur la surface,  $\theta$  est le rapport entre la surface occupée par la glace et la surface totale de l'ECSR,  $n$  est le nombre de lames,  $VR$  est la vitesse de rotation,  $C_{p_s}$ ,  $\rho_s$  et  $\lambda_s$  sont la capacité calorifique, la masse volumique et la conductivité thermique du mix sorbet respectivement.

Les facteurs  $k_i$  et  $\theta$  sont calculés par :

$$\begin{aligned}
 ki &= \dot{m}_{mix} \frac{x_g}{S_T \cdot T} \\
 \theta &= \frac{S_{sg}}{S_T}
 \end{aligned}
 \tag{4.43}$$

où  $\dot{m}_{mix}$  est le débit du mix,  $x_g$  la fraction de glace,  $S_T$  est la surface totale de l'échangeur,  $T$  la température et  $S_g$  la surface libre de glace.

▪ *Système final d'équations*

Le modèle final s'obtient en couplant le modèle thermique et le modèle des moments. On obtient alors un système de  $7 \cdot n$  équations différentielles,  $n$  étant le nombre de réacteurs.

$$\begin{aligned}
 T_j &= a \cdot u + b \cdot \frac{\pi}{6} M_3^j \\
 \dot{Q}_j^f &= h_{eb} (Tp_j - T_e) \\
 \frac{du_j}{dt} &= \bar{v} \bar{\nabla} u + U \cdot PS (Tp_j - T_j) + \mu \dot{\gamma}^2 + \frac{h_r}{r_i} (Tr_j - T_j) \\
 Cp_r \frac{Mr}{n_r} \frac{dTr_j}{dt} &= h_r s_r (T_j - Tr_j) \\
 Cp_{evap} \frac{M_{evap}}{n_r} \frac{dTp_j}{dt} &= h_e \cdot s_e (T_j - Tp_j) + \dot{Q}_j^f \\
 \frac{dM_{0,j}}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_{0,j} - N &= 0 \\
 \frac{dM_{1,j}}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_{1,j} - GM_{0,j} - L_c N_j &= 0 \\
 \frac{dM_{2,j}}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_{2,j} - 2GM_{1,j} - L_c^2 N_j &= 0 \\
 \frac{dM_{3,j}}{dt} + \bar{v} \bar{\nabla} M_{3,j} - 3GM_{2,j} - L_c^3 B_j &= 0 \\
 \frac{dT_{ref}}{dt} &= I_{comp} (T_{ref} - T_{refcyl})
 \end{aligned}
 \tag{4.44}$$

Le tableau 4.2 présente les variables d'état du modèle, les paramètres fixés d'après la littérature et les paramètres à estimer:

**Tableau 4. 2.** Paramètres et variables pour le modèle dynamique

<b>Description</b>	<b>Variables ou paramètres</b>
Variables d'état	$n_r^*$ ( $M_0, M_1, M_2, M_3, u$ ) $Te, Tr, Tp$
Paramètres à estimer	$\chi, \Gamma$ et $U, h_r, n_r$
Paramètres fixés par littérature ou expériences antérieures	$\alpha = 0, \alpha' = 7,6 \times 10^8$ $\delta = 1, \delta' = 2$ $\beta = 5 \times 10^{-7}, \sigma = 1$ $L_c = 5 \times 10^{-6}$

#### 4.4 Conclusion de la modélisation de la cristallisation de la crème glacée

Ce chapitre a présenté des modèles stationnaire et dynamique pour notre cas d'étude de cristallisation. Le modèle stationnaire a permis notamment de caractériser expérimentalement les paramètres mal connus du modèle. Dans un deuxième temps le modèle dynamique a été construit par extension du modèle stationnaire, en prenant en compte l'évolution par rapport au temps du procédé de cristallisation. Ce dernier modèle est basé sur une structure de cascade de réacteurs en série, le nombre de réacteurs ayant été déterminé par une caractérisation expérimentale de distribution de temps de séjour.

#### 4.5 Validation du modèle

Un modèle dynamique du procédé de cristallisation a été développé et présenté dans le chapitre II. La validation de ce modèle a été réalisée en deux étapes. La première étape a consisté à valider le comportement en régime établi à partir des mesures expérimentales de taille de cristaux, de température de sortie et de consommation énergétique. La deuxième étape a consisté à valider le comportement en régime transitoire à partir de variations en échelon des variables de contrôle ou de variables de perturbations.

##### 4.5.1 Régime stationnaire

Les paramètres du modèle utilisés lors de la validation sont présentés dans le tableau 4.3.

**Tableau 4. 3.** Paramètres du modèle

<b>Paramètre</b>	<b>U</b> [W/m <sup>2</sup> -C]	<b><math>\alpha</math></b> [s <sup>-1</sup> m <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup> ]	<b><math>\alpha'</math></b> [s <sup>-1</sup> m <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> ]	<b><math>\beta</math></b> [m s <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]	<b><math>\Delta</math></b>	<b><math>\delta'</math></b>	<b><math>\Gamma</math></b>	<b><math>L_c</math></b> [ $\mu$ m]
Valeur	2400	0	$7,6 \times 10^8$	$5 \times 10^{-7}$	1	2	1	5



La figure 4.3 présente la comparaison entre la température de sortie expérimentale la température simulée. On observe une erreur maximale de 15 % pour les points plus éloignés de la première bissectrice de la courbe.

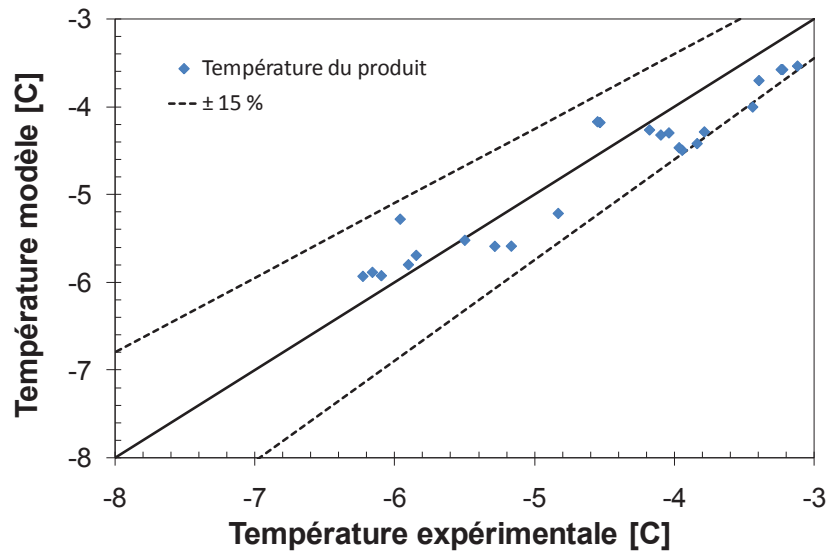


Figure 4. 3. Comparaison entre les valeurs de la température de sortie du produit expérimentale et simulée

De la même manière, on a comparé les valeurs expérimentales et simulées pour la taille moyenne de corde. Cette comparaison est présentée dans la figure 4.4. L'erreur maximale est de l'ordre de 15 %.

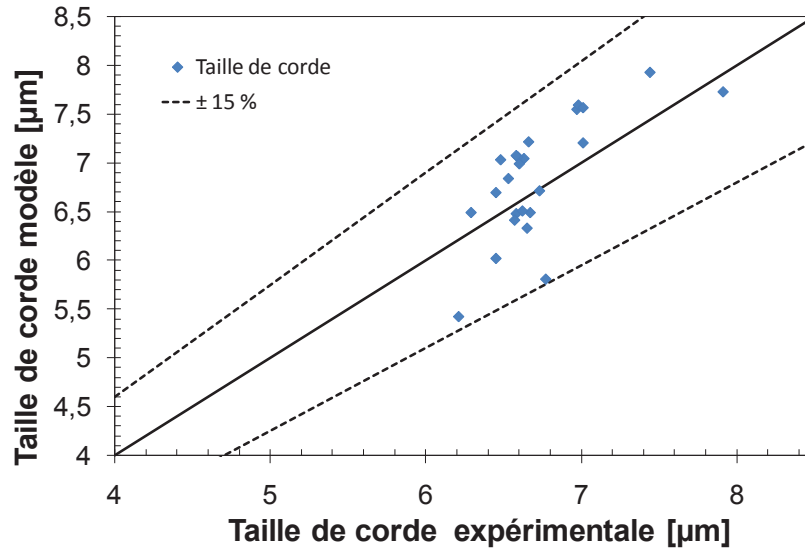


Figure 4. 4. Comparaison entre les valeurs de la taille de corde expérimentale et simulée

Enfin, la figure 4.5 présente l'influence du débit de produit sur la température du débit et la comparaison entre valeurs expérimentales et simulées.

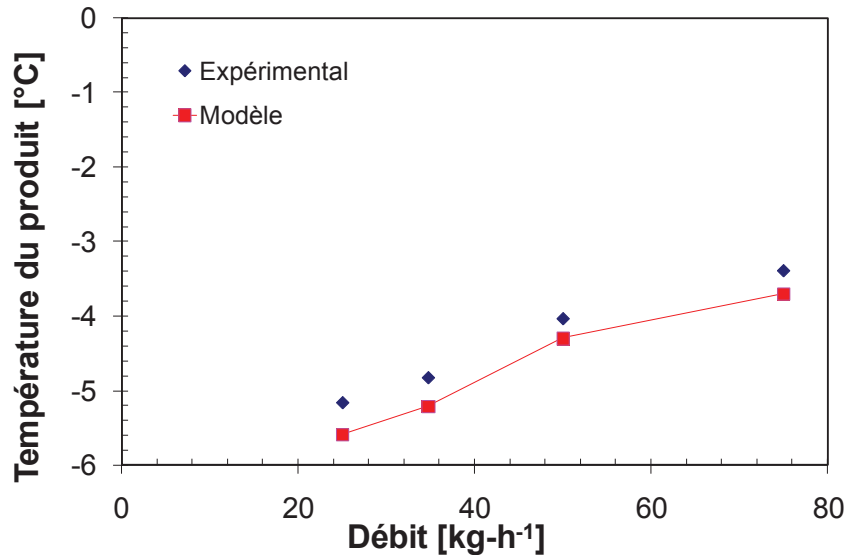


Figure 4. 5. Modélisation de l'influence du débit sur la température. Comparaison modèle-expérience. Température d'évaporation -15,3 °C, vitesse du racleur 750 tr-min<sup>-1</sup>.

La figure 4.6 montre que la prédiction de la taille de corde par le modèle est également proche des valeurs expérimentales.

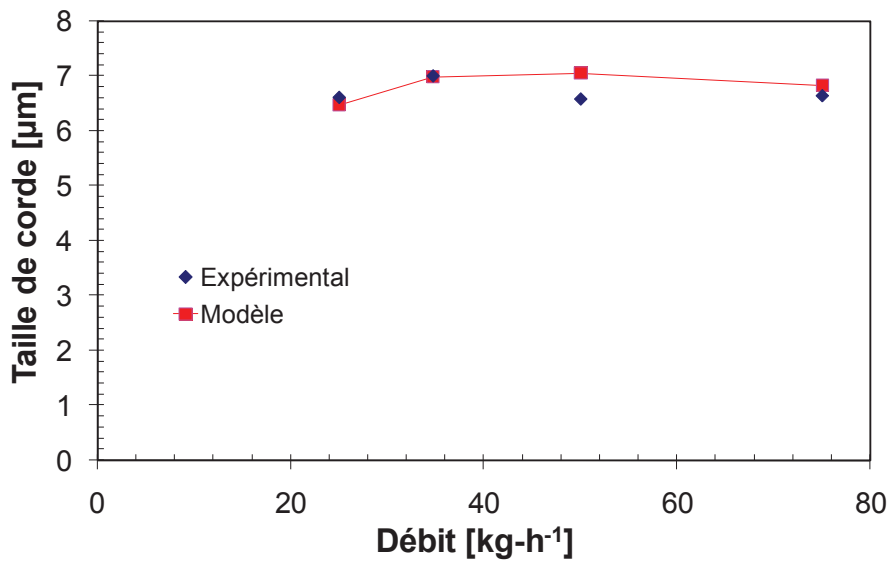


Figure 4. 6. Modélisation de l'influence du débit sur la taille de corde. Comparaison modèle-expérience. Température d'évaporation -15,3 °C, vitesse du racleur 750 tr-min<sup>-1</sup>.

#### 4.5.2 Régime transitoire

Le modèle dynamique est basé sur l'hypothèse que le comportement de l'écoulement est comparable au comportement d'une cascade des réacteurs. Cette hypothèse a été établie suite à la caractérisation des temps de séjour dans l'échangeur et le nombre de réacteurs permettant une représentation optimale du comportement dynamique a été fixé à 12 (voir annexe B).

Le modèle dynamique est constitué du système d'équations 4.44. Dans ce modèle, l'inertie des parties métalliques de l'évaporateur et du racleur est prise en compte (W, figure 4.3). Afin de

## CHAPITRE 4. MODELISATION DU CRISTALLISEUR

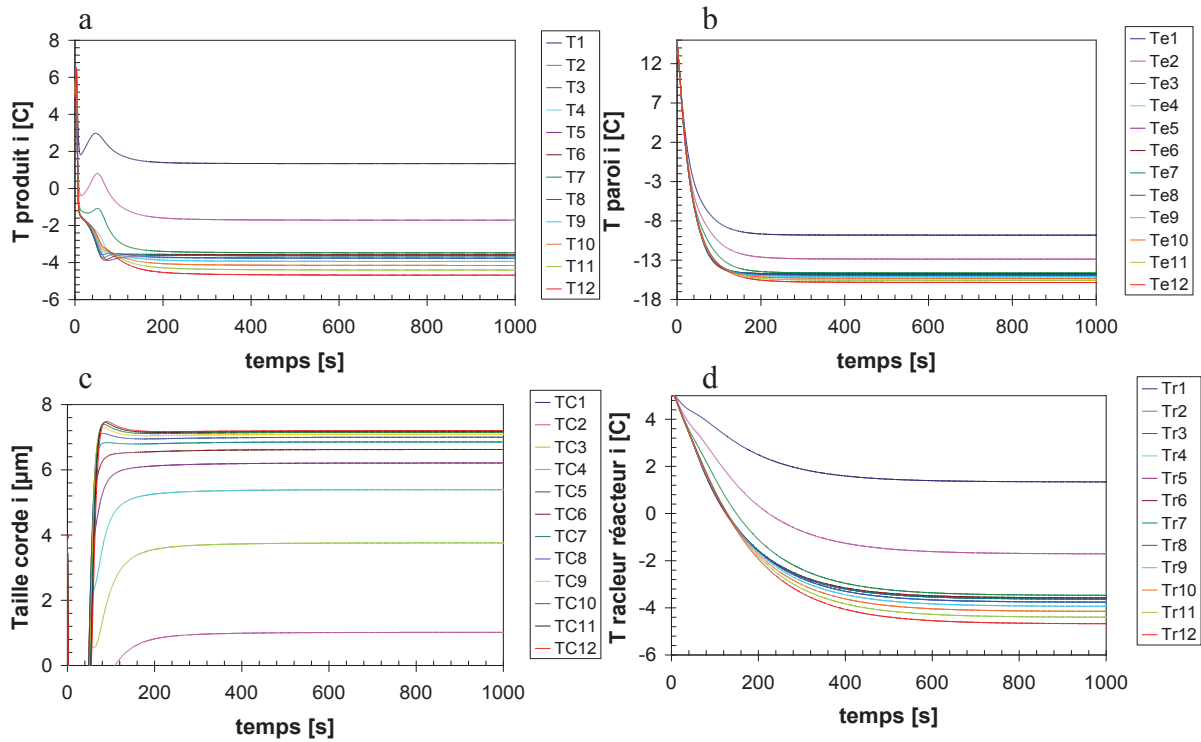
résoudre ce système d'équations, le tableau 4.4 montre un récapitulatif de la mesure de température du produit et des calculs faits pour la détermination du coefficient individuel de transfert de chaleur entre les parties métalliques du racleur et le mix.

**Tableau 4. 4.** Résultats pour le calcul du coefficient individuel de transfert de chaleur

<b>Débit</b> [Kg-h <sup>-1</sup> ]	<b>VR</b> [tr-min <sup>-1</sup> ]	<b>VC</b> [tr-min <sup>-1</sup> ]	<b>T produit</b> [C]	<b>k<sub>i</sub> 10<sup>4</sup></b> [kg-s <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]	<b>θ</b>	<b>h<sub>r</sub></b> [W-m <sup>2</sup> K <sup>-1</sup> ]
25	652	1025	-6.58 ± 0.01	1,602	0,149	190,2
35	860	750	-4.76 ± 0.05	1,648	0,152	215,6
35	445	750	-5.27 ± 0.03	1,847	0,144	171,4
35	860	1300	-6.11 ± 0.02	2,114	0,132	210,0
35	445	1300	-6.88 ± 0.04	2,318	0,126	172,9
50	652	1025	-5.15 ± 0.03	2,573	0,167	239,3
50	652	1487	-5.94 ± 0.07	2,952	0,129	217,1
50	652	562	-3.92 ± 0.04	1,734	0,191	234,1
50	652	1025	-5.37 ± 0.03	2,689	0,132	211,5
50	1000	1025	-5.01 ± 0.04	2,500	0,139	242,3
50	303,5	1025	-5.44 ± 0.02	2,725	0,134	174,8
50	653	1025	-5.17 ± 0.04	2,584	0,145	219,9
65	860	1300	-4.83 ± 0.03	3,116	0,139	251,3
65	445	1300	-5.04 ± 0.05	3,273	0,131	209,0
65	445	750	-3.98 ± 0.02	2,323	0,179	214,0
65	860	750	-3.81 ± 0.05	2,120	0,198	280,7
75	653	1025	-4.14 ± 0.04	2,881	0,176	259,0

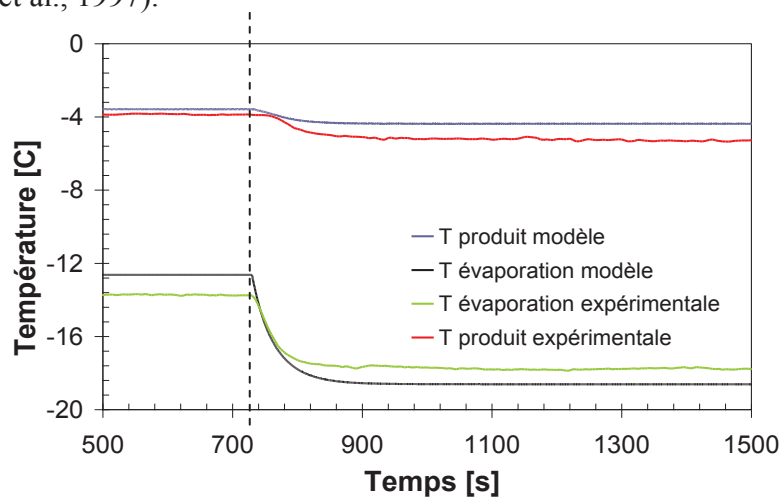
Les valeurs du coefficient  $h_r$  sont comprises entre 171 et 281 avec une moyenne de 218 W-m<sup>2</sup>K<sup>-1</sup>, valeur utilisée dans le modèle.

La figure 4.7 présente l'évolution de la température du produit, de la température de la paroi, de la taille moyenne de corde et de la température du racleur pour chaque réacteur suite à un démarrage de l'échangeur. Sur les figures 4.7a et 4.7c nous observons des déviations des courbes. Dans le deux cas ces déviations peuvent être dues à une erreur numérique ou au phénomène de fusion et disparition de cristaux au début du procédé.



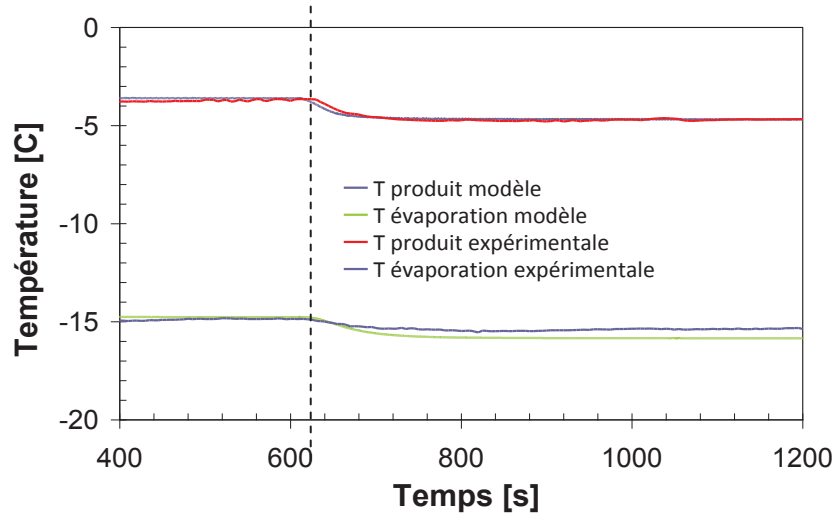
**Figure 4. 7.** Dynamique du système simulé à partir du modèle de 12 réacteurs en cascades. Conditions opératoires: Débit  $35 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$ , VR  $860 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  et VC  $750 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ . a) Température du produit; b) Température de paroi; c) Taille moyenne de corde; d) Température du racleur

La figure 4.8 présente l'évolution de la température d'évaporation et de la température du produit lors d'une variation en échelon de la vitesse du compresseur. On remarque expérimentalement une variation immédiate de la température d'évaporation, et une variation plus tardive de la température du produit. Ce retard constaté expérimentalement n'apparaît pas lors de la simulation car la température du produit dans le dernier réacteur est immédiatement affectée par la variation de la température d'évaporation. Ce retard est probablement dû à la présence de recirculations du produit à l'intérieur de l'ECSR provoquées par les lames du racleur (Russell et al., 1997).



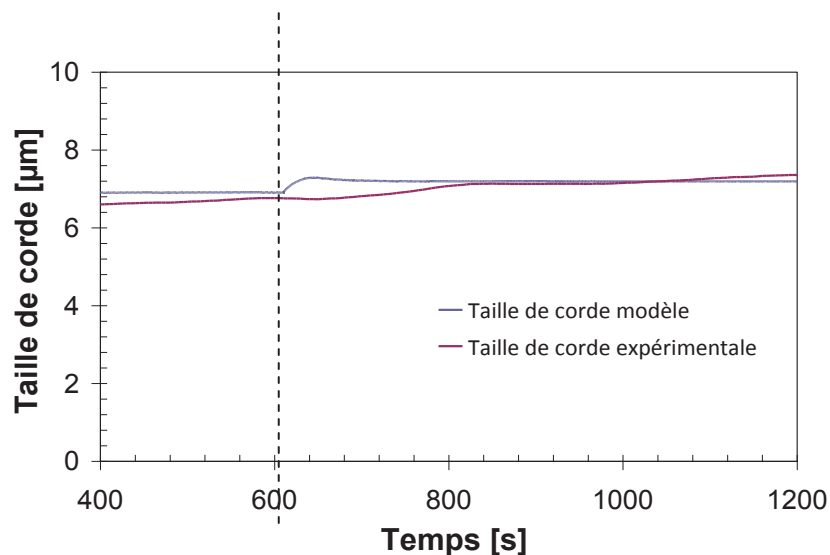
**Figure 4. 8.** Effet du changement de la vitesse du compresseur de  $562$  à  $1025 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  sur les températures du système. Débit de mix  $50 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$  et vitesse du racleur  $652 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ . Changement de vitesse du compresseur au  $730$  s.

La figure 4.9 présente l'évolution de la température d'évaporation et de la température du produit lors d'une réduction de débit. Le temps de séjour augmentant lorsque le débit est réduit, la température du produit à la sortie de l'échangeur diminue. On constate que les allures des courbes expérimentales et simulées sont très similaires. En particulier, les temps de réponse sont bien prédits ici par le modèle.



**Figure 4. 9.** Effet du changement du débit de 65 à 35 kg-h<sup>-1</sup> sur les températures du système. Vitesse du compresseur et du racleur 750 et 860 tr-min<sup>-1</sup> respectivement. Changement du débit au 610 s.

Lors d'une réduction du débit de mix sans modification de la température d'évaporation, le temps de séjour du produit à l'intérieur de l'échangeur augmente comme on l'attendait, ce qui tend à augmenter la fraction de glace et la taille moyenne des particules. Ce phénomène est détectable en mesure, mais apparaît lent. Le modèle prédit lui une variation plus rapide de la taille moyenne, tel que présenté dans la figure 4.10. Le temps de réponse du capteur étant de 17 secondes, explique le retard observé.



**Figure 4. 10.** Effet du changement du débit de 65 à 35 kg-h<sup>-1</sup> sur la taille moyenne de cordes. Vitesse du compresseur et du racleur 750 et 860 tr-min<sup>-1</sup> respectivement.

### 4.5.3 Conclusion de la modélisation

Le modèle développé a été validé (sans ajustement de paramètres) en régime stationnaire et en régime transitoire en comparant les valeurs simulées aux données expérimentales. L'erreur maximum observée lors de cette validation est de l'ordre de 15 %.

La validation du modèle en régime stationnaire a montré que le modèle est capable de reproduire l'influence des variables de contrôle du procédé sur les propriétés de sortie du sorbet (température et taille moyenne de corde).

En régime transitoire, la validation a montré que l'interaction entre la matière en transformation, les parties métalliques et l'inertie qui en résulte devaient être prise en compte dans le modèle dynamique. Lorsque l'inertie de ces parties métalliques est prise en compte, l'évolution temporelle des propriétés du produit en réponse à des variations des variables de contrôle est reproduite de manière satisfaisante par le modèle.

### 4.6 Perspectives pour le contrôle du "Freezer"

La caractérisation du mix, du produit et de la machine frigorifique, le développement d'un modèle et sa validation sont les premières étapes essentielles du développement d'un contrôleur de ce procédé. Avec le développement et la mise en œuvre dans le projet CAFE de capteurs innovants de taille moyenne de cristaux, de viscosité en ligne et de fraction de glace, une commande avancée de ce procédé en boucle fermée permettant la maîtrise de la qualité, mais aussi optimisant l'efficacité énergétique peut désormais être envisagée.

### CONCLUSION

L'étude présentée ici consiste en une approche expérimentale et théorique de la cristallisation de crème glacée et sorbet en échangeur à surface raclée. Fondée sur une analyse de la bibliographie portant sur la mise en œuvre de la cristallisation dans des secteurs industriels variés, le travail conduit a privilégié deux approches.

- Une approche expérimentale consistant en l'étude et la caractérisation du procédé, avec l'utilisation d'un mix modèle sans air ;
- Une approche de modélisation de la cristallisation et sa mise en œuvre numérique et comparée aux résultats expérimentaux.

La caractérisation du mix dans cette étude a consisté à caractériser le comportement rhéologique et thermique du produit. Les résultats ont permis de développer un modèle validé pour la prédiction de la viscosité apparente du mix pendant sa transformation.

Par ailleurs, la caractérisation thermique du mix a été effectuée à l'aide de la technique de microcalorimétrie DSC. L'analyse des propriétés thermiques a été réalisée en concentrant le mix afin d'avoir une gamme de différentes concentrations de solides en solution. L'ensemble expérimental a notamment à l'établissement de la courbe de saturation ou "liquidus".

A partir du pilote et des capteurs mis en œuvre il a été possible de caractériser le comportement de la machine frigorifique, du procédé ainsi que les caractéristiques principales du produit avant, au cours et après la transformation

En particulier l'utilisation d'un capteur pour caractériser en ligne la taille des cordes des cristaux de glace dans produit est originale. Il s'agit ici d'un capteur "Focus Beam Reflectance measurements", qui a montré sa capacité à mesurer en ligne la distribution de tailles de cordes caractéristiques de la taille des cristaux. Un plan d'expériences a permis de caractériser l'influence des paramètres du procédé sur les principales propriétés du sorbet citron. Les conditions opératoires testées ici sont le débit de mix, la vitesse de rotation du racleur et la température d'évaporation du frigorigène. Il a été en particulier montré que la taille des cordes diminue avec une température de paroi faible, un débit élevé et une vitesse du racleur élevée. Ces tendances sont principalement liées aux phénomènes de nucléation et de croissance.

Le plan d'expérience a également permis de montrer que l'efficacité énergétique du procédé augmente quand la température du produit est basse, le débit est élevé et la vitesse de racleur est faible.

Les résultats ont également permis de montrer que la taille des cristaux est réduite lorsque l'on augmente le débit de mix, la vitesse du racleur et que l'on diminue la température d'évaporation.

## CONCLUSION

Des pistes d'optimisation énergétique ont été proposées. En particulier, un dispositif mettant en œuvre la vitesse variable du compresseur a été évalué. Une réduction de la consommation d'énergie moyenne de 40 % a ainsi été obtenue.

Une fonction objective d'efficacité énergétique a également été proposée. Cette fonction est le rapport entre l'énergie totale fournie à la machine et la masse de glace produit par seconde. Cette fonction a été évaluée pour les deux plans d'expérience déjà discutés; le recours à cette fonction (qui ne considère que l'aspect énergétique) mène ainsi à préconiser des débits de mix élevés, des températures d'évaporation faibles et des vitesses de racleur faibles.

Des contraintes sont néanmoins à prendre en compte en particulier une fraction massique de glace minimum ; une taille moyenne de corde maximum et une viscosité à ne pas dépasser.

Un modèle de cristallisation basé sur l'équation de bilan population et appliquant la méthode des moments a été développé. Un modèle du procédé a été construit en couplant le modèle de cristallisation, les équations décrivant les transferts thermiques à l'intérieur de l'échangeur et un modèle de l'installation frigorifique. Ce modèle, qui permet de déterminer l'impact de changements des conditions opératoires, a été validé à partir de valeurs expérimentales. Une erreur maximale de 15 % pour la température et la taille moyenne de cordes en régime établi a été observée.

Ce modèle permet également de simuler les régimes transitoires. A partir de l'analyse de la distribution de temps de séjour (DTS), une structure de cascade de réacteurs agités connectés en série a été retenue. Le modèle est ainsi composé de 12 réacteurs liés entre eux par une fonction de convection. Ce modèle du procédé est couplé à un modèle simplifié de l'installation frigorifique afin de déterminer la température d'évaporation et la puissance électrique consommée en fonction des conditions opératoires.

Le pilote expérimental utilisé dans ce travail est une machine semi-industrielle en continu, dont les caractéristiques sont très proches des systèmes utilisés dans l'industrie de la crème glacée. Le produit utilisé est un mix d'origine industrielle. Une des originalités de cette étude est ainsi que les résultats présentés dans cette étude sont dans la plupart des cas rapidement transposables à d'autres cas industriels.



**REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES**

- Alvarez Leguizamo, G. (1985). Tesis de maestría: Estimación del calor específico en alimentos con bajo contenido de humedad. Universidad Autonoma de Mexico.
- Alvarez Leguizamo, G. (2006). Temperature controllable cylindrical cell for a rheometer. Patent number WO/2006/016034.
- B. Diemer, R., & H. Olson, J. (2002). A moment methodology for coagulation and breakage problems: Part 1--analytical solution of the steady-state population balance. *Chemical Engineering Science*, 57(12), 2193-2209.
- Arellano M., Gonzalez J. E., Leducq D., Benkhelifa H., Flick D., Alvarez G. (2011). "Effect of sorbet freezing process on draw temperature and ice crystal size using focused beam reflectance method (FBRM) online measurements". The 23rd IIR International Congress of Refrigeration, Refrigeration for Sustainable Development. Prague, Czech Republic August 21-26
- B. Diemer, R., & H. Olson, J. (2002). A moment methodology for coagulation and breakage problems: Part 1--analytical solution of the steady-state population balance. *Chemical Engineering Science*, 57(12), 2193-2209.
- Baer, R.J., & Keating, a.K.R. (1987). Determination of ice cream mix freezing points: A comparison of methods. *J. Dairy Sci.*, 70, 555-558.
- Ben Lakhdar, M., Cerecero, R., Alvarez, G., Guilpart, J., Flick, D., & Lallemand, A. (2005). Heat transfer with freezing in a scraped surface heat exchanger. *Applied Thermal Engineering*, 25(1), 45-60.
- Benezech, T., Maingonnat, J.F. (1988). Modélisation de la consommation de puissance dans des échangeurs à surface raclée traitant des fluides Newtoniens et non-Newtoniens. *Journal of Food Engineering*, 7(4), 289-311
- Boistelle, R., & Astier, J.P. (1988). Crystallization mechanisms in solution. *Journal of Crystal Growth*, 90(1-3), 14-30.
- Bolliger, S., Goff, H.D., & Tharp, B.W. (2000). Correlation between colloidal properties of ice cream mix and ice cream. *International Dairy Journal*, 10(4), 303-309.
- Bolliger, S., Kornbrust, B., Goff, H.D., Tharp, B.W., & Windhab, E.J. (2000). Influence of emulsifiers on ice cream produced by conventional freezing and low-temperature extrusion processing. *International Dairy Journal*, 10(7), 497-504.
- Bolliger, S., Wildmoser, H., Goff, H.D., & Tharp, B.W. (2000). Relationships between ice cream mix viscoelasticity and ice crystal growth in ice cream. *International Dairy Journal*, 10(11), 791-797.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Bongers, P.M.M., & Bertrand Braunschweig and Xavier, J. (2008). Model of the product properties for process synthesis. In *Computer Aided Chemical Engineering* (Vol. Volume 25, pp. 55-60): Elsevier.
- Bongers, P.M.M., & Pantelides, W.M.a.C. (2006). A heat transfer model of a scraped surface heat exchanger for ice cream. In *Computer Aided Chemical Engineering* (Vol. Volume 21, pp. 539-544): Elsevier.
- Cerecero, R. (2003). Thèse: Etude des écoulements et des transfert thermiques lors de la fabrication d'un sorbet à l'échelle du pilote et du laboratoire. UMR-Génial ENSIA Massy.
- Chernov, A.A. (2001). Crystal growth between the centuries. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 12(8), 437-449.
- Chiu, T., & Christofides, P.D. (1999). Robust nonlinear control of a continuous crystallizer. *Computers & Chemical Engineering*, 23(Supplement 1), S257-S260.
- Choong, K.L., & Smith, R. (2004). Novel strategies for optimization of batch, semi-batch and heating/cooling evaporative crystallization. *Chemical Engineering Science*, 59(2), 329-343.
- Choulak, S., Couenne, F., Le Gorrec, Y., Jallut, C., Cassagnau, P., & Michel, A. (2004). Generic dynamic model for simulation and control of reactive extrusion. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 43(23), 7373-7382.
- Clarke, C. (2004). *The science of ice cream* (1 ed.). Cambridge: The royal society of chemistry.
- Cogne, C., Andrieu, J., Laurent, P., Besson, A., & Noequet, J. (2003). Experimental data and modelling of thermal properties of ice creams. *Journal of Food Engineering*, 58(4), 331-341.
- Cogne, C., Laurent, P., Andrieu, J., & Ferrand, J. (2003). Experimental data and modelling of ice cream freezing. *Chemical Engineering Research & Design*, 81(A9), 1129-1135.
- Cook, K.L.K., & Hartel, R.W. (2010). Mechanisms of ice crystallization in ice cream production. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*, 9(2), 213-222.
- Costa, C.B.B., Maciel, M.R.W., & Maciel, R. (2007). Considerations on the crystallization modeling: Population balance solution. *Computers & Chemical Engineering*, 31(3), 206-218.
- Diemer, R.B., & Olson, J.H. (2002). A moment methodology for coagulation and breakage problems: Part 2--moment models and distribution reconstruction. *Chemical Engineering Science*, 57(12), 2211-2228.
- Diemer, R.B., & Olson, J.H. (2002). A moment methodology for coagulation and breakage problems: Part 3 - Generalized daughter distribution functions. *Chemical Engineering Science*, 57(19), 4187-4198.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Dirksen, J.A., & Ring, T.A. (1991). Fundamentals of crystallization: Kinetics on particle size distribution and morphology. *Chemical Engineering Science*, 46(10), 2389-2427.
- Donhowe, D.P., & Hartel, R.W. (1996). Recrystallization of ice in ice cream during controlled accelerated storage. *International Dairy Journal*, 6(11-12), 1191-1208.
- Drewett, E.M., & Hartel, R.W. (2007). Ice crystallization in a scraped surface freezer. *Journal of Food Engineering*, 78(3), 1060-1066.
- Dumont, E., Della Valle, D., & Fayolle, F. (2000). Influence of flow regimes on temperature heterogeneities within a scraped surface heat exchanger. *Journal of Food Process Engineering*, 23(3), 207-220.
- Dumont, E., Fayolle, F., & Legrand, J. (2000). Electrodiffusional wall shear rate analysis in scraped surface heat exchanger. *Aiche Journal*, 46(6), 1138-1148.
- Dumont, E., Fayolle, F., & Legrand, J. (2000). Flow regimes and wall shear rates determination within a scraped surface heat exchanger. *Journal of Food Engineering*, 45(4), 195-207.
- Elhweg, B., Burns, I.W., Chew, Y.M.J., Martin, P.J., Russell, A.B., & Wilson, D.I. (2009). Viscous dissipation and apparent wall slip in capillary rheometry of ice cream. *Food and Bioproducts Processing*, In Press, Corrected Proof.
- F. J. Jaskulka, Smith, D.E., & Larntz, a.K. (1995). Development of an empirical model to predict the freezing point of ice cream mix. *Milchwissenschaft*, 50(1), 26-30.
- Falk, L., & Schaer, E. (2001). A PDF modelling of precipitation reactors. *Chemical Engineering Science*, 56(7), 2445-2457.
- Fennema, O.R., Powrie, W.D., & Marth, E.H. (1973). *Low temperature preservation of foods and living matter*. New York: Marcel Dekker.
- Fikiin, K.A. (1998). Ice content prediction methods during food freezing: a survey of the Eastern European literature. *Journal of Food Engineering*, 38(3), 331-339.
- Flores, A.A., & Goff, H.D. (1999). Ice crystal size distributions in dynamically frozen model solutions and ice cream as affected by stabilizers. *Journal of Dairy Science*, 82(7), 1399-1407.
- Garside, J., & Shah, M.B. (1980). Crystallization kinetics from MSMPR crystallizers. *Industrial Engineering and Chemical Process Design and Development* (19), 509-514.
- Goff Douglas (2008). 65 years of ice cream science. *International Dairy Journal*, (18), 754-758.
- Gonzalez-Ramirez J. E., Arellano M., Leducq D., Alvarez G., Benkhelifa H., Flick D. (2011)

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Moments model for a continuous sorbet crystallization process. The 23rd IIR International Congress of Refrigeration, Refrigeration for Sustainable Development. Prague, Czech Republic August 21-26.
- Grossi, M., Lazzarini, R., Lanzoni, M., & Riccò, B. (2011). A novel technique to control ice cream freezing by electrical characteristics analysis. *Journal of Food Engineering*, In Press, Accepted Manuscript.
- Haddad, A. (2009). Thèse: Couplage entre écoulements, transferts thermiques et transformation lors du changement de phase d'un produit alimentaire liquide complexe – application à la maîtrise de la texture. AgroParisTech.
- Hartel, R.W. (1996). Ice crystallization during the manufacture of ice cream. *Trends in Food Science & Technology*, 7(10), 315-321.
- Hartel, R.W. (2001). *Crystallization in foods*. Aspen Publishers, Inc.
- Heldman, D. (1981). *Food Process Engineering*, 2ème edition. AVI Publishinh Company. Westport Connecticut.
- Hounslow, M.J., Ryall, R.L., & Marshall, V.R. (1988). A discretized population balance for nucleation, growth and agglomeration. *Aiche Journal*(34), 1821-1832.
- Hulburt, H.M., & Katz, S. (1964). Some problems in particle technology. A statistical mechanical formulation. *Chemical Engineering Science*(19), 555-574.
- Jones, A., Rigopoulos, S., & Zauner, R. (2005). Crystallization and precipitation engineering. *Computers & Chemical Engineering*, 29(6), 1159-1166.
- Kashchiev, D., & van Rosmalen, G.M. (2003). Review: Nucleation in solutions revisited. *Crystal Research and Technology*, 38(7-8), 555-574.
- Kaya, S., & Tekin, A.R. (2001). The effect of salep content on the rheological characteristics of a typical ice-cream mix. *Journal of Food Engineering*, 47(1), 59-62.
- Kiani, H., & Sun, D.-W. (2011). Water crystallization and its importance to freezing of foods: A review. *Trends in Food Science & Technology*, In Press, Corrected Proof.
- Klein, J.-P., Boistelle, R., & Dugia, J. (2000). *Cristallisation industrielle; Aspects pratiques. Technique de l'ingénieur*.
- Kougoulos, E., Jones, A.G., Jennings, K.H., & Wood-Kaczmar, M.W. (2005). Use of focused beam reflectance measurement (FBRM) and process video imaging (PVI) in a modified mixed suspension mixed product removal (MSMPR) cooling crystallizer. *Journal of Crystal Growth*, 273(3-4), 529-534.
- Koury, R.N.N., Machado, L., & Ismail, K.A.R. (2001). Numerical simulation of a variable speed refrigeration system. *International Journal of Refrigeration*, 24(2), 192-200.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Kulikov, V., Briesen, H., & Marquardt, W. (2005). Scale Integration for the Coupled Simulation of Crystallization and Fluid Dynamics. *Chemical Engineering Research and Design*, 83(6), 706-717.
- Kus, S., Altan, A., & Kaya, A. (2005). Rheological behavior and time-dependent characterization of ice cream mix with different salep content. *Journal of Texture Studies*, 36(3), 273-288.
- Leducq, D. (2002). Thèse: Modélisation dynamique d'une installation frigorifique et réduction du modèle pour la commande. UMR-Génial, ENSIA.
- Levenspiel, O. (1999). *Chemical reaction engineering*, 3 edition. Wiley.
- Lian, G., Moore, S., & Heeney, L. (2006). Population balance and computational fluid dynamics modelling of ice crystallisation in a scraped surface freezer. *Chemical Engineering Science*, 61(23), 7819-7826.
- Maake, W., Eckert, H.J., & Cauchepin, J.-L. (1993). *Manuel technique du froid: Bases, composants, calculs*, Tome 1, deuxième édition. PYC edition.
- Mabit, J., Falyolle, F., & Legrand, J. (2005). Phénomènes de dispersion axial dans un échangeur de chaleur à surface raclée. *Récents Progrès en Génie des Procédés*. Ed. Lavoisier, Paris, Q11.
- Marchisio, D.L., Pikturna, J.T., Fox, R.O., Vigil, R.D., & Barresi, A.A. (2003). Quadrature method of moments for population-balance equations. *Aiche Journal*, 49(5), 1266-1276.
- Marchisio, D.L., Vigil, R.D., & Fox, R.O. (2003). Quadrature method of moments for aggregation-breakage processes. *Journal of Colloid and Interface Science*, 258(2), 322-334.
- Marshall, R.T., Goff, H.D., & Hartel, R.W. (2003). *Ice cream*. Sixth edition. Springer.
- Mersmann, A. (1994). *Crystallization technology handbook*. Marcel Dekker Inc., New York.
- Miller-Livney, T., & Hartel, R.W. (1997). Ice Recrystallization in Ice Cream: Interactions between Sweeteners and Stabilizers. *Journal of Dairy Science*, 80(3), 447-456.
- Miles et al., 1983 Miles, C.A., Van Beek, G., & Veerkaamp, C.H. (1983). Calculation of thermophysical properties of foods. In Jowitt, Escher, Hallström, Meffert, & Spiess (Eds.), *Physical Properties of Foods*, Vol. 16, pp. 269–312
- Muhrw, H., David, R., Villermaux, J., & Jezequel, P.H. (1996). Crystallization and precipitation Engineering VI. Solving Population Balance in the case of the precipitation of silver bromide crystals with high primary nucleation rates by using the first order upwind differentiation. *Chemical Engineering Science*, 51(2), 309-319.
- Mullin, J.W. (1972). *Crystallisation*. . Second edition. Hazell, Watson & Viney Ltd Aylesbury Bucks.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Mullin, J.W. (2002). *Crystallization* (fourth Edition). Butterworth Heinemann, Oxford.
- Muse, M.R., & Hartel, R.W. (2004). Ice cream structural elements that affect melting rate and hardness. *Journal of Dairy Science*, 87(1), 1-10.
- Mydlarz, J. (1996). Modelling of growth rate for MSMPR crystallizer data. *Crystal Research and Technology*(31), 541-565.
- Ngadi, M.O., & Yu, L.J. (2004). Rheological properties of Canadian maple syrup. *Canadian Biosystems Engineering Journal*, 46, 3.15-13.18.
- Omram, A.M., & King, C.J. (1974). Kinetics of ice crystallization in sugar solutions and fruit juices. *Aiche Journal*, 20(4), 795-803.
- O'Sullivan, B., & Glennon, B. (2005). Application of in Situ FBRM and ATR-FTIR to the Monitoring of the Polymorphic Transformation of D-Mannitol. *Organic Process Research & Development*, 9, 884-889.
- Peri, C. (2005). The universe of food quality. *Food Quality and Preference*, 17(1-2), 3-8.
- Puel, F., Févotte, G., & Klein, J.P. (2003). Simulation and analysis of industrial crystallization processes through multidimensional population balance equations. Part 1: a resolution algorithm based on the method of classes. *Chemical Engineering Science*, 58(16), 3715-3727.
- Puel, F., Févotte, G., & Klein, J.P. (2003). Simulation and analysis of industrial crystallization processes through multidimensional population balance equations. Part 2: a study of semi-batch crystallization. *Chemical Engineering Science*, 58(16), 3729-3740.
- Qin, F., Chen, X.D., Ramachandra, S., & Free, K. (2006). Heat transfer and power consumption in a scraped-surface heat exchanger while freezing aqueous solutions. *Separation and Purification Technology*, 48(2), 150-158.
- Qin, F.G.F., Chen, X.D., & Free, K. (2009). Freezing on subcooled surfaces, phenomena, modeling and applications. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 52(5-6), 1245-1253.
- Qin, F.G.F., Zhao, J.C., Russell, A.B., Chen, X.D., Chen, J.J., & Robertson, L. (2003). Simulation and experiment of the unsteady heat transport in the onset time of nucleation and crystallization of ice from the subcooled solution. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 46(17), 3221-3231.
- Randolph, A.D., & Larson, M.A. (1988). *Theory of particulate processes*. Acad. Press. New York.
- Royon, L. Qu'est-ce que le coulis de glace stabilisé? (1998) *Revue Générale du Froid*, 983, 57-60

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Russell, A.B., Cheney, P.E., & Wantling, S.D. (1999). Influence of freezing conditions on ice crystallisation in ice cream. *Journal of Food Engineering*, 39(2), 179-191.
- Sablani, S.S., Datta, A.K., Rahman, M.S., & Mujumdar, A.S. (2007). *Handbook of food and bioprocess modeling techniques*. CRC Press LLC.
- Schurt, L.C., Hermes, C.J.L., & Neto, A.T. (2009). A model-driven multivariable controller for vapor compression refrigeration systems. *International Journal of Refrigeration*, 32(7), 1672-1682.
- Sheikhzadeh, M., Trifkovic, M., & Rohani, S. (2008). Real-time optimal control of an anti-solvent isothermal semi-batch crystallization process. *Chemical Engineering Science*, 63(3), 829-839.
- Shi, D., El-Farra, N.H., Li, M., Mhaskar, P., & Christofides, P.D. (2006). Predictive control of particle size distribution in particulate processes. *Chemical Engineering Science*, 61(1), 268-281.
- Sofjan, R.P., & Hartel, R.W. (2004). Effects of overrun on structural and physical characteristics of ice cream. *International Dairy Journal*, 14(3), 255-262.
- Soukoulis, C., Lebesi, D., & Tzia, C. (2009). Enrichment of ice cream with dietary fibre: Effects on rheological properties, ice crystallisation and glass transition phenomena. *Food Chemistry*, 115(2), 665-671.
- Steffe, J.F. (1996). *Rheological methods in food process engineering*, second edition. Freeman press.
- Stocking, J.H., & King, C.J. (1976). Secondary nucleation of ice in sugar solution and fruit juices. *Aiche Journal*, 22(1), 131-140.
- Tárrega, A., Durán, L., & Costell, E. (2004). Flow behaviour of semi-solid dairy desserts. Effect of temperature. *International Dairy Journal*, 14(4), 345-353.
- Triboulet, P., Cournil, M., & Crawley, G. (1992). Secondary nucleation of potassium dihydrogen phosphate (KDP): Inetest of a turbidimetric study. *Power Technology*, 73(3), 195-202.
- Vikhansky, A., & Kraft, M. (2004). Modeling of RDC using a combined CFD-population balance in a rotating disc contactor : an inverse problem approach. *Chemical Engineering Science*(59), 2597-2606.
- Villiermaux, J. (1982). Bilans de population et distribution de temps de séjour. Modélisation de l'écoulement et du mélange dans les réacteurs réels. *Génie de la réaction chimique*, Chap. 6(159-235).
- Walstra, P., & Jenness, R. (1984). Walstra P. and Jenness R. Dans : *Dairy Chemistry and Physics*. John Wiley and sons, New York.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

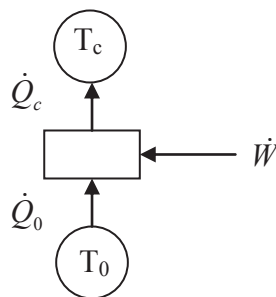
- Wei, H., & Garside, J. (1997). Application of CFD Modelling to Precipitation Systems. *Chemical Engineering Research and Design*, 75(2), 219-227.
- Windhab, E. (1999). New Developments in Crystallization Processing. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 57(1), 171-180.
- Windhab, E.J., & Bolliger, S. (1998). New developments in ice cream freezing technology and related on-line measuring techniques. *Ice Cream*(9803), 112-130.
- Woo, X.Y., Tan, R.B.H., Chow, P.S., & Braatz, R.D. (2006). Simulation of mixing effects in antisolvent crystallization using a coupled CFD-PDF-PBE approach. *Crystal Growth and Design*, 6(6), 1291-1303.
- Zhou, Y. (2004). Etude expérimentale de la cristallisation du bicarbonate de sodium. Thèse de doctorat à l'université libre de Bruxelles (ULB), Belgique.



## Annexe A LA MACHINE FRIGORIFIQUE, PRINCIPES

### ▪ La machine frigorifique

Une machine frigorifique à compression de vapeur se base sur le principe d'un cycle bitherme pour la production du froid. Ce cycle ne fait que permettre de transporter la chaleur d'une source froide vers une source chaude. Ce transport de chaleur du froid vers le chaud ne se fait pas de manière spontanée. L'application du premier et second principe de la thermodynamique permet de montrer qu'il faut pour cela apporter un minimum d'énergie mécanique.



**Figure A. 1.** Transport de chaleur d'une source froide à  $T_0$  vers une source chaude à  $T_c$

Le second principe indique que le flux entropique (flux de chaleur divisé par la température absolue) sortant dans un cas général est supérieur ou égal en régime permanent au flux entropique entrant, d'où:

$$\frac{\dot{Q}_0}{T_0} - \frac{\dot{Q}_c}{T_c} \geq 0 \quad (\text{A.1})$$

Si le cycle bitherme est réversible, la variation totale d'entropie est nulle, on a alors:

$$\dot{Q}_c = \dot{Q}_0 \frac{T_c}{T_0} \quad (\text{A.2})$$

Le premier principe indique que le flux de chaleur cédée à la source chaude  $\dot{Q}_c$  est égal à la somme du flux de chaleur retiré à la source froide  $\dot{Q}_0$  et la puissance mécanique, d'où:

$$\dot{W} = \dot{Q}_c - \dot{Q}_0 = \dot{Q}_0 \left( \frac{T_c - T_0}{T_0} \right) \quad (\text{A.3})$$

Ainsi, le transport d'une quantité de chaleur  $\Delta\dot{Q}_0$  d'une source froide vers une source chaude par un cycle bitherme (deux sources de chaleur uniquement) ne peut s'effectuer que par l'apport du minimum du travail mécanique défini par  $\dot{W}$ .

L'efficacité du cycle frigorifique (appelé COP) est alors définie par le rapport entre ce que l'on récupère (c'est l'énergie frigorifique  $\Delta\dot{Q}_0$  qui nous intéresse) et ce qui est fourni (le travail mécanique  $\dot{W}$ ).

- **Fonctionnement d'une machine frigorifique**

Le fonctionnement d'une machine frigorifique peut être décrit par le principe du cycle de compression. Ce principe a été décrit pour la première fois par Evans en 1805, mais la première mise en œuvre est due à J. Perkins (1834). Ce cycle est composé:

- d'une compression d'un frigorigène à l'état de gaz
- d'une condensation dans un échangeur
- d'une détente
- d'une évaporation du frigorigène dans un dernier échangeur.

Pour que ce cycle soit réversible, il faudrait que:

- la compression soit isentropique
- l'échange dans le condenseur soit isotherme (à la température de la source chaude): ceci pourrait être réalisé si le frigorigène entre l'échangeur en vapeur saturée ou à l'état diphasique
- la détente soit également isentropique
- l'échange dans l'évaporateur soit isotherme (le frigorigène quitte l'évaporateur à l'état diphasique).

Si les échanges sont réversibles (la température de condensation est alors égale à la température de la source chaude, et la température d'évaporation à celle de la source froide), on a alors un cycle réversible et l'efficacité frigorifique de ce cycle atteindrait la valeur maximum comme présentée précédemment. Ce cycle n'est malheureusement pas réalisable. Outre la condition sur les échangeurs, les difficultés techniques résident dans la compression d'un mélange diphasique et la récupération de l'énergie mécanique lors de la détente.

Le cycle réel est ainsi composé d'échangeurs "imparfaits" avec un écart de température de plusieurs degrés entre la température de la source chaude et la température du frigorigène, d'une compression du frigorigène à l'état de vapeur même si la condition isotherme dans les échangeurs ne peut plus alors être satisfaite et d'une détente par laminage du fluide frigorigène sans récupération d'énergie mécanique.

Le principe de fonctionnement est présenté dans les diagrammes P-h et T-s de la figure 2.3. Le fluide à l'état de gaz à la sortie de l'évaporateur est d'abord comprimé (1-2) puis refoulé vers le condenseur. Le gaz est alors refroidi en cédant donc de la chaleur sensible (2-3) à une source chaude puis se condense (3-4). Le liquide est enfin légèrement sous-refroidi (4-5) avant de quitter le condenseur. Le liquide est ensuite détendu par laminage (5-6) et entre à l'état diphasique liquide-vapeur dans l'évaporateur. Le liquide s'évapore en circulant dans l'évaporateur où il reçoit de la chaleur (6-7). Le gaz s'échauffe encore légèrement avant de sortir de l'évaporateur (7-8) puis retourne au compresseur par la canalisation d'aspiration (8-1).

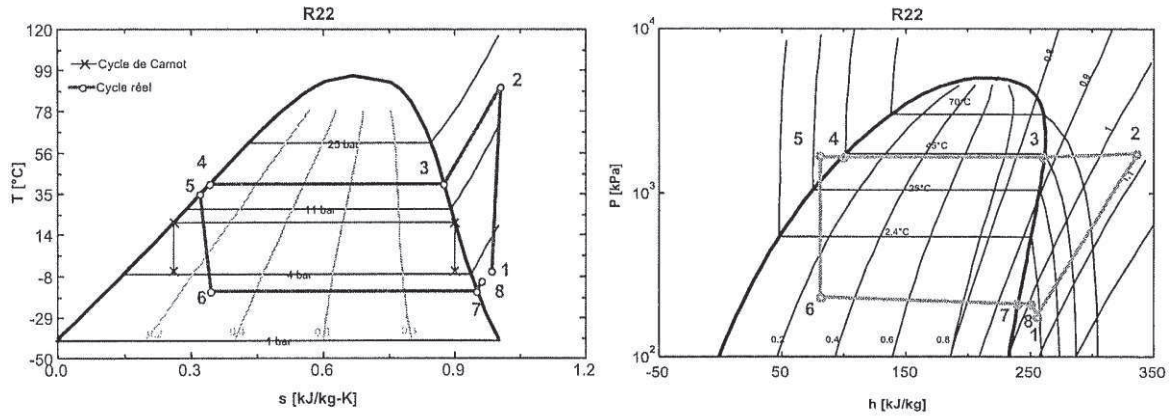


Figure A. 2. Diagramme T-s et P-g du cycle de compression de vapeur

## Annexe B CARACTERISATION DE L'ÉCOULEMENT PAR LA METHODE DE DISTRIBUTION DE TEMPS DE SEJOUR (DTS)

### ▪ Etude DTS

La méthode de distribution de temps de séjour permet de caractériser le comportement de l'écoulement dans un réacteur. Cette méthode a été utilisée pour la caractérisation dans un cristalliseur en continu. Pour réaliser cette étude on utilisera la méthode d'injection d'une dose de colorant (bleu de méthylène). L'objectif de cette méthode est d'obtenir la courbe de distribution de temps de séjour  $E(t)$  obtenue à partir des données de temps-concentrations du traceur dans l'ECSR (figure B.1).

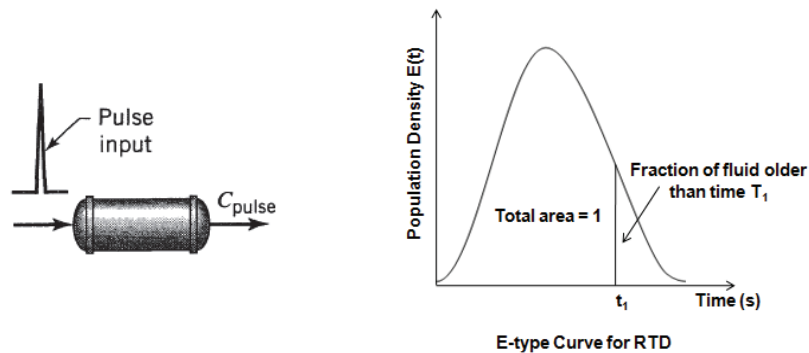


Figure B. 1. Exemple d'une courbe de distribution de temps de séjour réalisée par la méthode d'injection d'un pulse de traceur.

Afin d'obtenir des résultats valables, on a suivi les recommandations faites par Villiermaux (1982):

- Pour réduire les écarts par rapport à une impulsion idéale, le traceur ne doit pas excéder 2 % du temps de séjour moyenne.
- C'est convenaient aussi que le traceur soit miscible et qu'a des propriétés physiques similaires à ceux de l'écoulement à analyser pour assurer le même temps de séjour que ce du fluide.

Le système d'injection consiste en une seringue connectée dans une vanne elle-même connectée à une conduite en inox (de 4 cm<sup>3</sup> de volume) qui se prolonge juste à l'entrée de l'ECSR. Ainsi, on assure l'injection du traceur directement dans l'écoulement en train de se transformer (figure B. 2). Le traceur à injecter est une solution de bleu de méthylène dans le mix sorbet citron à 0.008 % (kg/kg), injectée dans la conduite en inox pour éliminer le volume mort.

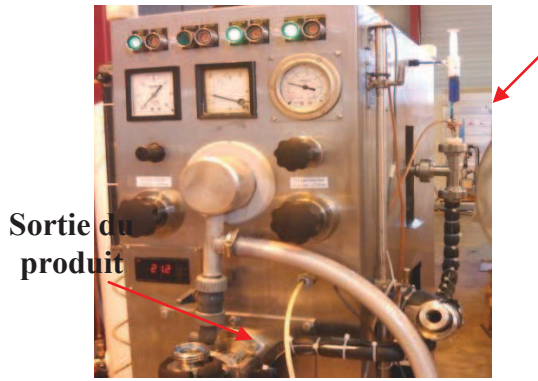
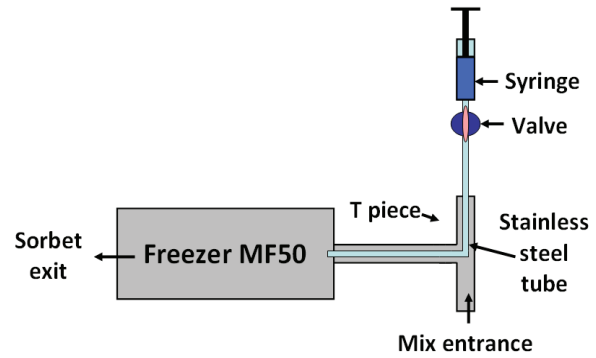


Figure B.2a. Configuration pour la DTS.



B.2b. Système d'injection.

Figure B. 2. Système DTS sur le "Freezer"

La procédure consiste à injecter 13 cm<sup>3</sup> de traceur. Cette injection a été effectuée par des impulsions qui durent entre 1 et 2 secondes. On récupère alors plusieurs échantillons de mix transformé en sorbet et mélangé avec le traceur (entre 20 et 30 échantillons de 30 cm<sup>3</sup> environ). Le sorbet récupéré est stocké à 5 °C pendant 24 h afin de fondre la glace formée.

Pour l'analyse, les échantillons ont été pesés, puis caractérisés par colorimétrie. Pour réaliser cette caractérisation, on a utilisé un spectrophotomètre UV avec une longueur d'onde de 662 nm. Un étalonnage antérieur du colorimètre par rapport à la concentration en colorant a permis de lier la mesure d'absorbance de l'appareil à la concentration de colorant.

Si on considère un fluide composé d'éléments différents entrant dans un réacteur, chacun de ces éléments suit un trajet différent, ce qui a pour conséquence des durées différentes pour traverser le système. La distribution de ces temps de séjour est également appelée fonction de la distribution de l'âge ( $E(t)$ ) ou distribution de temps de séjour (DTS). Cette distribution ou fonction représente chaque élément du fluide qui sort du réacteur et qui a passé au travers du système pendant une période de temps entre  $t$  et  $t + dt$

La fonction  $E(t)$  est établie par l'équation B.1, où  $C(t)$  est la concentration de sortie d'un traceur à un certain temps  $t$ .

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^{\infty} C(t) dt} \quad (\text{B.1})$$

La normalisation de la distribution considère que la surface sur la courbe est égale à l'unité.

$$\int_0^{\infty} E(t) dt = 1 \quad (\text{B.2})$$

$$\theta_s = \int_0^{\infty} \frac{C}{C_0} \cdot \theta \cdot d\theta = 1 \quad (\text{B.3})$$

Le temps de séjour moyen  $t_s$  est défini comme le premier moment de la distribution et est égale au temps de passage  $\tau$  pour un réacteur idéal du type piston établi pour les équations B.3 et B.4 respectivement :

$$M_1 = t_s = \int_0^{\infty} t \cdot E(t) dt \quad (\text{B.3})$$

$$\tau = \frac{V}{Q} \quad (\text{B.4})$$

où  $Q$  est le débit volumique de l'écoulement et  $V$  est le volume du réacteur.

La variance  $\sigma^2$  est définie comme le deuxième moment de la distribution et il est calculé à partir de l'équation B.5. Cette variance est prise comme un indicateur de la diffusion de la distribution.

$$M_2' = \sigma^2 = \int_0^{\infty} (t - t_s)^2 E(t) dt \quad (\text{B.5})$$

Les données et le temps sont normalisés par l'équation B.6 et les distributions de temps de séjour ( $E(\theta)$ ) par la relation B.7.

$$\theta = \frac{t}{\tau} \quad (\text{B.6})$$

$$E(\theta) = \tau \cdot E(t) \quad (\text{B.7})$$

Pour terminer avec le traitement de données, la variance  $\sigma^2$  est aussi normalisée par l'équation B.8.

$$\sigma^2 = \frac{\sigma^2}{\tau^2} \quad (\text{B.8})$$

- **Identification de comportement**

L'identification de l'écoulement du sorbet à l'intérieur du cristalliseur se base sur l'hypothèse d'une cascade des réacteurs. L'expression qui représente le nombre des réacteurs nécessaires ( $N$ ) in série est donnée pour l'équation B.9 (Levenspiel, O. 1999)

$$E(\theta) = \frac{N \cdot (N \cdot \theta)^{N-1}}{(N-1)!} \exp(-N \cdot \theta) \quad (\text{B.9})$$

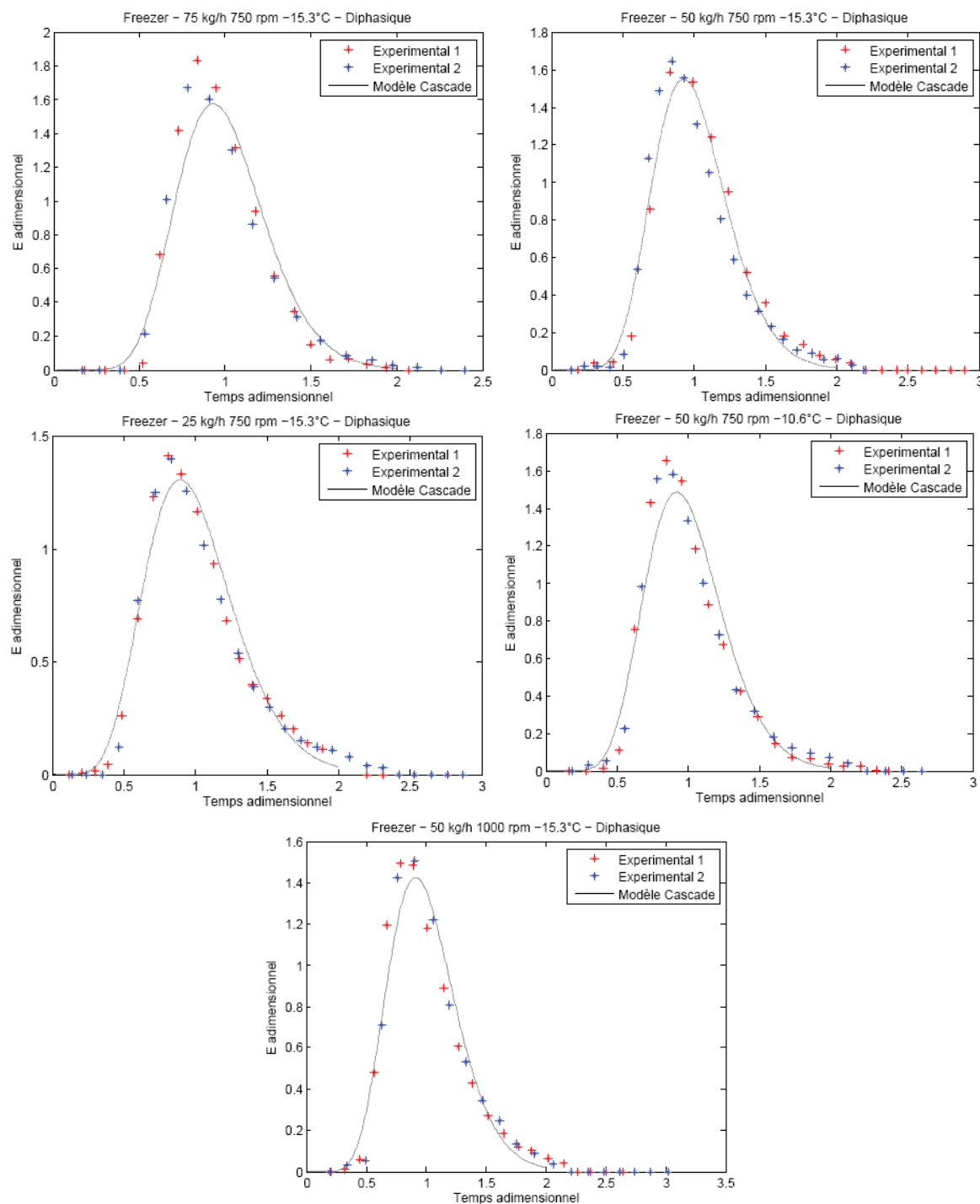
D'ailleurs, le nombre des réacteurs peut être aussi calculé à partir de la variance normalisée de la courbe de DTS, d'où :

$$\sigma^2 = \frac{1}{N} \quad (\text{B.10})$$

Dans cette dernière équation le nombre de réacteurs agités augment en diminuant la variance. Dans un système réel le comportement de l'écoulement n'est pas exactement de type piston ou d'une cascade des réacteurs agités, dans la réalité le comportement s'éloigne significativement de cette approche. Cependant, théoriquement quand le nombre des réacteurs en cascade augmente à l'infinie le système s'approche à le comportement piston.

Ainsi, Arellano et al., (2011) ont caractérisé l'écoulement de la machine à crème glacée utilisé en comparant différentes courbes théoriques suivant le type d'écoulement aux résultats expérimentaux. Cette comparaison est représentée pour la figure B.3.

## ANNEXE B. CARACTERISATION DE L'ÉCOULEMENT, METHODE DTS



**Figure B. 3.** Comparaison entre le modèle DTS pour une cascade des réacteurs et les résultats expérimentaux Arellano et al., (2011)

A partir des équations B.9 et B.10, on calcule le nombre de réacteurs théoriques représentatif du comportement de l'écoulement à l'intérieur du cristalliseur. Les résultats sont observés sur le tableau B.1. Des nombres de réacteurs entre 9 et 15 ont été obtenus avec une moyenne de 12.



**Tableau B. 1.** Caractérisation de l'écoulement dans la forme de nombre des réacteurs en cascade

No.	Conditions opératoires			Réacteurs agités			
	Débit [kg-h <sup>-1</sup> ]	Tévap [C]	VR [tr-min <sup>-1</sup> ]	Tproduit [C]	N	emin	$N = \frac{1}{\sigma^2}$
<b>1</b>	25	-15,30	750	<b>-5,56</b>	<b>9,48</b>	0,29	<b>9,13</b>
<b>2</b>	50	-15,30	750	<b>-4,49</b>	<b>13,39</b>	0,44	<b>11,79</b>
<b>3</b>	75	-15,30	750	<b>-4,10</b>	<b>15,41</b>	0,68	<b>15,5</b>
<b>4</b>	50	-10,60	750	<b>-3,5</b>	<b>12,88</b>	0,54	<b>11,4</b>
<b>5</b>	50	-15,30	1000	<b>-4,66</b>	<b>11,38</b>	0,37	<b>10,08</b>

- **Conclusion de l'étude DTS**

L'étude de la distribution de temps de séjour de notre écoulement a permis l'identification du comportement de l'écoulement dans l'échangeur. Ce comportement est proche d'un ensemble de réacteurs agités et connectés en cascade. Le nombre de ces réacteurs connectés a également été caractérisé à des valeurs comprises entre 9 et 15 (12 en moyenne).

## Annexe C UTILISATION D'UN CALORIMETRE DE MELANGES POUR LA DETERMINATION DE LA FRACTION DE GLACE

- **Calorimétrie des mélanges pour la mesure de la quantité de glace formée.**

La réalisation des essais supplémentaires sur la machine à crème glacée nous a permis de corroborer le calcul de la quantité de glace formée. Ce calcul est basé sur l'hypothèse du point de saturation à partir de la courbe de "liquidus". Pour réaliser ceci, nous avons conçu un calorimètre de type mélange. On présente la méthodologie suivie pour la validation du calcul de la quantité de glace.

- **Présentation du calorimètre**

Il s'agit d'un calorimètre inspiré de la méthodologie de la calorimétrie de mélanges. Le calorimètre est composé d'un réservoir de verre de type Pyrex de dimensions DI: 80 mm et H: 240 mm (A), un flacon d'échantillon également de verre type Pyrex de dimensions DI: 27 mm et H: 175 mm (B). Ce flacon est bouché à l'aide d'un bouchon caoutchouc et un agitateur magnétique (C) est utilisé pour l'homogénéisation de la température du liquide chaud. Cet instrument a été isolé pour minimiser les pertes de chaleur avec l'environnement, et il est instrumenté par deux thermocouples type T (E et G) et une PT100 de précision (F) pour mesurer les températures selon la figure C.1.

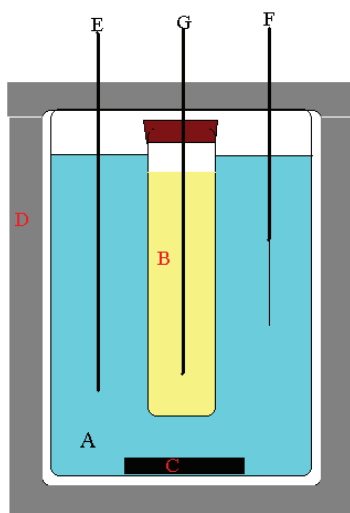


Figure C. 1. Diagramme du fonctionnement du calorimètre

Le principe de fonctionnement consiste à introduire un liquide chaud (avec des propriétés thermiques connues) dans le réservoir A et à mettre un autre produit dans le flacon d'échantillon B. L'objectif est de trouver une ou plusieurs propriétés thermiques du produit. Dans la figure C.2 on observe le dispositif expérimental.



**Figure C. 2.** Images réelles du calorimètre: a) Vue calorimètre en marche; b) Vue intérieur du calorimètre

Dans notre cas, le calorimètre est utilisé pour l'estimation de la quantité de glace formée pendant la production du sorbet citron. Ce sorbet citron est une solution hétérogène, composé de cristaux d'eau et d'une partie du mix résiduel.

- **Corrélations pour le calcul de la quantité de glace formée**

Nous partons du principe que pour la modélisation du procédé de cristallisation du sorbet la quantité de glace formée est un paramètre important. Ils existent des corrélations pour l'estimation de cette propriété physique. Cogne et al. (2003 a,b) et Haddad (2009) par exemple citent la corrélation de Miles. Cette équation est basée sur la température de congélation et la fraction d'eau initiale (équation C.1).

$$x_g = (1 - \varpi_0) \left( 1 - \frac{T_f}{T} \right) \quad (C.1)$$

Cette première équation ne prend pas en compte les propriétés thermiques propres du produit, et est donc limitée. Par ailleurs, Cerecero R., (2003) cite des méthodologies pour prédire la quantité de glace (en utilisant des solutions sucrées) en fonction de la température et la quantité de sucre initiale (avec une température de fusion  $T_f$ ). Cette méthodologie suppose l'existence d'un équilibre thermodynamique entre la phase congelée et la phase non congelée. Cette quantité de glace formée suit la tendance de la courbe de saturation ("liquidus") d'une solution sucrée (dans un premier temps l'équation de Bubnik et al., 1995). Cette méthode s'appuie sur le concept de la fraction de sucre résiduelle ( $x_{sr}$ : fraction de sucre concentré dans la phase non congelé) qui augmente dans le sens contraire de la température ( $T$ ) du produit (figure C.3). Ainsi, la fraction de glace est calculée à partir d'un bilan du soluté présent dans le sorbet (équation C.2).

$$x_{si} = (1 - x_{mg})x_{sr} \Leftrightarrow x_{mg} = 1 - \frac{x_{si}}{x_{sr}} \quad (C.2)$$

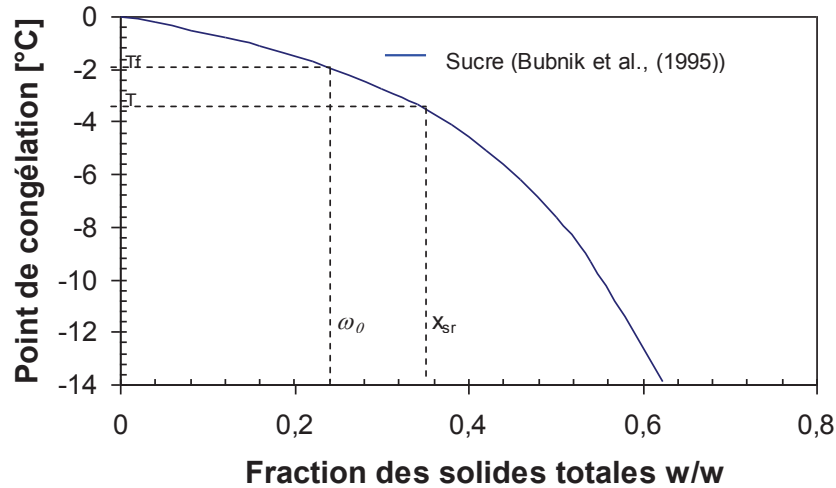


Figure C. 3. Courbe de saturation d'une solution sucrée et concept de la fraction de sucre résiduelle

Dans le cadre de l'utilisation d'un sorbet et d'une solution sucrée, l'obtention d'une courbe "liquidus" représentative pour ce produit est indispensable. Cette courbe a été obtenue à l'aide d'un microcalorimètre en utilisant du mix sorbet à différentes concentrations de solides (voir résultats).

- **Protocole d'utilisation**

Le protocole d'utilisation du calorimètre consiste en trois étapes (les points 1 et 2 ne seront réalisés qu'une seule fois):

1. *Etalonnage du calorimètre.* L'objectif est de mesurer les pertes de chaleur à cause de l'environnement. La procédure consiste à remplir le réservoir A (en absence du flacon d'échantillonnage) avec de l'eau chaude en agitant à l'aide d'un agitateur magnétique. Ensuite, on lance l'acquisition de la variation de la température par rapport au temps jusqu'au régime stable. Cette opération nous permet d'obtenir une équation de calibration pour les pertes de chaleur.
2. *Obtention d'une constante du calorimètre.* Le but de cette deuxième calibration est de trouver une constante du calorimètre. Pour le réaliser, on se base dans la méthode citée par Alvarez (1985) développée par Hayakawa (1979) où il traite d'un calorimètre de mélange sans contact direct entre les substances. La procédure consiste à introduire une masse connue d'eau chaude dans le réservoir A et une autre masse aussi connue d'eau froide dans le flacon d'échantillon. Ensuite l'évolution des températures est suivie jusqu'à l'égalité des températures interne et externe. Donc, le résultat est obtenu à partir du traitement des données en sortant une différentielle de

température (dT) en l'affichant dans un graphique par rapport au temps (t). La constante du calorimètre est calculée par une régression linéaire à partir du moment où la température de l'eau chaude arrive à l'équilibre et commence à descendre à une vitesse constante. La constante du calorimètre, donc, sera calculée à partir de la régression obtenue.

3. *Méthodologie pour l'estimation de la fraction de glace.* La procédure expérimentale pour l'estimation de la quantité de glace est très similaire à celle qui correspond au calcul de la constante du calorimètre, sauf qu'ici l'échantillon introduit dans le flacon B du sorbet est pris directement à la sortie de la machine à crème glacée. Cette procédure peut être résumée avec les points suivants.

- Introduire une masse d'eau chaude connue dans le réservoir A et laisser en agitation pendant 3 minutes pour la stabilisation et l'homogénéisation de la température à l'aide de l'agitateur magnétique.
- Prendre un échantillon du produit (flacon B) à la sortie de la machine à crème glacée et peser dans une balance. La température initiale sera la température de sortie du produit.
- Introduire l'échantillon dans le calorimètre et lancer une acquisition des températures. Attendre l'équilibre des températures.

NOTA. Les températures doivent être mesurées pendant tout le procès et l'agitation est constante pendant tout le processus.

- **Validation du calcul de la quantité de glace par calorimétrie des mélanges**

La validation du calcul de la quantité de glace formée a été validée à partir du calorimètre de mélanges comme expliqué dans la méthodologie. Les résultats seront divisés dans trois parties: calibration du calorimètre, obtention de la constante du calorimètre et traitement des données et résultats.

- **Calibration du calorimètre**

L'objectif de cette calibration est de caractériser les pertes de chaleur à cause des échanges de l'appareil avec l'extérieur. Pour le réaliser, on a rempli totalement le réservoir A (voir figure C.1 en matériels et méthodes). En suivant la température au cours du temps, on obtient la figure C.4.

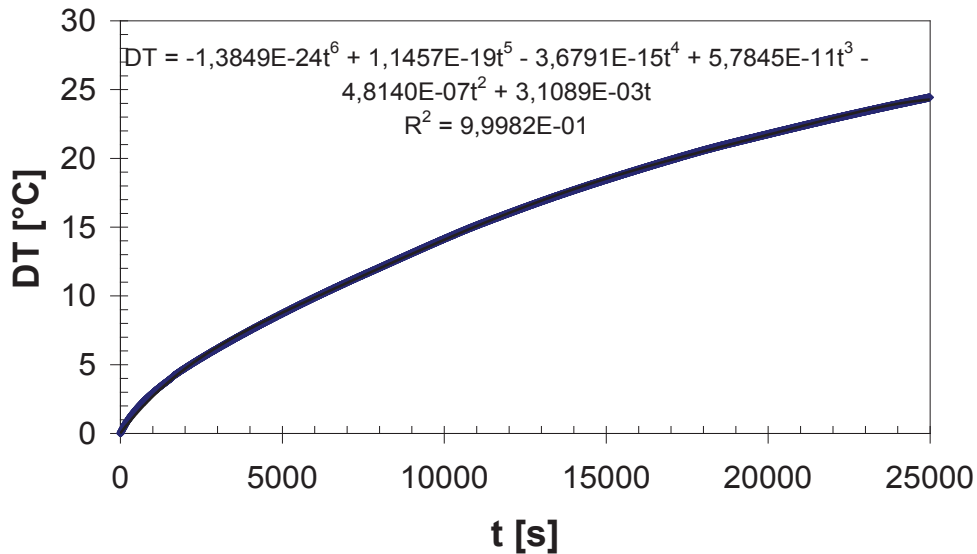


Figure C. 4. Etalonnage pour les pertes de chaleur par rapport au temps

A partir d'une régression polynomiale on caractérise les pertes de chaleur par rapport au temps. Cette équation sera utilisée dans les deux prochains points.

- **Obtention de la constante du calorimètre**

Un bilan de chaleur est proposé pour le calorimètre des mélanges à partir des équations C.3, C.4 et C.5. Dans ce bilan chaleur on considère le terme R correspondre aux pertes de chaleur, où le paramètre  $\frac{dT}{dt}$  est notre constante du calorimètre. Ce constant R considérait les échanges de chaleur avec l'extérieur, ainsi que l'effet de l'agitation et un élément externe (Alvarez (1985)).

$$Q_t = m_{ec} \cdot Cp_e \cdot DT_{\max} \quad (C.3)$$

$$R = (Cp_e \cdot m_{ece} + Cp_e \cdot m_{efe} + Cp_{cal} \cdot m_{cal}) \frac{dT}{dt} \cdot t_e \quad (C.4)$$

$$Q_e = Q_t - R \quad (C.5)$$

où  $m_{ec}$  est la masse (kg) de l'eau chaude,  $Cp_e$  est la capacité calorifique de l'eau (constante et égale à  $4200 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ),  $m_{ece}$  et  $m_{efe}$  sont les masses (kg) de l'eau chaude et froide respectivement,  $Cp_{cal}$  est la capacité calorifique du calorimètre (pour du verre type Pyrex =  $876 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ) et  $m_{cal}$  est la masse (kg) du calorimètre (0,997 kg).

Pour l'estimation de la constante du calorimètre, 0,9696 kg de l'eau chaude ( $T_{ch}$  initiale de  $44,5 \text{ }^\circ\text{C}$ ) est introduit dans le réservoir A et 0,0658 kg de l'eau froide ( $T_{fr}$  initiale de  $12,8 \text{ }^\circ\text{C}$ ) dans le flacon B (voir figure C.1). On introduit le flacon B dans le réservoir A et on lance une acquisition des températures et on attend l'équilibre (l'eau chaude est en agitation permanente à l'aide d'un agitateur magnétique).

L'acquisition de données est arrêtée à l'équilibre des températures pour continuer avec son traitement. Dans un premier temps, on a éliminé les pertes de chaleur à cause des échanges avec l'environnement. On prend, alors, la température initiale de l'eau chaude et on fait la soustraction des pertes de chaleurs en utilisant la corrélation montrée dans la figure C.4 pour calculer une nouvelle température ( $T_{ch1}$ ). Ensuite on obtient la différence de température pour chaque pas de temps entre  $T_{ch1}$  et  $T_{ch}$  qui est montrée dans un graphique par rapport au temps (figure C.5).

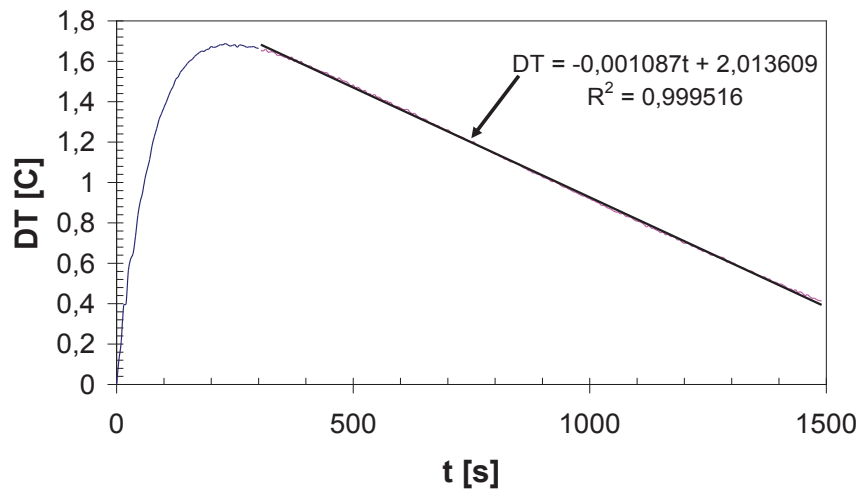


Figure C. 5. Résultat trouvé pour l'estimation de la constante du calorimètre

Comme on avait discuté dans la méthodologie, la constante de calorimètre est calculée à partir d'une régression linéaire quand on a une réduction constante de la température. On obtient, ainsi, que ce constant est égal à  $-0.001087$  et elle correspond à la pente de la courbe  $\frac{dT}{dt}$ .

Une fois que la constante du calorimètre est connue on il est possible d'utiliser l'appareil pour les applications pour lesquelles il a été développé. Donc, on continue avec la procédure pour la quantification de glace présente dans le sorbet citron.

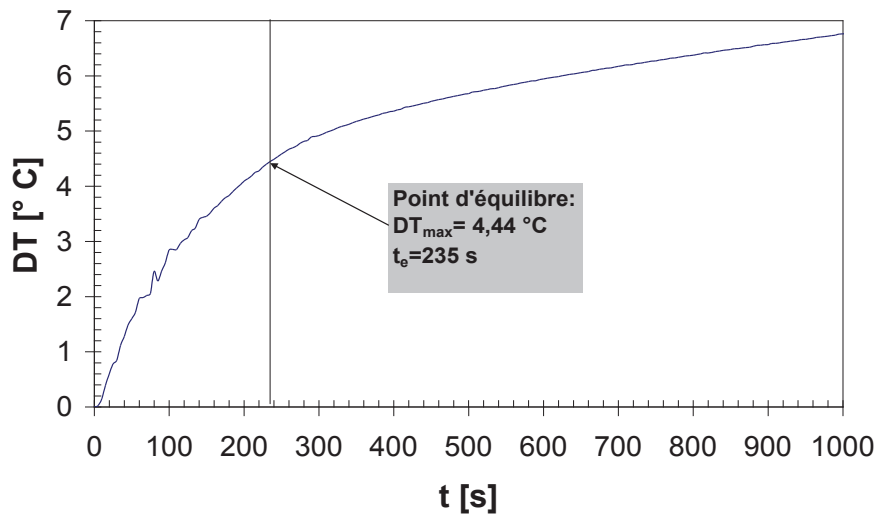
- **Traitement de données et résultats**

Afin de connaître la fraction de glace présente dans la structure du sorbet on a suivi la méthodologie établie. Pour le traitement des données, on commence en prenant la température de l'eau chaude et on applique l'équation C.6 pour l'obtention de la différentielle de température ( $DT$ ) pour tous les pas du temps.

$$DT = T|_{ch}^{t=0} - T|_{ch}^{t=t} \quad (C.6)$$

Ensuite on représente graphiquement les valeurs  $DT$  calculés par rapport au temps de mesure et on obtient le point d'équilibre quand la vitesse de refroidissement de l'eau chaude n'est plus

variable, mais constante (figure C.6). Dans ce point on estime une DT maximal ( $DT_{max}$ ) et un temps d'équilibre ( $t_e$ ) qui on utilisera après.



**Figure C. 6.** Exemple de la différentielle de température par rapport au temps pour température de glace de -5.6 °C

D'ailleurs on par un bilan on calcul la chaleur totale perdue ( $Q_t$ ) pour l'eau chaude en utilisant la relation 4.38 et  $DT_{max}$  obtenu. Ensuite, on fait la soustraction des pertes de chaleur en appliquant le terme  $\frac{dT}{dt}$  trouvé comme constante du calorimètre en combinaison de la corrélation R représenté par l'équation 4 pour l'obtention de la chaleur échangé ( $Q_e$ ), en utilisant la valeur trouvé de  $t_e$ .

Du côté du sorbet, on fait le calcul de la chaleur nécessaire pour chouffer le mix ( $Q_{mix}$ ) à partir de son température de congélation ( $T_{cong} = -2,63$  °C) jusqu'à son température d'équilibre ( $T_e$ ) en appliquant l'équation C.7.

$$Q_{mix} = m_{mix} \cdot Cp_{mix} (T_e - T_{cong}) \quad (C.7)$$

$$Cp_{mix} = x_{si} \cdot Cp_s + (1 - x_{si}) \cdot Cp_e \quad (C.8)$$

où  $m_{mix}$  est la masse (kg) de l'échantillon du produit étudié,  $Cp_{mix}$  est la capacité calorifique du mix ( $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ ) et  $Cp_s$  représente la capacité calorifique du sucre ( $1670 J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ ).

Le calcul expérimental de la fraction de glace est fait à partir du bilan de chaleur présenté dans l'équation C.8. Ce calcul a été comparé avec la valeur théorique obtenue à partir de l'équation C.2, suivi du calcul du pourcentage d'erreur (E) par la formule C.9.

$$Q_{glace} = Q_e - Q_{mix} = m_{mix} \cdot x_{mg} \cdot \Delta H_f \Leftrightarrow x_{mg} = \frac{Q_e - Q_{mix}}{m_{mix} \cdot \Delta H_f} \quad (C.8)$$



## ANNEXE C. CALORIMETRIE DES MELANGES

$$E = \frac{x_{mg\_théo} - x_{mg\_exp}}{x_{mg\_théo}} \times 100 \quad (C.9)$$

où  $Q_{\text{glace}}$  est la chaleur nécessaire pour fondre l'échantillon. Finalement les résultats peuvent être visualisés dans le tableau C.1 qui comprend les conditions initiales des expériences et les résultats finals.

**Tableau C. 1.** Résultats de la calorimétrie de mélanges

No	$m_{ec}$ [kg]	$m_{mix}$ [kg]	T s [°C]	DT <sub>max</sub> [°C]	T <sub>eq</sub> [°C]	t <sub>e</sub> [s]	Q <sub>e</sub> [J]	Q <sub>mix</sub> [J]	X <sub>mg_exp</sub>	X <sub>mg_théo</sub>	E %
1	0,075	0,869	-3,5	5,01	43,3	355	16431,5	12202,2	0,17	0,16	-4,4
2	0,066	0,911	-4,3	4,44	38,3	315	15284,5	9634,8	0,26	0,25	-3,8
3	0,051	0,866	-5,6	4,47	45,2	265	14884,6	8753,5	0,36	0,34	-6
4	0,05	0,898	-6,9	4,44	43,5	235	15495,8	8277,8	0,43	0,4	-8

Les valeurs obtenues expérimentalement montrent une continuité avec les résultats théoriques obtenues à partir de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique. A partir des valeurs d'erreurs, on constate que, dans le cas du sorbet citron, la méthode d'estimation de la fraction glace à partir d'un bilan de soluté, donne une véritable approximation à la réalité et il est utilisable pour la modélisation du procédé.

- **Conclusion de calorimétrie des mélanges**

L'appareil développé à partir de la méthode de calorimétrie de mélange a montré son efficacité pour la caractérisation de la fraction de glace contenue dans la structure du sorbet citron utilisé. Cette caractérisation a permis de corroborer et constaté la fraction de glace théorique calculé à partir de l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique donnée pour la courbe de "liquidus" vue dans le point 4.1.2. Ainsi, avec une incertitude moyenne de 5 % on est capable de prédire à partir de l'utilisation de l'équation C.1 en combinaison avec la courbe de la figure 4.10.

Cette technologie conçue dans notre laboratoire est intéressant pour l'extrapoler comme un capteur en ligne pour l'identification de phase congelé d'un sorbet ou une crème glacée dans une future.



### Résumé

L'étape de pré-cristallisation au sein d'un échangeur à surface raclée est une étape clé du procédé de production de crème glacée et a une forte influence sur la qualité finale du produit. Ce travail de thèse, effectué dans le cadre du projet européen CAFE, est dédié à la caractérisation et la modélisation de ce procédé de cristallisation afin de contribuer au développement d'un contrôleur. Une caractérisation expérimentale du procédé a été effectuée et a permis de déterminer l'influence des différentes variables de contrôle sur des critères tels que la fraction de glace, le diamètre moyen des particules et la performance énergétique du procédé. Un modèle dynamique adapté au contrôle, basé sur la résolution du bilan de population par la méthode des moments, a été développé et a été validé expérimentalement. Enfin, une analyse du coût énergétique et des pistes d'amélioration de la performance sont également proposées.

### CONTROL CONTRIBUTION BY MODELING OF A CONTINUOUS CRYSTALLIZATION PROCESS

#### Abstract

Freezing is an important step in the manufacturing process of ice-cream and sorbet, since the operating conditions have a strong influence on the micro-structure, and consequently on the sensorial attributes of the final product. This work presents an experimental characterization of a continuous sorbet crystallization process in a scraped surface heat exchanger. The influence of the operating conditions on the final product characteristics (ice fraction, ice crystal size) and energy consumption have been characterized. A modeling approach of the crystallization process based on the moments method coupled with a dynamic model of the refrigerating system is proposed. The global model has been validated with experimental data, and a strategy of energy optimization taking into account the final quality of the product is finally presented.

**Mots clés:** Cristallisation, modèle, contrôle, crème glacée, taille de cristal

**Keywords:** Crystallization, model, control, ice cream, crystal size