



Année Universitaire : 2009-2010

**Filière ingénieurs
Industries Agricoles et Alimentaires**



Rapport de stage de fin d'études

OPTIMISATION DE LA CRISTALLISATION

Réalisé par l'élève-ingénieur:

Nom et prénom : HASSANI ALAOUI Abdelaziz

Encadré par:

- **Nom et prénom : Abdellatif CHAH – COSUMAR -**
- **Nom et prénom : Omar EL FARRICHA - FST Fès -**

Présenté le 29 Juin 2010 devant le jury composé de:

- **M^r. Omar EL FARRICHA**
- **M^{me}. Jamila ALFIGUIGUI**
- **M^{me}. Nadia MAAZOUZI**
- **M^r. Abdelhadi LHASSANI**
- **M^r. Abdellatif CHAH**

Stage effectué à : COSUMAR –Casablanca–



Filière Ingénieurs IAA

Mémoire de fin d'études pour l'obtention du Diplôme d'ingénieur d'Etat

Nom et prénom: HASSANI ALAOUI Abdelaziz

Année Universitaire : 2009/2010

Titre: OPTIMISATION DE LA CRISTALLISATION

Résumé

Ce projet a pour objectif l'optimisation de granulométrie du sucre de l'appareil à cuire R3, afin de minimiser le coefficient de variation de la distribution granulométrique.

De par la complexité des phénomènes physicochimiques mis en jeu lors d'une cristallisation industrielle, il est nécessaire de développer une approche de modélisation. Cette approche permet de contrôler et de maîtriser la granulométrie du sucre granulé. Nous avons pour cela axé notre étude sur la modélisation du coefficient de variation par le biais d'un plan d'expériences.

En effet, nous avons mené un plan de criblage dont l'objectif est de sélectionner les facteurs potentiellement influents sur le CV. Il s'agit d'une étude préliminaire devant servir à préparer un plan d'optimisation. Un tel plan permet de déterminer les réglages des facteurs jugés influents donnant un coefficient de variation optimal. La valeur minimale du coefficient de variation est obtenue dans le cas où la durée de grossissement est abaissée de son niveau moyen à son niveau bas. De la même manière la valeur du CV diminue quand la durée de broyage tend vers le niveau bas. Une quantité de semence au niveau moyen s'avère convenable pour minimiser le coefficient de variation.

Ce travail est original de deux points de vue : tout d'abord par l'expérimentation industrielle associée, intégrant l'appareil à cuire R3 ; ensuite par le choix de la démarche expérimentale.

Mots clés: Appareil à cuire, granulométrie, coefficient de variation, cristallisation, optimisation, plan d'expériences.



SOMMAIRE

Introduction.....	3
Chapitre préliminaire : présentation de l'établissement d'accueil	3
I. Présentation de COSUMAR.....	3
1. Situation géographique.....	3
2. Historique.....	3
3. Matière Première.....	3
4. Produits de la COSUMAR.....	4
5. Organigramme.....	4
II. Processus Raffinerie.....	5
1. Généralités sur les plantes Saccharifères.....	5
a. la canne à sucre	5
b. la betterave.....	5
2. Composition du sucre brut	5
3. Processus de fabrication	6
a. Affinage.....	6
b. Carbonatation.....	6
c. Filtration mécanique	7
d. Décoloration	7
e. Evaporation.....	7
f. Cristallisation	8
g. Malaxage	8



<i>b</i> .Turbinage	8
<i>i</i> .Séchage et refroidissement.....	8
Partie I : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE.....	10
Chapitre I : Notions théoriques sur la cristallisation.....	11
Introduction.....	11
I. Solubilité et sursaturation	11
II. Nucléations	14
1.Nucléation primaire homogène et hétérogène.....	15
2.Nucléation secondaire.....	16
III. Croissance cristalline.....	17
IV. Forme du cristal.....	18
V. Evolution des systèmes	18
1.Agglomération.....	18
2.Brisure.....	19
3.Inclusion.....	19
4.Mûrissement d'Ostwald	19
Conclusion.....	20
Chapitre II :Cristallisation du sucre en milieu industriel	21
Introduction.....	21
I. Atelier de cristallisation de la COSUMAR	21
II. Cristallisation en trois jets.....	22
III. Appareil à cuire en discontinu.....	23
IV. Les différentes phases d'une cristallisation.....	24
1. Formation du pied de cuite	25
2.Grainage	25
3.Grossissement des cristaux	26
4.Montée de la cuite.....	26
5.Serrage de la cuite	26
6.Coulage et lavage de la cuite	26



7. Evolution des paramètres.....	27
V. Paramètres physiques affectant la cristallisation	27
1. Sursaturation.....	27
2. Viscosité	27
3. Agitation.....	27
4. Température	27
5. Présence de cristaux en suspension	28
6. Pureté.....	28
Conclusion	28
Partie II : OPTIMISATION DE LA CRISTALLIATION	29
Chapitre I : Notions sur la distribution granulométrique.....	30
Introduction.....	30
I. Expression des résultats	31
II. Paramètres de la distribution.....	32
1. Coefficient de variation.....	32
2. Ouverture moyenne	32
III. Les facteurs qui influencent la granulométrie.....	32
1. Conduite de la cristallisation	32
2. Qualité de la semence.....	33
3. Présence d'impuretés.....	33
Conclusion	34
Chapitre II : Notions sur les plans d'expériences	35
Introduction.....	35
I. La méthode des plans d'expériences	35
1. Préparation de l'expérimentation	36
2. Analyse des résultats.....	36
3. Acquisition progressive des connaissances	36
II. Terminologie.....	37
1. Objectifs	37
2. Réponse	37
3. Facteurs	37



4. Domaine expérimental.....	38
III. Modélisation mathématique.....	38
Chapitre III : Optimisation de la cristallisation à COSUMAR.....	40
Introduction.....	40
I. Formalisation du problème.....	41
1. Objectifs assignés au plan d'expériences	41
2. Facteurs	41
<i>a</i> .Durée de broyage de la semence	41
<i>b</i> . Sursaturation au grainage.....	41
<i>c</i> . Quantité de semence	41
<i>d</i> . Température des platulaires	41
<i>e</i> . Durée de grossissement	41
II. Plan de criblage	42
1. Construction de la matrice d'expériences	42
2. Intepretation des résultats	44
III. Plan d'optimisation	46
1. Construction de la matrice du plan composite centré.....	46
2. Intepretation et validation des résultats	47
<i>a</i> . Calcul des coefficient et influence des facteurs	47
<i>b</i> . Analyse de la régression.....	48
<i>c</i> . Distribution des résidus	49
<i>d</i> . Test de validation expérimentale	51
3. Représentation des surfaces de réponse.....	52
4. Optimisation du coefficient de variation	53
Conclusion de l'étude.....	55

CONCLUSION

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ANNEXES



INTRODUCTION

L'industrie sucrière est l'une des plus anciennes industries agro-alimentaires. Cette industrie mobilise d'importants secteurs industriels notamment les sucreries qui produisent le sucre brut à partir de betterave ou de canne à sucre et les raffineries qui transforment le sucre brut en sucre raffiné .

Pionnière au Maroc dans ce secteur d'activité et première entreprise de la filière sucrière, la COMPAGNIE SUCRIERE MAROCAINE DE RAFFINAGE – COSUMAR- produit depuis 80 ans, du pain de sucre. Un produit riche en valeurs traditionnelles, dont les habitudes de consommation est séculaire et fidèle à cette tradition, COSUMAR s'est installée dans la modernité, en proposant toute gamme de sucre, adaptée aux habitudes de consommation d'aujourd'hui.

Dans un cadre de compétitivité COSUMAR se voit donc dans l'obligation d'assurer sa mise à niveau par l'optimisation de ses moyens humains, techniques et matériels, en vue d'asseoir sa compétitivité dans un contexte où seuls les plus performants seront viables.

C'est dans ce cadre que la société COSUMAR a pris l'initiative de maîtriser la distribution des tailles des granules du sucre et des formes extérieures des cristaux. Cette distribution granulométrique est à l'heure actuelle un argument commercial dont l'importance se rapproche de celle des critères de pureté à maintenir évidemment à un très haut niveau.

C'est pour cette raison que nous avons décidé d'étudier et de maîtriser les paramètres de la cristallisation, en vue de produire des cristaux uniformes et de taille régulière. Dans cette optique 5 facteurs ont pu être étudiés par le biais d'un plan d'expériences afin de prévoir et de maîtriser la granulométrie du sucre issu de la l'appareil à cuire R3.

La démarche traditionnelle pas à pas est basée sur le savoir-faire et le bon sens de l'expérimentateur. Cela engendre de nombreux essais, un coût et un temps considérable pour atteindre parfois des résultats difficilement interprétables. Cependant, les exigences du client sur le plan qualité et goût d'une part et la course des entreprises vers des réductions des coûts de développement d'autre part,



nécessitent l'utilisation d'une approche scientifiquement rigoureuse, à savoir, les **plans d'expériences**.

Notre choix des plans d'expériences est basé sur le fait que ces derniers peuvent constituer un outil capable de répondre à toutes nos exigences dans un laps de temps le plus court possible. L'objectif du plan d'expériences est donc de répondre à nos questions en proposant des méthodes mathématiques permettant d'organiser un nombre réduit d'essais expérimentaux dont les résultats sont exploitables.

Notre mission au sein de la COSUMAR consiste à discerner les effets de 5 facteurs sur la cristallisation en vue de **contrôler** et de **maîtriser** la granulométrie du sucre granulé issu de l'**appareil à cuire R3**, et d'offrir un produit à la fois constant et de haute qualité dont le **coefficient de variation -C.V- de la distribution granulométrique ne dépasse pas 30%**.

Ce travail est original de deux points de vue : tout d'abord par l'expérimentation industrielle associée, intégrant l'appareil à cuire R3 ; ensuite par le choix de la démarche expérimentale.

Dans ce mémoire, il sera question de présenter sommairement l'établissement d'accueil et le procédé de fabrication du sucre au sein de COSUMAR.

Dans un premier temps nous allons présenter des notions fondamentales de la cristallisation en solution et les règles physicochimiques qui régissent ce phénomène. Les cinétiques de cristallisation y sont décrites : cinétique de nucléation, cinétique de croissance cristalline et cinétique d'agglomération. Nous proposons aussi dans cette première partie des notions pratiques sur la cristallisation, une description de la cristallisation discontinue, et une description de l'atelier de cristallisation de COSUMAR.

Dans une deuxième partie, il sera question de présenter l'étude que nous avons menée au sein de COSUMAR qui touche à différents aspects de l'optimisation de la granulométrie du sucre allant de la présentation du concept des plans d'expériences jusqu'à la discussion de l'effet de chacun des 5 facteurs sur le coefficient de variation de la granulométrie et la proposition des réglages donnant un coefficient de variation optimal (minimal) permettant à COSUMAR de remédier aux problèmes liés à l'hétérogénéité de la granulométrie du sucre.

CHAPITRE PRELIMINAIRE : PRESENTATION DE L'ETABLISSEMENT D'ACCUEIL

I- PRESENTATION DE COSUMAR

La **COSUMAR** (unité de Casablanca) est une société anonyme au capital de 419105700 Dhs dont l'objectif est le raffinage du sucre brut, le conditionnement et la commercialisation du sucre raffiné.

1- Situation géographique

Elle est située au quartier industriel des Roches Noires ; et s'étend sur une superficie de 20 hectares, laissant au Nord l'océan atlantique, à l'Est le quartier Ain Sebâa, au sud hay Mohammédi et à l'Ouest les Roches Noires.

2- Historique

Fondée en **1929** par la société Saint-Louis de Marseille sous le sigle COSUMA.

En **1967**, l'état marocain devient actionnaire à 50 % du capital de la COSUMA d'où le nom COSUMAR.

En **1985**, prise de contrôle du capital COSUMAR par le groupe ONA et introduction en bourse.

En **1993**, fusion de la raffinerie avec les sucreries de Doukkala (Sidi Bennour et Zémamra).

En **2003**, certification ISO 9001 version 2000 par l'organisme français AFAQ.

En **2005**, acquisition des 4 sociétés sucrières ex publiques SUTA, SUNABEL, SURAC et SUCRAFOR.

3- Matière première

L'autosuffisance du Maroc en sucre représente 45%, les 55% sont importés du Brésil, de l'Australie et l'Amérique du sud.

4- Produits de la COSUMAR

La COSUMAR commercialise un tonnage de 727 388 524 tonnes de sucre raffiné par an, dont 52,75% de pain de sucre, 33,25% de sucre granulé et 14% de sucre en lingots ou en morceaux.

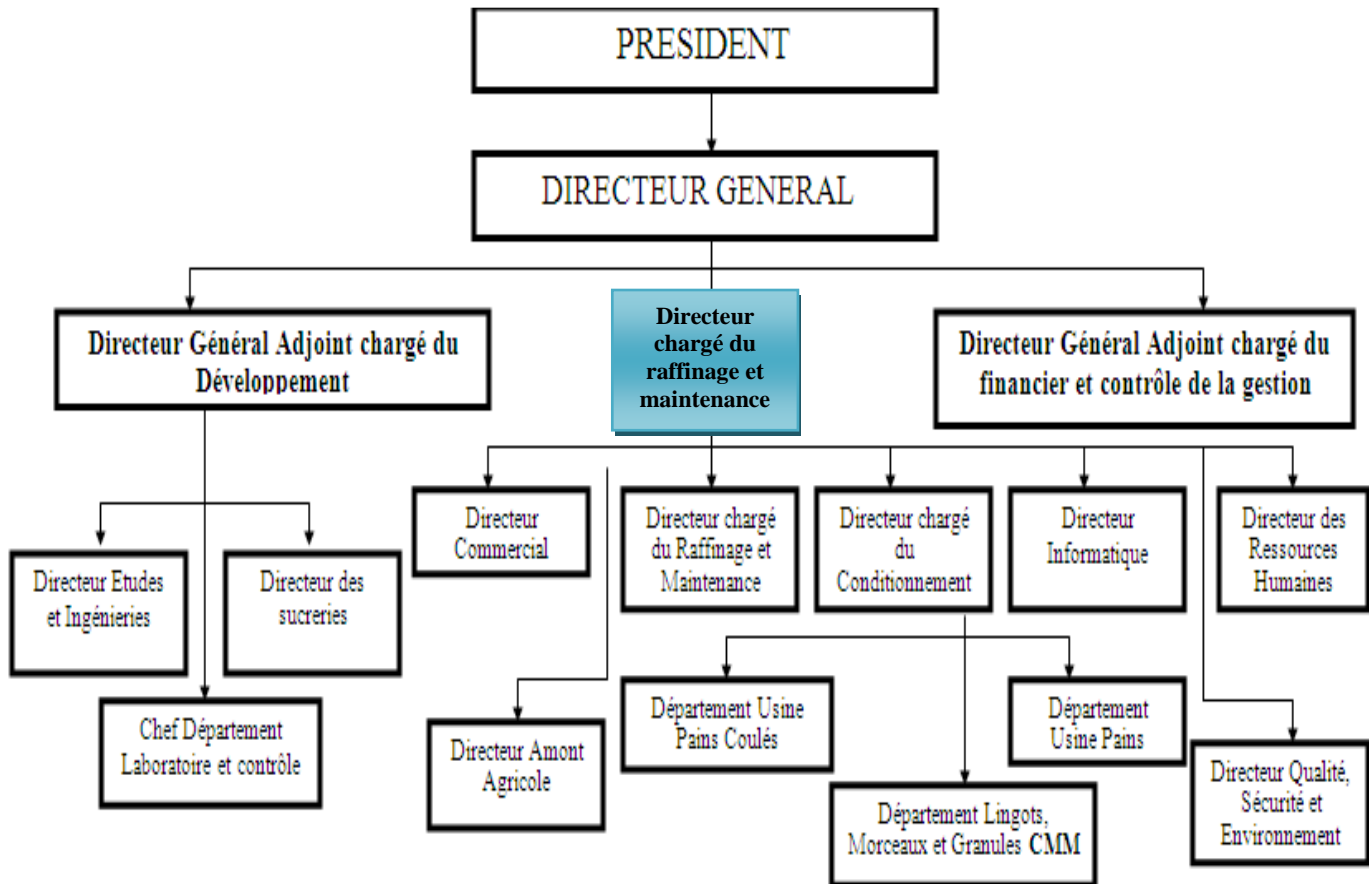


Figure 1 : Gamme de sucre produites par la COSUMAR

- **pains de sucre** de 2KG en sacs de 64KG, ou en carton de 20 et 24 KG.
- **Sucre en lingot et morceaux** en boîte de 1KG, ou en fardeaux de 5KG.
- **Sucre granulé** en sacs de 50 KG ou en sachet de 1 et 2 KG.



5- Organigramme



1- Généralités sur les plantes saccharifères

a- La canne à sucre

On distingue 3 parties : la tige, les racines et les feuilles. La tige forme un tube d'écorce dur remplie de fibre plus tendre, où se trouve le sucre. Cette tige peut atteindre 4 à 5m de long pour 4 à 6cm de diamètre, elle est constituée d'une succession de nœuds et d'entre-nœuds où est stocké le saccharose.

b- La betterave

Se présente sous la forme d'un bambou pouvant atteindre la hauteur de 1m 50 à 3m, de 2 cm à 5 cm de diamètre. Le sucre formé s'accumule dans la racine.

2- Composition du sucre brut

Sa saveur est douce, il est très soluble dans l'éther, il ne peut entrer en fermentation alcoolique qu'après inversion en glucose. Cette propriété représente un grand avantage pour sa conservation. Les cristaux de saccharose fondent à une température de 160 °C, si cette température est maintenue, il y aura altération et transformation en glucose.

Tableau 1 : Caractéristiques du SACCHAROSE



Saccharose	
Formule chimique	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁
Densité	1.6
P.M	342 g
Température de fusion	160°C
Aspect	Cristaux blanc
Odeur	Indore
PH	7
Indice de réfraction	$N_D^{20} = 1,33299$
Solubilité	1970g/l dans l'eau 15°C

Sous le nom de glucose sont désignés l'ensemble des sucres réducteurs ou encore les sucres non cristallisables. Ils résultent de l'inversion du saccharose. Ils sont donc aussi appelés les sucres invertis.

Le non sucre organique ou matières organiques comprennent :

- ✓ des acides organiques libres ou composés aux bases minérales des sels ;
- ✓ des produits de la décomposition du saccharose provenant de la fabrication du sucre brut ;
- ✓ des gommes, des résines et de cellulose ;
- ✓ des bactéries (ou source d'inversion, moisissures) et de matières colorantes.

Le sucre renferme de l'eau dont le pourcentage varie entre 15 et 20%.

3- Processus de fabrication

Le sucre brut (sucre roux) constitue la matière première de la raffinerie, il est stocké dans les grands magasins "silos" dont la capacité est de 75000 tonnes.

a- AFFINAGE

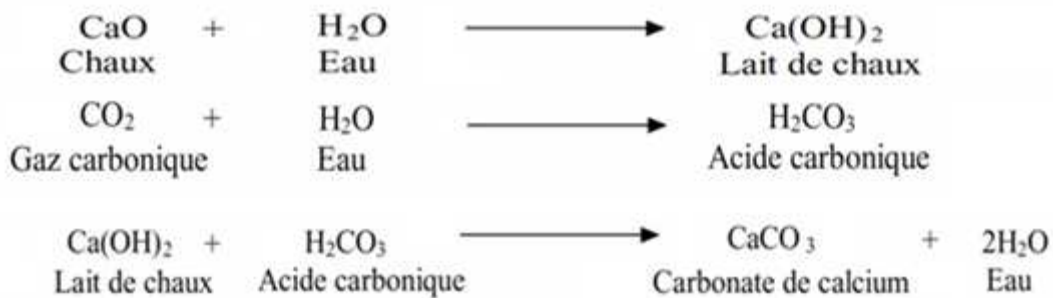
L'affinage permet d'enlever le maximum de coloration (impuretés externes des cristaux). Cette première étape vise à décaper une gangue (composée d'impuretés externes), se trouvant autour des cristaux de sucre par frottements. Elle consiste à mélanger dans des empâteurs le sucre brut avec l'égout riche, l'**empattage**.

Le sucre brut dégagé de sa gangue donne le sucre affiné, mais l'affinage n'a aucune action sur les impuretés incluses dans le système cristallin. Pour attaquer ces impuretés, il faut défaire le système cristallin. Cette opération se fait en dissolvant le sucre affiné dans une quantité d'eau sucrée (à Brix 25 à 50) sous saturée, ne contenant pas de sels minéraux solubles. Le sirop de la fonte obtenu est appelé **Commune non carbonatée**.

b- CARBONATATION

Le principe de la carbonatation repose sur l'ajout du lait de chaux pour former un précipité de carbonate de chaux au moyen du gaz carbonique. Cette opération est effectuée dans une série de trois appareils appelés **chaudières à carbonater**.

L'hydroxyde de calcium se combine avec l'acide carbonique pour former un précipité carbonate de calcium CaCO_3 qui absorbe les matières colorantes, précipite les sels minéraux et joue un rôle d'adjuvant dans la filtration.



A la sortie, le sirop obtenu est appelé **commune carbonatée**.

c- FILTRATION MECANIQUE

Cette étape permet l'élimination du reste des impuretés internes, qui ne se sont pas précipitées lors de la carbonatation, par séparation liquide solide à l'aide de filtres. L'objectif de la filtration est la production d'un sirop carbonaté limpide.



Figure 2 : Filtration mécanique à l'aide de filtres Diasters

d- DECOLORATION

La commune filtrée bien qu'elle est limpide et d'une pureté de plus de 99%, la cristallisation ne donnerait pas encore de cristaux parfaitement blancs à cause des matières colorantes n'ayant pu être enlevées par la carbonatation ou retenues par la filtration. C'est pourquoi, l'on procède à la décoloration de cette commune filtrée par son passage à travers des résines anioniques fortement basiques.

Après cette étape on obtient un **raffinat non concentré**.



e- EVAPORATION

Cette étape a pour but de concentrer et augmenter le Brix du sirop venant de la décoloration en le réchauffant et l'évaporant pour le préparer à l'étape suivante qui est la cristallisation. Autrement dit il est intéressant dans un souci d'économie d'énergie d'évaporer le sirop décoloré afin d'augmenter son Brix de 63 à 74 avant de commencer la cristallisation.

La COSUMAR dispose de trois stations de conditionnement, selon le produit fini désiré. La station du sucre granulé, la station des pains turbinés et la station des pains coulés. Le sirop évaporé est partagé donc sur ces 3 stations. Nous présentons par la suite le processus de la station du sucre granulé.

f- CRISTALLISATION

La cristallisation est une opération de séparation et de purification. Elle a pour but d'extraire, avec un rendement aussi élevé que possible, le sucre dissous dans le sirop sous forme cristallisée. Les non sucre sont concentrés dans une solution épuisée : la **mélasse**. La cristallisation se fait dans des appareils à cuire appelés **cuites** fonctionnant sous vide, où la raffine circule dans les tubes et la vapeur de chauffage circule dans l'espace intertubulaire.

g- MALAXAGE

L'étape du malaxage permet de continuer le processus de cristallisation pour avoir le maximum de sucre possible, c'est à dire épuiser l'eau mère du sirop, il faut refroidir la masse cuite sortie de cristalliseur avant de la turbiner en agitant avec une vitesse convenable. Cette opération se fait dans des appareils appelés **malaxeurs**.

h- TURBINAGE

Pour séparer les cristaux de sucre de l'eau mère visqueuse, on utilise l'action énergétique de la force centrifuge.

Durant l'essorage, l'égout pauvre est progressivement chassé de la masse cuite, quand cette phase est terminée, il reste une fine pellicule d'égout adhérent à la surface des cristaux. Pour obtenir une surface parfaitement blanche, on élimine cette pellicule par clairçage, où on arrose la masse de cristaux avec de l'eau chaude, cette eau traverse le sucre contenu dans la centrifugeuse et dissout la couche d'égout adhérente pour former un égout riche qui est chassé hors de la masse de sucre.

i- SECHAGE ET REFROIDISSEMENT

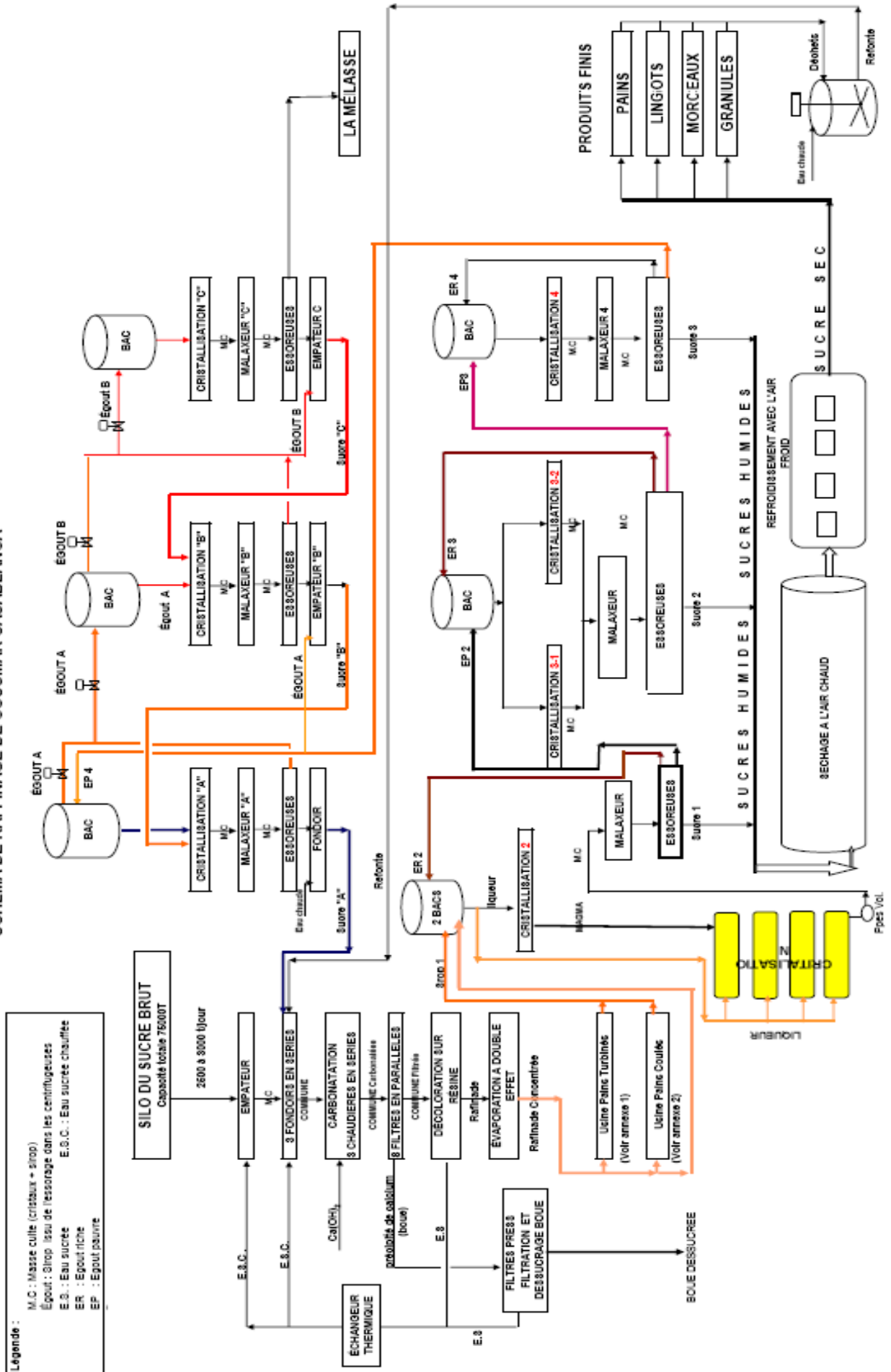
Dans le **sécheur** tambour le sucre est séché à contre courant par rapport à l'air de séchage, grâce à la rotation du tambour.

A l'extrémité du tambour, le sucre séché tombe dans un tamiseur situé dans le caisson de décharge ou les grumeaux sont séparés par criblage.

A l'intérieure du **refroidisseur**, le sucre est fluidisé à l'aide de l'air de refroidissement puis évacué à travers l'écluse à roue cellulaire disposée à la sortie. L'écluse à roue cellulaire jette le sucre séché et refroidi dans le transporteur à godet qui conduit le sucre vers la bande de conditionnement.

Les différentes étapes du processus de fabrication du sucre sont présentées sur le schéma ci-dessous.

SCHEMA DE RAFFINAGE DE COSUMAR CASABLANCA





– PARTIE I –

ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

CHAPITRE I : NOTIONS THEORIQUES SUR LA CRISTALLISATION

Introduction

La cristallisation est une opération unitaire de génie chimique. C'est un changement d'état qui conduit, une phase gazeuse ou liquide, à une phase solide appelée cristal, de structure régulière et organisée.



Nous ne distinguons généralement que trois types de cristallisation selon que celles-ci aient lieu en **phase gazeuse**, en **bain fondu** et en **solution**. Les mécanismes fondamentaux de ces trois cristallisations sont cependant similaires, à savoir deux étapes essentielles dans l'apparition du solide. La première étape, la **nucléation** est celle, au cours de laquelle les cristaux vont apparaître et la seconde étape est celle de leur **croissance**, les cristaux vont alors se développer dans la solution.

Les cristaux produits à l'échelle industrielle doivent répondre à des spécifications bien déterminées comme la pureté, la taille, la solidité, etc. Il est donc nécessaire d'avoir de bonnes bases théoriques sur les processus de nucléation et de croissance pour améliorer le produit final. Les paramètres de base sont la concentration et la sursaturation.

I- Solubilité et sursaturation

Une solution ayant une concentration en soluté inférieure à sa solubilité (dans la solution) pourra dissoudre ce soluté à l'état solide. Une solution de concentration en soluté supérieure à sa solubilité n'est pas à l'équilibre et aura tendance à évacuer l'excédent de soluté sous forme solide. Nous pouvons ainsi constater que dans le cas d'une cinétique infiniment lente d'évacuation du soluté en excès, l'expérimentateur aura l'impression d'observer une solution à l'équilibre, une telle solution est dite **métastable**. L'ajout d'un cristal dans la solution métastable déclenche l'évacuation du soluté qui s'y trouve en excès. Cet apport de germe cristallin aura pour conséquence de faire tendre la concentration de ce soluté dans la solution métastable vers sa solubilité. La solubilité est souvent une fonction croissante de la température, et c'est le cas pour le système eau – saccharose (12), (**figure 3**)

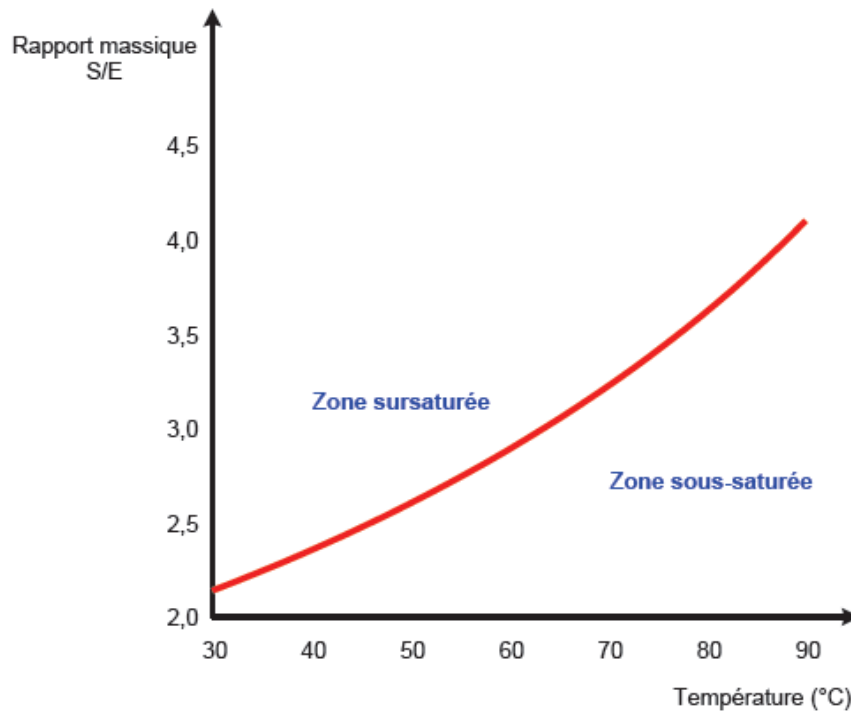


Figure 4 : solubilité du système eau – saccharose

Cette courbe de solubilité du mélange de saccharose dans l'eau délimite la zone sous-saturée et la zone sursaturée.

La formation de cristaux de soluté dans la solution sursaturée résulte d'un retour nécessaire à l'état d'équilibre. Cet état d'équilibre se situe à la frontière des deux zones sur la courbe de solubilité. La cristallisation d'un soluté requiert l'état de sursaturation de la solution (11). De ce fait, l'estimation de la solubilité du soluté est une étape nécessaire mais non suffisante à la réalisation d'une cristallisation contrôlée.

Dans notre cas, l'estimation de la solubilité du saccharose est complexe. Elle dépend de plusieurs facteurs (1), (12), (18), (19) :

- ✓ la nature du solvant (eau),
- ✓ la nature du soluté (saccharose dissous),
- ✓ la composition en impuretés de la solution,
- ✓ la température.

On utilise un coefficient de saturation CS de la solution qui permet de déterminer l'influence des impuretés sur la solubilité du saccharose. CS caractérise donc l'effet global des impuretés en présence dans la solution sur la solubilité du saccharose.



Le coefficient de saturation de la solution est défini par :

$$CS = \left[\frac{\left(\frac{m_S}{m_E} \right)_{\text{impure}}}{\left(\frac{m_S}{m_E} \right)_{\text{pure}}} \right]_T$$

m_S : masse de saccharose

m_E : masse d'eau

Le rapport massique du saccharose sur l'eau, en solution saturée impure, noté $\left(\frac{m_S}{m_E} \right)_{\text{impure}}$ est égal au rapport massique du saccharose sur l'eau en solution saturée pure, noté $\left(\frac{m_S}{m_E} \right)_{\text{pure}}$ multiplié par le coefficient de saturation CS . Cela signifie que la solubilité du saccharose en milieu impur est égale à la solubilité du saccharose dans l'eau pondérée d'un facteur multiplicatif. Ce facteur est généralement inférieur à l'unité pour des solutions de saccharose provenant de la canne à sucre. La présence d'impuretés diminue ainsi la solubilité des solutions techniques industrielles (6), (7), (12), (17).

La sursaturation est exprimée communément en fonction de la différence de concentration, ΔC , ou en fonction du rapport de la sursaturation, S , et quelquefois en fonction d'une quantité appelée sursaturation absolue ou relative, σ . Si C est la concentration du soluté dans la solution, et C^* sa solubilité à une température donnée, ces grandeurs sont définies par :

$$\Delta C = C - C^*$$

$$S = \frac{C}{C^*}$$

$$\sigma = \frac{\Delta C}{C^*} = S - 1$$

Et la différence de potentiel chimique est définie par :

$$\Delta\mu = k.T \cdot \ln \frac{C}{C^*}$$

Avec :

k : constante de Boltzmann [1,38 10⁻²³ J.K⁻¹]

T : température [°K]

C^* : concentration à saturation [kg.m⁻³]



C : concentration [kg.m⁻³]

II- Nucléations

En cristallisation industrielle et plus spécialement en solution, la nucléation est l'étape générant les germes. Il est important de maîtriser cette étape afin de prévoir et de contrôler la granulométrie finale du produit cristallisé, la morphologie, la pureté, etc.

Le processus de nucléation est la formation de nouveaux cristaux dans une solution contenant ou pas des cristaux. L'état de sursaturation est une condition nécessaire mais non suffisante pour que la cristallisation commence au sein de la solution. Il a été possible de déterminer, par l'étude de divers phénomènes physiques, que l'apparition des cristaux dans une solution sursaturée de saccharose procède d'une organisation préliminaire des molécules sous forme d'agrégats ou essaims, au cours d'une période de latence. Ces essaims sont de petits agrégats moléculaires présents à un moment donné dans la solution et qui, par le hasard des collisions moléculaires, ne donneront pas forcément naissance à des **nucléis**; ou bien ils seront captés par des protonucléis ou des nucléis, ou bien ils se briseront en molécules simples pour retourner en solution. Les protonucléis sont quant à eux des agrégats moléculaires ou essaims privilégiés qui, en fonction des conditions d'état de la solution (forme du récipient, agitation etc.), donneront naissance à des nucléis. L'idée que l'on peut se faire de la structure des protonucléis et, d'une façon générale des essaims de la solution, est l'association par des liens hydrogène des molécules entre-elles et avec des molécules de solvant (eau). La dernière étape du processus est celle de la croissance des nucléis pour former finalement les cristaux. Divers mécanismes peuvent amener à la formation de germes, et l'on distingue donc plusieurs types de nucléations, (**figure 4**).

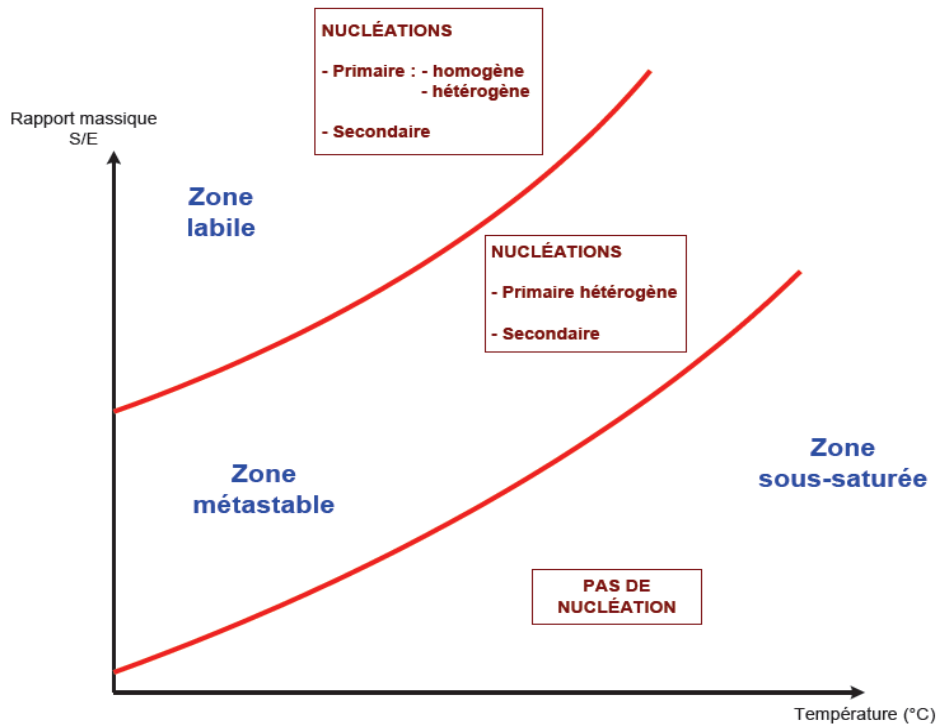


Figure 5 : Différentes zones de sursaturation et types de nucléation

La zone métastable est présentée comme le lieu des états où la solution est sursaturée et où cependant la nucléation n'apparaît pas spontanément. L'état est thermodynamiquement instable, le système tend à revenir à l'équilibre, mais avec une cinétique très lente. En fait, il existe autant de zones métastables qu'il y a de processus de nucléation (5). Pour notre part, nous en avons retenu trois, les **nucléations primaires homogène et hétérogène**, et la **nucléation secondaire**.

1- Nucléation primaire homogène et hétérogène

Dans le cas de la nucléation primaire, l'apparition des germes se fait dans un milieu où n'existe encore aucun germe et aucun cristal.

- ✓ Si les germes se forment dans le volume de la solution, la nucléation est dite **primaire homogène** ;
- ✓ Si, au contraire, ils se forment sur les parois des cristalliseurs, sur les agitateurs ou sur des particules solides présentes dans la solution, la nucléation est dite **primaire hétérogène** (22).

La nucléation primaire, débute par le regroupement moléculaire sous forme d'agrégats ou d'essaims, qui permet de former des groupements de molécules comme décrit plus tôt. L'association de ces groupements provoque la création de masses plus importantes, qui deviennent assez volumineuses pour excéder la barrière énergétique requise à la nucléation. Lorsque la solution possède une énergie suffisante (sursaturation), l'association des molécules est favorisée au dépend



de la dissociation et les groupements seront appelés à grossir à une taille suffisante, leur permettant de demeurer stables dans le milieu sursaturé. Il existe une probabilité, selon la concentration en soluté et l'énergie de la solution, que quelques groupements deviennent assez volumineux pour atteindre la taille critique du nucléi (16). Un groupement possédant une taille inférieure à cette taille critique est habituellement dissocié tandis qu'un autre d'une taille supérieure sera appelé à croître et devenir un nucléi stable. Dans cet ordre d'idée, on peut comprendre que le taux de nucléation demeure faible tant que les molécules ou les groupements n'ont pas franchi la barrière d'énergie. Après avoir vaincu cette barrière, la nucléation devient beaucoup plus rapide et tend même à devenir spontanée.

La nucléation primaire est absente des procédés continus, sauf cas exceptionnels où l'on aurait des augmentations locales importantes de la sursaturation. En procédés discontinus, la nucléation primaire est contrôlée, voire évitée par l'ensemencement.

Néanmoins, l'apparition spontanée des premiers cristaux peut se faire par un processus de nucléation primaire hétérogène. En effet il est difficile d'éviter la présence de poussières ou de particules résiduelles de l'opération de cristallisation précédente et l'agitation elle-même induit ces effets externes par rotation (14).

2- Nucléation secondaire

Deux phénomènes peuvent entraîner une nucléation secondaire :

- ✓ lorsqu'il y a **ensemencement** : les cristaux introduits peuvent avoir des microcristaux collés à leur surface,
- ✓ lorsqu'il y a **brisure** des cristaux au cours de l'agitation du mélange (macro-attribution).

En effet, lorsque la suspension est dense, les chocs entre cristaux libèrent des particules de taille microscopique qui peuvent se mettre à croître. Il y a alors nucléation secondaire. Ce type de nucléation n'existe pas en phase vapeur mais peut avoir une importance considérable en solution (22).

La nucléation secondaire peut se produire à très faible sursaturation (13), puisque ce sont les germes introduits dans la solution qui vont générer des cristaux. Dans les suspensions à forte densité de cristaux, les chocs peuvent également entraîner un phénomène de nucléation secondaire (brisure, attrition, etc.).

La cristallisation secondaire est un phénomène qui s'opère en présence de cristaux déjà en place dans un milieu sursaturé. Elle peut être générée grâce aux collisions entre les cristaux et d'autres composés agissant comme catalyseur (autres cristaux, parois du récipient, palle servant à l'agitation). L'énergie causée par les collisions peut engendrer soit la production de petits fragments qui seront amenés à leur tour à grossir et à entrer en collision ou soit favoriser l'adsorption orientée de couches de cristaux, formant ainsi des embryons de taille stable dans la solution. La nucléation secondaire n'a pas été observée dans des liquides stagnants et ne pourrait pas avoir lieu. Ce



mécanisme de nucléation devient important lorsque la suspension de cristaux existants est agitée mécaniquement. Le degré de sursaturation influe aussi sur la multiplication des cristaux.

La cristallisation secondaire se produit souvent suite au fait que les cristaux existants possèdent quelques défauts de structure. En pratique, il n'y a pas de cristaux parfaits où toutes les molécules sont régulièrement arrangées en ordre suivant les trois directions de l'espace. Il existe toujours des défauts d'ordonnement, des lacunes ou des sites moléculaires vacants qui sont à l'origine des dislocations. Ces dislocations, qui viennent toujours se terminer à la surface du cristal, sont à l'origine des propriétés des cristaux, en particulier de leur faible dureté (un cristal de saccharose parfait posséderait une dureté considérable). Ces dislocations sont des sites actifs en surface où peuvent s'accrocher soit de nouvelles molécules de saccharose (grossissement des cristaux), soit des molécules étrangères au réseau (incorporation d'impuretés dans le réseau). Un état cristallin parfait correspond à un minimum d'énergie. Toute inclusion d'une impureté dans le réseau entraîne donc généralement une augmentation de l'énergie du système. Si une molécule étrangère (impureté) et une molécule de saccharose se présentent en même temps pour l'incorporation dans le milieu cristallin, le choix se fait donc toujours en faveur du saccharose de telle sorte qu'au cours de la cristallisation, tout se passe comme si le réseau cristallin opposait une barrière énergétique à l'incorporation des impuretés qui demeurent donc en solution. En ce sens, la cristallisation constitue une des meilleures purifications possibles.

En milieu industriel, l'objectif de la sucrerie est de faire de gros cristaux, d'une taille comprise entre 500 μ m et 800 μ m. Or, pour contrôler la taille, il faut maîtriser le nombre de cristaux formés. Ainsi la formation des cristaux en sucrerie, est toujours réalisée par ensemencement de fins cristaux dans le sirop sursaturé jusqu'à l'état métastable ou intermédiaire. Cette étape s'appelle le « **grainage** ».

III- Croissance cristalline

Pour tendre vers l'état de plus grande stabilité, le système thermodynamique constitué par la suspension doit franchir la barrière d'énergie qui correspond à la formation des premiers cristaux. Le soluté en excès va être incorporé aux cristaux qui vont donc voir leur volume augmenter : c'est la **croissance cristalline**. Trois étapes se produisent successivement lors de la croissance des cristaux dans la solution (9) :

- ✓ le soluté est transféré depuis la solution jusqu'à la surface du cristal (étape de transfert),
- ✓ le soluté est intégré au réseau cristallin au niveau d'un site de cristallisation (étape d'intégration),
- ✓ la chaleur de cristallisation libérée par l'intégration est dissipée.

Ce dernier processus est de moindre importance car il limite rarement le taux de croissance des cristaux (5). Par contre, l'une ou l'autre des deux autres étapes est généralement limitante. Dans le cas d'une vitesse de transfert du soluté faible vis-à-vis de la vitesse d'intégration, on parle de limitation diffusionnelle, la croissance est dite croissance diffusionnelle. Dans le cas contraire, on parle de limitation par l'intégration.

L'incorporation sur le site d'adsorption provoque le changement de phase réel de la molécule, ce qui produit un excédant de chaleur à la surface du nucléi. En réalité, pour passer d'un état à l'autre,

chaque molécule doit vaincre une barrière d'énergie potentielle au moyen d'une certaine énergie d'activation. Si l'énergie d'échange libérée par une molécule de saccharose s'insérant dans le réseau cristallin (chaleur de cristallisation) permet à une autre molécule en solution de surmonter cette barrière d'énergie potentielle, le phénomène peut se produire en chaîne à une vitesse d'autant plus grande que la différence entre l'énergie d'échange et l'énergie d'activation est grande. C'est le cas dès que les solutions dépassent la sursaturation.

En sucrerie le grossissement des cristaux est obtenu par diffusion du saccharose dans la couche limite entourant ceux-ci puis, par réaction de cristallisation. Compte tenu des températures qui règnent dans les appareils à cuire, le facteur limitant la vitesse de grossissement des cristaux est la diffusion du saccharose dans la couche limite. Il est donc important d'assurer une très bonne agitation de la masse cuite afin de réduire l'épaisseur de la couche limite. Cette agitation est obtenue par le maintien d'une bonne ébullition dans les appareils à cuire et par l'installation d'un agitateur. Il paraît souhaitable de réaliser la cristallisation à la température la plus élevée possible (ce qui permet d'obtenir une augmentation de la diffusivité et une diminution de l'épaisseur de la couche limite). Toutefois, les sirops étant très concentrés en sucre (Brix de plus de 83 %), ils sont très thermosensibles et il est préférable de limiter la température à 80°C.

IV- Forme du cristal

Le saccharose cristallise dans le système monoclinique qui comprend un axe de symétrie binaire et un plan de symétrie perpendiculaire à cet axe. Le cristal est coupé par deux troncutures sur les arêtes qui se trouvent dans le plan de symétrie. Ces deux troncutures sont parallèles au plan de symétrie et constituent les faces les plus étendues du cristal. En fait le sucre se dépose sur les différentes faces du cristal à des vitesses différentes. Pratiquement, pour évaluer la vitesse de grossissement des cristaux, on se réfère le plus souvent à la vitesse d'allongement de celui-ci dans une direction déterminée.

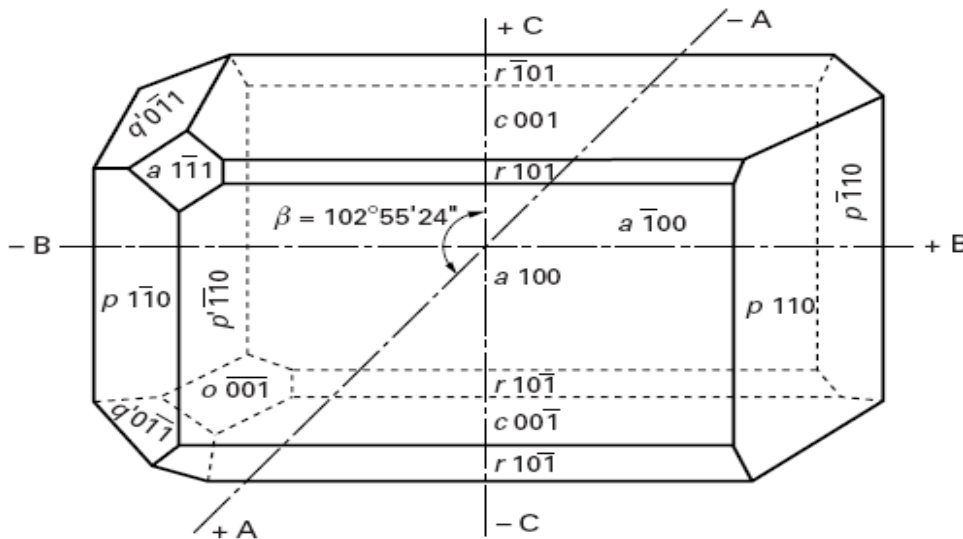


Figure 6 : Forme du cristal de saccharose

V- Evolution des systèmes



1- Agglomération

En cristallisation industrielle, l'agglomération des cristaux constitue un phénomène très important, surtout dans les réactions de précipitation. Il est favorisé par :

- ✓ les cinétiques de cristallisations élevées
- ✓ les sursaturations importantes
- ✓ l'agitation
- ✓ la présence d'impuretés (surtout organiques)
- ✓ la taille des cristaux.

On distingue deux types d'agglomération, classiquement désignés par primaire et secondaire.

Agglomération primaire : Elle concerne les micros particules de taille en général inférieure à 1 μm . Elle est dépendante de trois types d'interactions :

- ✓ les forces d'attraction de London - Van der Waals, qui sont dues aux dipôles permanents des particules polaires ou aux dipôles induits des particules polarisables (cette interaction est toujours attractive et dépend de la solution, de la taille des particules et de leur distance),
- ✓ les forces coulombiennes de répulsion, qui concernent les particules possédant une double couche électrique,
- ✓ les forces d'interaction, dont l'origine est liée à l'existence de couches adsorbées à la surface des particules.

Quatre mécanismes sont invoqués pour expliquer l'agglomération primaire des cristaux :

- ✓ le collage des cristaux par rapprochement des deux couches de diffusion autour des cristaux en cours de croissance : ce processus est prédominant à sursaturation élevée,
- ✓ la nucléation spontanée sur les faces en croissance,
- ✓ la nucléation primaire simultanée de plusieurs germes au même endroit,
- ✓ la croissance anormale des cristaux sous forme de dendrites, agrégats ou bien croissance parallèle (superposition de germes).

Agglomération secondaire : Elle est provoquée soit par le mouvement brownien des particules soit par les forces de cisaillement de la suspension dues aux conditions d'agitation. Le premier mécanisme s'adresse à des particules de taille très faible (taille des colloïdes), alors que le second affecte les cristaux de taille plus grande, supérieure à 1 μm .

2- Brisure

Ce phénomène mécanique concerne essentiellement les cristaux de taille supérieure à 200 μm . Ces derniers se disloquent en petits cristaux suite à des chocs contre les parois du cristallisateur, les pales de l'agitateur ou par cisaillement de la solution.

3- Inclusion

Si la croissance est trop rapide, le cristal emprisonne des portions de solution qui déposent le soluté dans la cavité du cristal. Le solvant résiduel constitue alors une impureté.

4- Mûrissement d'Ostwald

Pour mieux comprendre le phénomène de mûrissement, on peut discuter l'évolution de la sursaturation dans une opération de cristallisation où le soluté consommé par les cristaux n'est pas compensé par un apport extérieur.

Pour que la cristallisation ait lieu, il faut d'abord que la sursaturation atteigne un niveau suffisant, (10) ce qui est réalisé au point A de la *figure 6*. Si la nucléation n'est pas trop importante, la sursaturation peut encore augmenter, passer par un maximum, puis chuter très rapidement. La nucléation peut donc se poursuivre jusqu'en B, alors que la croissance qui commence immédiatement après A se poursuit jusqu'en C. Le mûrissement peut débuter en D, avant même que la croissance ne soit entièrement terminée. Sa durée peut aller bien au-delà du point C selon les conditions du milieu.

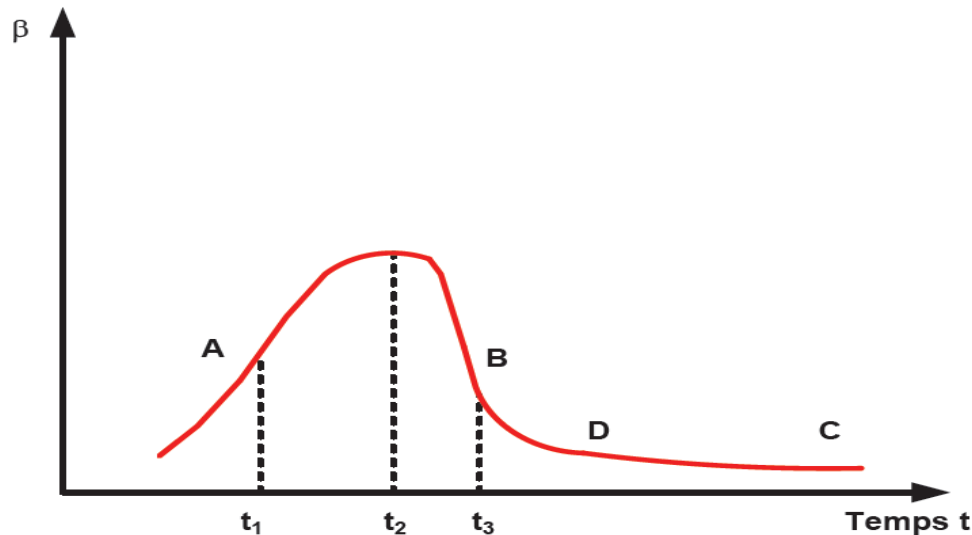


Figure 7 : Evolution de la sursaturation au cours d'une opération de cristallisation

La solubilité d'un cristal de taille r_c est supérieure à la solubilité d'un cristal de taille infinie. En effet, la valeur C^* de la solubilité correspond à un équilibre entre une solution et des cristaux de très grande taille (dans la pratique, on peut considérer que des cristaux de 0,1 à 1 mm ont une taille infinie). Pour la particule de rayon r_c il y aura donc une concentration $C_{r_c} > C^*$ pour laquelle cette particule est stable. Une particule de rayon $r > r_c$ croît puisque, pour elle, la solution est sursaturée. Inversement, si $r < r_c$, la particule va se dissoudre puisqu'elle aurait besoin d'une solution de concentration $C_{r_c} > C^*$ pour être stable ou grossir.

Il y a donc une sursolubilité des petits cristaux dans une solution qui est globalement à l'équilibre de concentration C^* . Dans cette même solution, les plus petits cristaux sont condamnés à se dissoudre. Le soluté ainsi généré va être récupéré par les plus gros cristaux qui vont croître. Théoriquement, ce processus ne s'arrête que si tous les cristaux ont rigoureusement la même taille ou s'il ne reste qu'un seul cristal en solution.



Conclusion

La cristallisation est une opération unitaire de génie chimique complexe qui met en jeu un certain nombre de mécanismes et de processus élémentaires à l'échelle moléculaire. Il ne faudrait pas croire cependant que les différentes étapes de la cristallisation soient entièrement déconnectées les unes des autres. La nucléation se poursuit tant que la sursaturation se maintient à un niveau suffisant. Pendant ce temps, les cristaux croissent, ce qui contribue à diminuer la sursaturation. Il peut en résulter des changements de phases et des transformations polymorphiques bien avant que la solution ne soit entièrement revenue à l'équilibre. A ce dernier stade, le système peut encore évoluer par mûrissement, processus qui aboutit à une diminution considérable du nombre de cristaux par dissolution des plus petits et par croissance des plus gros.

CHAPITRE II : CRISTALLISATION DU SUCRE EN MILIEU INDUSTRIEL

Introduction

Dans la production industrielle du sucre, la cristallisation est l'ultime phase de l'extraction et de la purification donnant un produit à l'état solide, facilement stockable et transportable.

La cristallisation à partir d'une solution est une opération de purification mais devient de plus en plus une opération reconnue de mise en forme, dans la mesure où le produit obtenu devra être filtrable, séchable, manipulable, ne dégageant pas de poussière. La maîtrise de la distribution des tailles des particules et des formes extérieures des cristaux est à l'heure actuelle un argument commercial dont l'importance se rapproche de celle des critères de pureté à maintenir évidemment à un très haut niveau.

Il est donc indispensable de maîtriser l'opération de cristallisation à la fois en ce qui concerne :

- 1- les bilans de matière et thermique des cristallisoirs ;
- 2- **les bilans de population, destinés à prédire la distribution des tailles des particules ;**
- 3- son intégration dans l'ensemble du procédé, en raison des effets des impuretés sur la forme des particules, qui nécessitent un contrôle de la réaction et des recyclages, en raison également de la très forte influence de la forme et de la taille des cristaux obtenus sur le reste de la chaîne de traitement et de conditionnement du solide (filtration, séchage, manipulation, stockage, ensachage, etc.).

Dans ce chapitre nous nous attacherons à décrire de manière plus détaillée le procédé de cristallisation en milieu industriel.



I. Atelier de cristallisation de la COSUMAR

L'atelier de cristallisation est généralement constitué de plusieurs cristallisoirs montés en cascade pour assurer un épuisement optimal en saccharose du sirop de sucre issu de l'atelier d'évaporation (2), (3), (4), (15). Le sirop est une solution impure dont les composantes sont l'eau, le saccharose et les impuretés appelées aussi non-sucre. L'objectif de la cristallisation consiste à extraire le maximum de saccharose de ce sirop.

Le chantier de cristallisation de STG2 est l'un des chantiers les plus développés technologiquement au sein de la COSUMAR, il comprend :

- 7 appareils à cuire discontinus ;
- 1 VKT (appareil à cuire continu) pour jet de haute pureté ;
- Divers malaxeurs de coulée, malaxeurs distributeurs et pompes à masse cuite ;
- 10 centrifugeuses B1750 ;
- 1 installation de séchage et de refroidissement de sucre ;
- 1 refondateur de sucre ;
- Equipements pour la production de la semence ;
- Equipements pour la condensation.

Plus le milieu est impur et visqueux, plus il est difficile d'obtenir un cristal pur. En croissant dans un milieu impur, le cristal se charge en impuretés présentes dans le sirop. Il convient d'arrêter la cristallisation avant que le milieu ne devienne trop impur et visqueux. En pratique, pour épuiser au maximum une solution de son sucre, il faut procéder à une cristallisation fractionnée. Généralement, on admet une configuration en trois phases ou **trois jets**.

II. Le procédé industriel de cristallisation en trois jets

La solution appelée « **liqueur standard** » alimentant chaque jet de cristallisation est le résultat du mélange de différents produits. Dès que l'on est en présence de cristaux en suspension dans un sirop, on parle de « **masse cuite** » et le sirop prend le nom « **d'eau-mère** » car c'est lui qui nourrit le cristal. Lors de l'essorage de la masse cuite pour séparer les cristaux, l'eau-mère est tout d'abord évacuée et prend le nom « **d'égout pauvre** ». Puis la surface des cristaux est lavée par pulvérisation d'eau chaude, on parle de « **clairçage** ». Cette étape entraîne une légère redissolution de sucre cristallisé et le sirop issu du lavage est donc nettement plus pur que le précédent égout, d'où son nom « **d'égout riche** ».

La production de sucre s'effectue en différentes étapes de cristallisation consécutives à partir du sirop issu de l'atelier d'évaporation. En effet, lorsque la teneur en cristaux d'une masse cuite devient supérieure à 50%, l'augmentation de la viscosité du milieu entrave le phénomène de diffusion des molécules de saccharose vers les cristaux. La cristallisation consiste à centrifuger la masse cuite devenue trop visqueuse pour séparer les cristaux de la liqueur mère. La liqueur mère dont la concentration en saccharose est encore élevée, est épuisée lors des étapes suivantes. Elle est ainsi utilisée comme égout d'alimentation au cours de la phase de croissance de l'étape suivante. Lorsque



ces étapes sont répétées trois fois, il est dit « **procédé des trois massecuites** ou **crystallisation en trois jets** ».

Ce procédé comprend trois cycles complets de cristallisation. Chaque cycle comprend trois étapes principales, la **cuisson**, le **malaxage** et l'**essorage**. Il commence avec la formation des cristaux dans la solution sucrée, et se termine par la séparation des phases solide et liquide.

- La **cuisson** : la cristallisation du saccharose à l'état liquide dans la solution par le procédé de cristallisation ;
- Le **malaxage** qui permet d'épuiser au maximum la liqueur mère par la mise en pratique du procédé de cristallisation par refroidissement ;
- L'**essorage** (ou turbinage, ou centrifugation), qui est l'étape de séparation des cristaux contenus dans la massecuite.

Les liqueurs mères successives s'appauvrissent en saccharose dissous.

III. Appareil à cuire en discontinu

La cuite s'effectue dans des cristallisoirs qui peuvent être continus ou discontinus. L'appareil à cuire en discontinu est une cuve fabriquée en acier inoxydable et constituée d'un corps cylindrique fermé par un dôme et par une base circulaire conique. Cette géométrie particulière de la base du cristallisoir facilite l'écoulement de la suspension très visqueuse qu'est la massecuite en fin de cristallisation (**figure 7**)

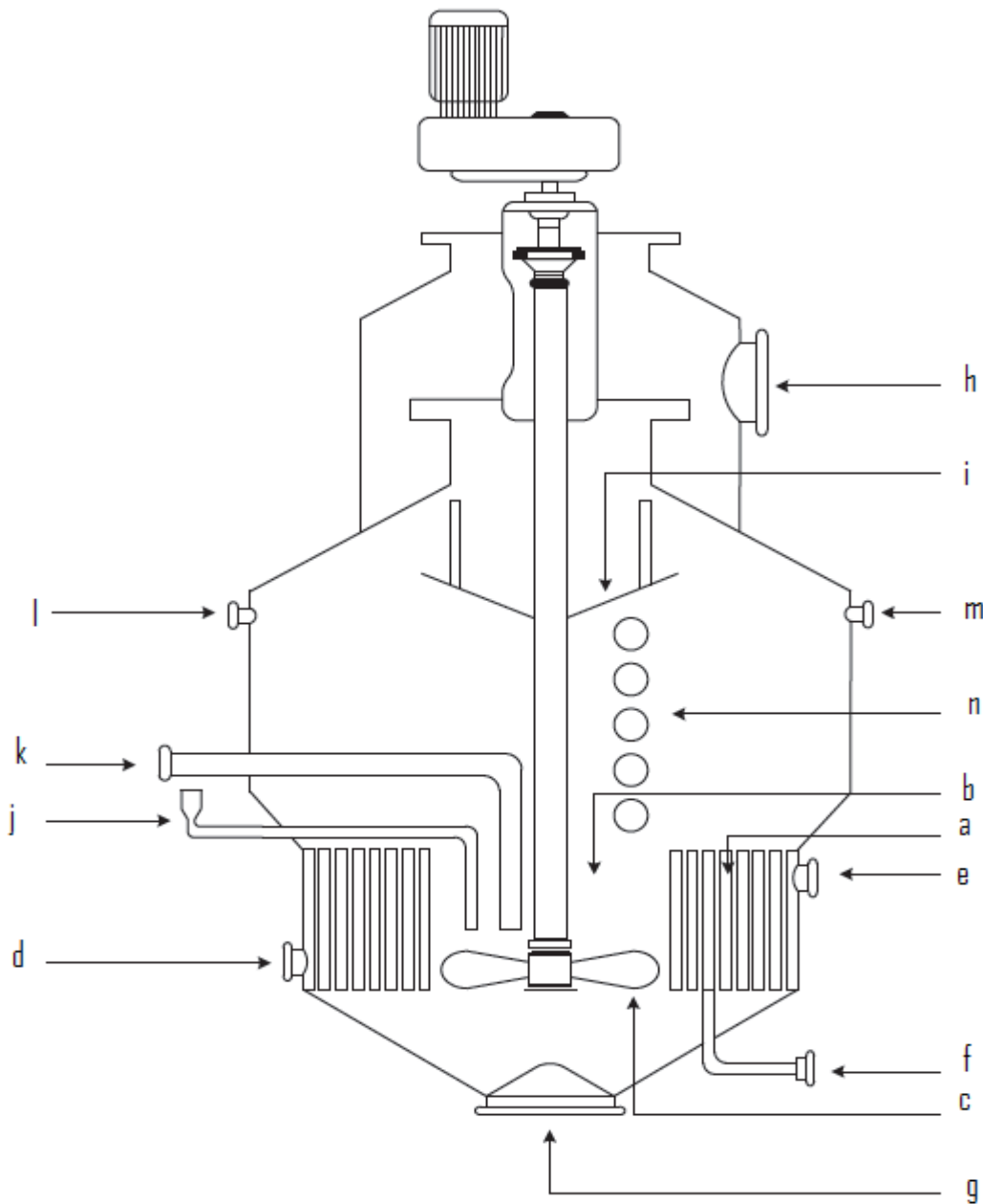


Figure 8 : Représentation d'un cristalliseur discontinu

Le cristalliseur est doté dans sa partie basse d'un faisceau (a) qui sert à la circulation de la vapeur. La hauteur de ce faisceau représente près d'un tiers de la hauteur totale. La calandre présente en son centre, un puits (b), qui permet la recirculation de la solution. Les pales d'un agitateur mécanique (c) sont positionnées à l'intérieur de ce puits. Une bouche d'entrée (d) du fluide caloporteur est prévue sur la paroi latérale de la calandre. Une sortie (e) est prévue pour l'évacuation des gaz incondensables. On y trouve aussi des sorties (f) qui permettent l'évacuation des eaux condensées contenues dans la calandre. La bouche d'évacuation (g) de la masse cuite en fin de cuite se situe au point le plus bas de la calandre.



Le dôme est muni d'une sortie (h) permettant l'évacuation des vapeurs d'eau émises lors de la concentration de la solution. Un désucreur (i) est placé juste au-dessous de la bouche d'évacuation des vapeurs. Cette vapeur d'eau émise lors de la cristallisation entraîne avec elle de fines particules de suspension, dont le saccharose à l'état liquide. Ce désucreur présente une large surface métallique poreuse conçue pour permettre l'évacuation de la vapeur d'eau.

Les gouttelettes d'eau contenant du saccharose à l'état liquide, s'agglutinent sur la surface du désucreur puis retombent dans la masse cuite sous l'effet du champ de gravité.

La cristallisation par évaporation est initialisée par une solution contenant des micros cristaux de sucre, appelée semence. Cette semence est introduite dans le mélange à l'état sursaturé, par une conduite qui aboutie au puits central de la calandre, se situant juste au-dessus des pales de l'agitateur (j). De cette manière, la semence est répartie dans la solution sursaturée, d'une façon la plus homogène possible.

La croissance des cristaux de saccharose nécessite un apport de matière contenant du saccharose à l'état liquide. En cristallisation, les égouts d'alimentation empruntent une conduite (k) qui plonge, elle aussi dans le puits central de la calandre. Là encore, l'agitation mécanique répartit les solutions d'alimentation dans la suspension. L'agitation continue de la masse cuite permet d'assurer l'homogénéité de la sursaturation de la solution, et de faire l'hypothèse que la vitesse de cristallisation est aussi homogène. Après la cristallisation, l'ouverture d'une bouche d'aération (l), placée juste en dessous du dôme, permet le retour à la pression atmosphérique.

Des arrivées de vapeur (m) sont disposées dans le haut du corps cylindrique de la cuve. On utilise de la vapeur sous pression pour le rinçage du dispositif entre deux cristallisations. Des hublots de verre (n) disposés sur la surface latérale du corps cylindrique, permettent aux cuiseurs d'observer l'intérieur de l'appareil et de voir l'aspect et le niveau de la masse cuite lors de la cristallisation.

IV. Différentes phases d'une cristallisation

La production des cristaux à partir de germes cristallins est toujours réalisée de manière discontinue. Les appareils à cuire dit « continu » ne font que l'étape de grossissement de cristaux qui ont déjà une taille (ouverture moyenne) de l'ordre de 200µm.

Le principe de la formation des cristaux dans un appareil à cuire est le suivant. Une fois le vide établi dans l'appareil, on prépare le « **piéd de cuite** ». Pour cela un volume de liqueur standard, suffisant pour recouvrir l'échangeur de chaleur, est introduit et la liqueur est concentrée jusqu'à ce qu'elle soit dans sa zone métastable correspondant à une sursaturation variable selon le jet considéré. Puis, le grainage est effectué en ensemençant la liqueur mère sursaturée avec de très fins cristaux (d'une taille de l'ordre de 5 à 10µm). Le sucre de l'eau-mère diffuse alors vers les cristaux du fait de la sursaturation. Le maintien de la sursaturation est obtenu par évaporation d'eau et apport supplémentaire de sucre par de la liqueur standard. Cette phase constitue la « **montée de la cuite** » car le niveau monte dans l'appareil à cuire. La sursaturation est un paramètre important, son instabilité peut générer des effets néfastes :

- apparition spontanée de cristaux pour une sursaturation trop élevée ;
- dissolution des cristaux pour une sursaturation trop faible.

Une fois l'appareil rempli, l'extraction du sucre de l'eau-mère est poursuivie par simple évaporation jusqu'à ce que la compacité de l'ensemble fasse chuter la vitesse de cristallisation en dessous d'une



valeur minimum. Cette phase constitue le « serrage ». La cuisson se termine enfin par la « coulée » et le « lavage » de l'appareil.

1- Formation du pied de cuite

La première étape au démarrage d'une cristallisation est la mise sous vide de l'appareil (250 mbar). A cette pression de vide la température d'ébullition des sirops est maintenue en dessous de 80°C.

Théoriquement, le volume introduit dans la cuve doit recouvrir le faisceau de tubes de la calandre pour éviter les problèmes de caramélisation. Cela correspond en général à 30 % du volume de l'appareil.

Le sirop est concentré par évaporation isothermique jusqu'à l'obtention de la valeur de la sursaturation favorable à la nucléation cristalline par ensemencement. La vapeur d'eau émise par la solution en ébullition est aspirée par l'action de la pression réduite.

2- Grainage

C'est la phase la plus délicate du cycle de la cristallisation, car elle génère la population initiale des microcristaux. La masse totale de cristaux produits en fin de cristallisation dépend de la qualité de cette population initiale.

L'ensemencement ou le grainage du mélange consiste à introduire une quantité de semence dans la solution sucrée sursaturée. Il s'agit de la phase la plus rapide du cycle de cristallisation, pendant cette phase les microcristaux de saccharose sont dispersés dans la solution de façon mécanique par agitation. Cette dispersion des microcristaux permet une homogénéisation et une répartition spatiale identique des particules de saccharose en tout point de la solution.

La semence est un mélange de sucre blanc finement broyé et d'alcool isopropylique. Le saccharose, non soluble dans cet alcool, est ainsi à l'abri des dissolutions partielles qui favorisent la formation d'agglomérats. La présence d'agglomérats dans une semence comme dans une masse cuite est préjudiciable à la qualité finale des cristaux et à la production maximale de cristaux. Les agglomérats en interaction avec les cristaux, les parois du cristallisateur et les pales de l'agitateur sont sujets aux brisures. Leur présence dans la solution favorise l'apparition de microcristaux (les fines) dans la masse cuite qui passent au travers des mailles du tamis des centrifugeuses et tendent à augmenter la pureté de la mélasse (diminution du rendement).

En pratique, la vapeur de chauffage de l'appareil est réduite au minimum pour éviter la dissolution des cristaux et un temps de stabilisation est choisi avant de poursuivre.

Nous privilégions l'ensemencement pour initier la cristallisation afin de maîtriser le mieux possible la croissance et la dimension finale souhaitée des cristaux. L'ensemencement ne permet pas de contrôler le nombre de germes mais permet de contrôler davantage la croissance du cristal, surtout en début de cristallisation, et la dimension des cristaux en fin de procédé. Il est donc possible par cette technique d'améliorer l'uniformité de la cristallisation, ce qui est plus que souhaitable.

3- Grossissement des cristaux (phase de maturation)

L'ensemencement doit être suivi d'une période de stabilisation, c'est-à-dire de maintien de la sursaturation autour de la valeur du point d'ensemencement. Il est nécessaire que pendant cette « période de maturation » les germes s'organisent en cristaux. C'est uniquement pendant cette



première période d'organisation des cristaux qu'il y a danger de **mâclage ou d'agglomération** des cristaux. Le danger est faible si la sursaturation est basse ; il est par contre très grand si la sursaturation atteint les valeurs trop élevées des zones intermédiaires ou labiles. Il est nécessaire que, pendant cette phase de maturation, qui dure de 5 à 15 minutes selon les jets, les débits de vapeur et d'alimentation soient réduits.

4- Montée de la cuite

La phase de montée permet la croissance des microcristaux dans la solution. Une croissance cristalline optimale nécessite une sursaturation de valeur constante en zone métastable. L'évaporation se poursuit en provoquant une augmentation de la sursaturation qui doit être compensée par l'apport de solution de saccharose.

Au fur et à mesure que les cristaux grossissent, la masse de sucre cristallisée par unité de temps augmente, et par la même, la quantité d'eau à évaporer pour maintenir le degré de sursaturation. Aussi, on peut diminuer l'apport de sirop et serrer enfin la cuite.

Quand le pied de cuite est convenablement serré, la montée de la cuite demande peu d'attention. Le volume de la masse cuite provoque une augmentation de la hauteur de produit au-dessus du faisceau alors que sa viscosité augmente. Cette combinaison entraîne une décroissance rapide de la circulation de la masse cuite et du transfert de chaleur. La vitesse de cristallisation diminue alors et le procédé ralentit.

5- Serrage de la cuite

Quand le niveau maximum est atteint, l'alimentation du sirop est arrêtée, et l'évaporation de la masse cuite est poursuivie pour maintenir la consistance de celle-ci.

L'indicateur de serrage maximum est en général la puissance consommée par l'agitateur mais on peut aussi faire référence à la nécessité de maintenir une distance minimale entre cristaux pour éviter tout risque d'agglomération entre eux.

6- Coulage et lavage de la cuite

Une fois l'appareil remis à la pression atmosphérique et l'agitateur arrêté, la trappe de vidange est ouverte et la masse cuite s'écoule dans un malaxeur « de coulée ». De l'eau chaude ou de la vapeur est ensuite pulvérisée pour nettoyer l'appareil et éviter que des cristaux demeurent et ne grossissent ultérieurement en donnant des cristaux en dehors de la plage admissible.

7- Évolution des paramètres

Durant le cycle de la cristallisation, la pression (le vide) est en général maintenue à une valeur constante. Le besoin de vapeur de chauffage est important durant la formation du pied de cuite car nous cherchons à réaliser cette étape le plus rapidement possible. La pression de vapeur agissant sur son débit est ensuite maintenue à une faible valeur durant le grainage et au départ du grossissement des cristaux. En fin de cuite, il est parfois nécessaire de disposer d'une vapeur de pression plus élevée afin de vaincre la chute du coefficient de transfert de chaleur avec l'augmentation de la hauteur de masse cuite dans l'appareil. Au fur et à mesure, le taux de sucre cristallisé augmente et la



densité de la masse cuite suit la même évolution. En général, les consignes sont toutes fixées en fonction du volume (niveau) de la masse cuite.

Le paramètre essentiel de contrôle de la cristallisation est la sursaturation. Cette sursaturation est directement fonction de la pureté et du Brix. C'est donc le Brix de l'eau-mère qu'il faut mesurer et maîtriser. Plus la mesure sera précise et meilleurs pourront être le contrôle et l'automatisation de l'étape de cristallisation.

V. Paramètres physiques affectant la cristallisation

La cristallisation est un phénomène très complexe, qui est régie par plusieurs lois et qui peut être affectée par plusieurs paramètres différents. Les principaux paramètres peuvent être résumés comme suit:

1- Sursaturation

Une sursaturation élevée augmente la croissance des cristaux tant que la viscosité ne prédomine pas, mais une sursaturation très élevée risque de provoquer des faux grains. La sursaturation à maintenir au cours de la cristallisation du sucre dépend de la pureté de la solution.

2- viscosité

L'augmentation de viscosité fait baisser la vitesse de cristallisation car elle ralentit le déplacement des molécules vers le cristal, donc la quantité de sucre qui se fixe baisse par unité de temps.

3- Agitation

L'agitation mécanique ou thermique de la masse cuite déplace les cristaux, ceci permet de renouveler la couche d'eau mère autour d'eux. En renouvelant l'eau mère, nous amenons continuellement des molécules de saccharose à proximité des cristaux, ce qui accélère leur grossissement.

4- Température

Une augmentation de la température provoque une accélération de la croissance des cristaux, à condition de rester à la même sursaturation.

5- Présence de cristaux en suspension

Si des cristaux sont présents dans un sirop, par un mauvais traitement ou une refonte du produit par exemple, des résultats non souhaitables peuvent survenir. La solution de saccharose aura tendance à cristalliser de façon grossière, ce résultat n'étant pas escompté, et la distribution de la taille des cristaux résultants ne pourra être reproductible.

6- Pureté

La vitesse de cristallisation diminue fortement avec la diminution de la pureté, c'est pourquoi il faut plus de temps pour cuire les bas-produits que pour les premiers jets.



Conclusion

La cuisson est une étape critique pour la qualité du sucre final. En effet, à ce stade les caractéristiques internes du cristal du sucre sont définies. En général les cuissons rapides et les cuissons lentes sont à éviter. Dans le cas de cuisson rapide, l'augmentation du débit horaire d'évaporation peut provoquer la montée brutale de la sursaturation de l'eau mère, la nucléation spontanée peut avoir lieu et le taux de fines dans le sucre final augmente. Par ailleurs, l'augmentation brutale de la température de cuisson accélère la formation des colorants et facilite leur incorporation dans le sucre. Contrairement aux cuissons rapides, les cuissons lentes nécessitent des températures relativement faibles. Ceci permet de pallier les difficultés décrites dans le cas des cuissons rapides mais conduit à l'allongement des cristaux du sucre. Un tel allongement se répercute sur la granulométrie du sucre. Il est donc important de maîtriser la cuisson afin de prévoir et de contrôler la granulométrie finale du produit cristallisé.





—PARTIE II—

OPTIMISATION
DE LA
CRISTALLISATION

CHAPITRE I: NOTIONS SUR LA
GRANULOMETRIE ET LA DISTRIBUTION
GRANULOMETRIQUE DU SUCRE



Introduction

La granulométrie est l'étude de la distribution de la taille des particules d'une farine. En raison de la forme irrégulière des particules, le résultat de la mesure est exprimé par le diamètre qu'aurait la sphère théorique se comportant de la même manière que la particule considérée pour la technique utilisée. Une telle sphère est appelée sphère équivalente. La finesse de la farine est caractérisée alors par un paramètre de position : l'**ouverture moyenne (OM)** qui correspond à la rétention de 50 % de la masse de cristaux et l'hétérogénéité granulométrique par un paramètre de dispersion : le **coefficient de variation (CV)** qui détermine la dispersion.

La granulométrie et la distribution granulométrique sont des critères qui, parmi d'autres déterminent l'appréciation du sucre par les utilisateurs. En effet, le sucre est mieux apprécié lorsque ses cristaux sont uniformes et de taille régulière. En Amérique du Nord, les sucres fins ont la préférence des consommateurs. En Europe, les sucres de granulométrie moyenne sont les plus recherchés. Dans les pays arabes, l'Afrique centrale et l'Asie de l'est, les gros cristaux de sucre sont souvent les plus demandés.

Pour les utilisateurs industriels, le sucre constitue une matière première pour l'élaboration de nombreux produits. Suivant l'application, le rôle de l'ingrédient sucre est différent et les exigences des utilisateurs sont plus ou moins différentes. Dans le cas où le sucre doit être dissous pour pouvoir être utilisé, les sucres fins sont plus recherchés parce qu'ils se dissolvent rapidement. Au contraire, lorsque le sucre est utilisé pour améliorer la présentation d'un produit, les sucres formés de gros cristaux sont plus demandés.

Pour les fabricants de sucre, le contrôle de la granulométrie et surtout de la distribution granulométrique est souvent un objectif en lui-même. En effet, la maîtrise de celle-ci permet d'optimiser de nombreux critères de qualité, à savoir la teneur en impuretés et la stabilité du sucre au cours du stockage.

L'importance de la granulométrie n'est pas seulement ressentie au niveau de la qualité et de la stabilité finale du sucre mais aussi au cours de la fabrication. En effet, au cours de la cristallisation la non maîtrise de la nucléation spontanée aboutit généralement à une masse cuite de densité importante. Le turbinage de celle-ci est souvent une tâche difficile et n'arrive pas à éliminer la totalité de l'eau mère piégée entre les cristaux. La présence de cette eau mère engendre généralement la formation d'agglomérats de cristaux. Leur présence dans le sucre est souvent un vrai problème pour le fabricant du sucre. En effet, elle diminue la densité (kg/m^3) et par conséquent augmente le volume occupé par un kilogramme de sucre. Etant donné que les emballages de sucre sont conçus pour contenir une masse bien précise, si la masse du sucre occupe un volume plus important que prévu, le sucre ne peut être emballé. La présence d'agglomérats constitue également un problème pour la qualité. En effet, la présence de traces de liqueur mère à la surface des cristaux agglomérés augmente la coloration et le taux de cendres.

I. Expression des résultats

Déterminer la taille d'une seule particule d'un lot s'avère non seulement difficile mais de plus inefficace et non souhaitable pour décrire l'hétérogénéité de ce lot. Toutes les techniques de mesure opèrent donc sur un grand nombre de particules qui composent une population. Le résultat est représenté sous forme d'histogrammes appelés distributions granulométriques. La population est

divisée en classes de dimensions (en abscisse) et leurs proportions relatives exprimées en fréquences (en ordonnée).

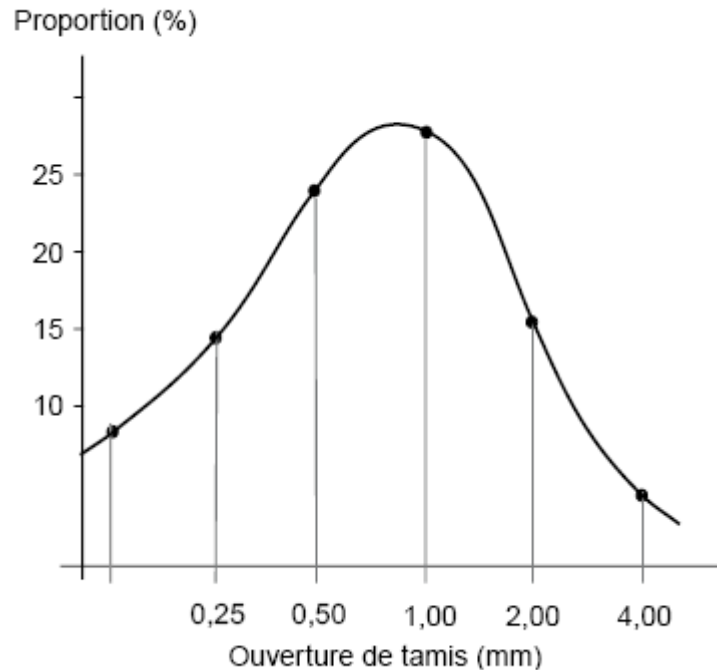


Figure 10 : Expression de la distribution des tailles des particules.

L'histogramme décrit comment une propriété liée à la taille des particules est distribuée à travers la population. Si par exemple, par une technique appropriée, nous comptons les particules contenues dans des classes granulométriques définies, nous obtenons une distribution en nombre. Le fait de peser les particules contenues dans ces mêmes classes granulométriques au lieu de les compter permet d'obtenir une distribution en masse. Nombre ou masse sont ensuite exprimés en fréquences (axe des ordonnées). Le choix de l'un ou de l'autre dépend à la fois de la technique utilisable et du but poursuivi. Un tamis ne permet que d'appréhender la distribution en masse, tandis qu'un compteur à variation de résistance permet de mesurer le nombre de particules d'une classe donnée.

II. Paramètres de la distribution

Les distributions sont difficiles à utiliser à l'état brut : nous sommes amenés très tôt à synthétiser l'information par des paramètres qui décrivent la tendance centrale et la dispersion des distributions, à savoir :

1- Le coefficient de variation

Le coefficient de variation de la granulométrie des cristaux est une mesure de la dispersion relative : il se calcule comme le rapport entre l'écart-type et la moyenne.

$$CV = \text{écart-type de la distribution} / \text{moyenne}$$



2- L'ouverture moyenne

L'ouverture moyenne est un critère qui exprime la dimension moyenne des grains. L'ouverture moyenne partage l'effectif de la population de particules en deux parties de masses égales, c'est à dire que 50% de la population ont un diamètre équivalent supérieur ou 50% inférieur au diamètre médian.

III. Les facteurs qui influencent la granulométrie

1- Conduite de la cristallisation

Le premier paramètre à considérer lors de la conduite d'une cristallisation est l'apparition spontanée de germes cristallins. Cette dernière se produit dans la zone dite labile et peut être évitée dans la zone dite métastable. La première est située à 1,35 de sursaturation alors que la deuxième est située entre 1 et 1,2 (20). Sur le plan pratique, il est difficile de maintenir la sursaturation de l'eau mère à une valeur constante pendant toute la durée de la cristallisation. En général, celle-ci ne peut être contrôlée qu'avant le grainage et quelques minutes après. En effet, au cours de la croissance cristalline la sursaturation ne dépend pas seulement de la vitesse de cuisson mais aussi de la vitesse d'intégration des molécules de saccharose dans le réseau cristallin. Pour une vitesse de cuisson constante, la vitesse d'intégration n'est pas la même selon qu'on est au début ou à la fin de la cristallisation. Cette dernière est faible au moment du grainage et croît avec l'accroissement de la surface cristalline du sucre. Autrement dit, pour contrôler la nucléation spontanée des cristaux il faut, avant tout, maîtriser la sursaturation au moment du grainage. Plus cette dernière est basse plus le risque d'apparition spontanée de germes est faible. Un taux de sursaturation de 1,15 est en général considéré optimal pour obtenir un sucre de bonne distribution granulométrique. La valeur est optimale pour qu'il n'y ait ni production de grains fins secondaires, ni de risques trop importants de refonte des grains de semence lors de la circulation de la masse au travers du corps de chauffe.

2- Qualité de la semence

Lorsque l'apparition spontanée de germes est maîtrisée et les conditions de mélange dans le cristalliseur sont parfaites, la cristallisation ne fait que grossir les cristaux introduits lors de l'ensemencement avec la même vitesse. Si ces derniers sont uniformes, théoriquement les cristaux du sucre final le sont. Au contraire, si la semence introduite est constituée de cristaux de différentes tailles, le sucre final possèdera la même variabilité granulométrique. Un essai de schématisation de l'influence de la distribution granulométrique de la semence sur la distribution granulométrique du sucre final est donné par la figure 9.

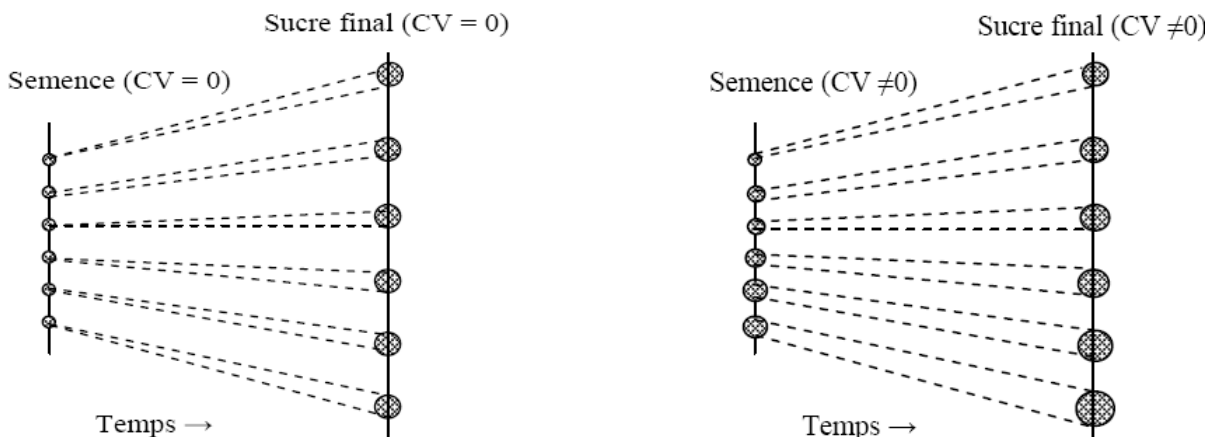


Figure 11 : Effet de la distribution granulométrique de la semence sur celle du sucre final

La semence ne doit pas être laissée au repos entre sa préparation et son entrée en cristallisation. Le récipient de stockage doit être muni d'un dispositif d'agitation efficace afin de limiter au maximum la décantation et l'agglomération des fines particules de sucre.

La granulométrie de la semence utilisée varie en fonction du temps de broyage. Les germes de dimension inférieure à 2-3 micromètres disparaissent au moment de l'introduction en cuite quelle que soit la sursaturation à cause de la fragilité. La semence à deux ou trois heures de broyage contient une quantité modérée de germes de dimension inférieure à 2,5 μm , elle est donc idéalement préconisée.

3- Présence d'impuretés

Globalement, les impuretés influencent la granulométrie du sucre de deux façons : elles diminuent la vitesse de croissance cristalline et modifient la forme des cristaux.

- Effet sur la croissance cristalline

Le ralentissement de la croissance cristalline par les impuretés est dû à leur effet sur les étapes de la diffusion et d'intégration. Au niveau de la diffusion, ils interviennent soit en réduisant la force motrice de la diffusion par diminution du niveau de sursaturation soit en augmentant la viscosité du milieu. Au niveau de l'intégration, le ralentissement est surtout obtenu en rendant les sites d'intégration inaccessibles par la contamination de certaines faces de la surface cristalline.

- Effet sur la morphologie des cristaux

Le cristal peut prendre des apparences différentes sous l'influence de certaines impuretés :

- 1- cristaux allongés bien connus en présence de raffinose;
- 2- cristaux d'aspect triangulaire (la face a prend la forme d'un trapèze) dans les masses cuites de bas produits, en présence de fortes concentrations en sucres réducteurs et en matières minérales (en raffinerie notamment) ;
- 3- cristaux très plats observés dans les sucres obtenus à partir de masses cuites de très haute pureté.



Conclusion

Ainsi, il apparaît que la sursaturation et la qualité de la semence sont les deux facteurs responsables en grande partie de la qualité des cristaux de sucre obtenus en fin de cristallisation. Les conditions de préparation de la semence doivent être contrôlées rigoureusement. Des particules de semence trop fines ($2,5 \mu\text{m}$) peuvent se dissoudre, entraîner la création de nucléation spontanée et un C.V. élevé. Une quantité de semence insuffisante ou une agitation inadaptée peuvent donner des agglomérats. Enfin, la qualité des cristaux peut évoluer après la cristallisation dans les malaxeurs, les turbines ou l'atelier de séchage et conditionnement.

CHAPITRE II : NOTIONS SUR LES PLANS D'EXPERIENCES

Introduction

Dans toutes les sciences expérimentales, une organisation optimale des essais est visée de façon à obtenir des informations intéressantes et fiables tout en minimisant le nombre d'essais et donc leur coût. Les plans d'expériences sont une méthode mise au point par des statisticiens. Le but premier est de limiter et d'optimiser le nombre d'essais utiles à l'aide de méthodes logiques rigoureuses.

I. Terminologie



1- Objectifs

Si les expériences sont effectuées sans une méthodologie rigoureuse il est fort probable qu'elles vont soit conduire à des impasses (résultats incohérents, etc...) soit à des résultats de qualité décevante. L'objectif principal de la méthode des plans d'expériences peut être résumé par la devise :

« **Obtenir un maximum d'information
en un minimum d'expériences** »

Une autre vision du pr
contrôlées afin, une no

pour toutes les variables
en un minimum d'essais.

Une telle problématique est primordiale dans le milieu industriel où minimiser le nombre d'expériences à réaliser est synonyme de gain de temps et de productivité. Réaliser des productions de la meilleure qualité possible au coût le plus bas est de plus une quête universelle pour tous les fabricants.

2- Réponse

Nous qualifions de réponse la grandeur qui est observée pour chaque expérience réalisée (le coefficient de variation dans notre étude). Il appartient aux spécialistes du phénomène étudié de cerner au mieux ce qui les intéresse et de fournir le type de réponse étudié ainsi que l'objectif souhaité vis-à-vis de celle-ci. Cet objectif est dans la plupart des cas une recherche d'extremum.

3- Facteurs

Nous qualifions de facteur toute variable, obligatoirement contrôlable, susceptible d'influer sur la réponse observée.

Un facteur ne varie pas dans de larges proportions. Nous définissons toujours, en fonction des besoins de l'étude, une valeur inférieure et une valeur supérieure. Les variations du facteur sont donc limitées par deux bornes. La borne inférieure retenue par l'expérimentateur est appelée **niveau bas** et la borne supérieure, **niveau haut**. Nous avons l'habitude de désigner par le signe moins (-) le niveau bas d'un facteur et par le signe plus (+) son niveau haut.

4- Domaine expérimental

Le domaine expérimental est défini par les niveaux hauts et les niveaux bas de tous les facteurs et éventuellement par des contraintes entre les facteurs.

Pour fixer les idées, prenons l'exemple de l'étude d'une réaction chimique pour laquelle l'expérimentateur cherche à connaître l'influence de la température et de la pression sur le rendement. Construisons d'abord une représentation géométrique. Le premier axe d'un système d'axes cartésiens est attribué à la température et le second à la pression (**figure 11**). Le domaine expérimental est le plan température x pression dans lequel toutes les pressions et toutes les températures sont possibles. Mais, en général, un expérimentateur limite les variations des facteurs étudiés. Ici, par exemple, la température varie entre 60 °C et 80 °C, la pression entre 1 et 2 bar. Donc le domaine expérimental rassemble tous les points de la surface délimitée par les niveaux bas et haut de chaque facteur.

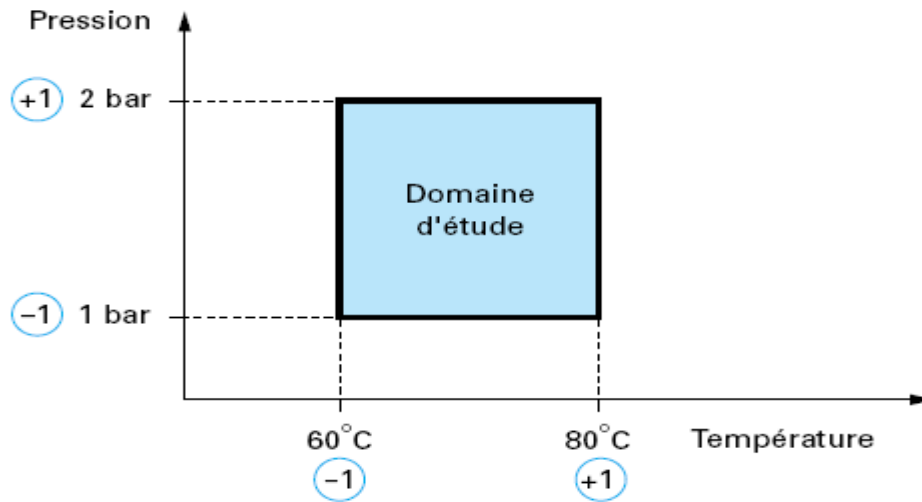


Figure 12 : Définition du domaine expérimental

II. La méthode des plans d'expériences

Le bon usage des plans d'expériences doit s'inscrire dans une méthode logique et rigoureuse dont la mise en œuvre est de la responsabilité de l'expérimentateur. Si l'on considère le schéma d'acquisition des connaissances (figure 11), on constate que la première étape consiste à définir le système que l'on se propose d'étudier, puis de poser les questions pour lesquelles on désire des réponses.

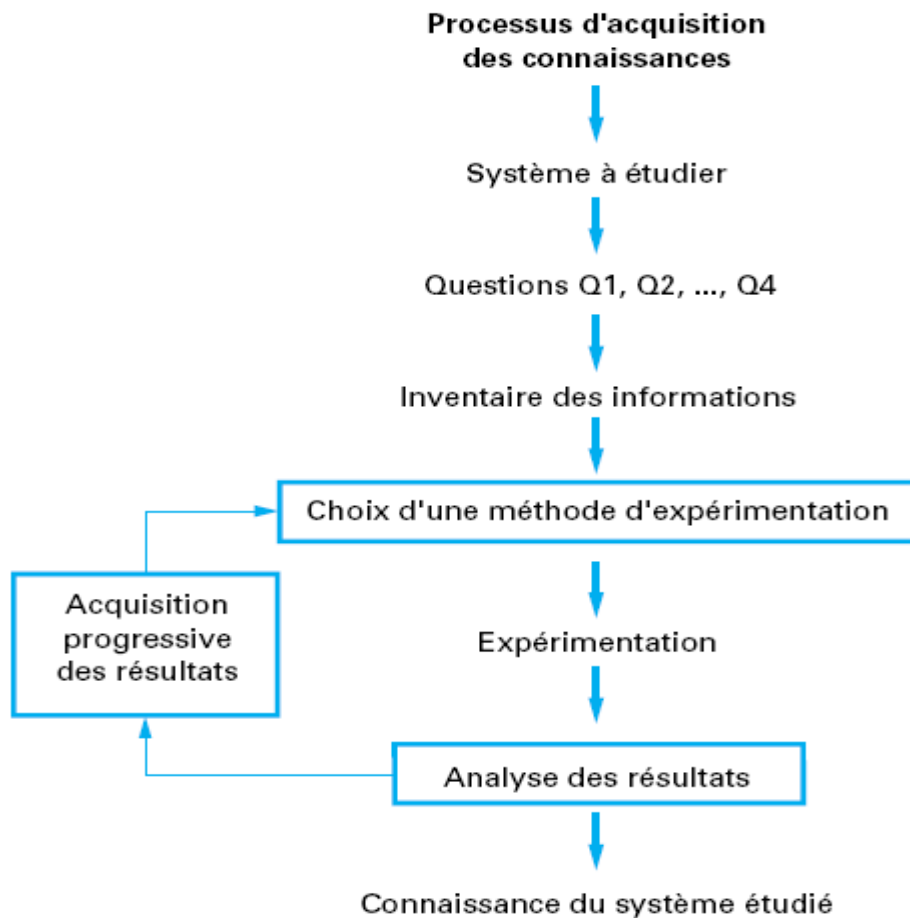


Figure 13 : Schéma d'acquisition des connaissances

1- Préparation de l'expérimentation

La préparation de l'expérimentation consiste en une réflexion préalable effectuée soit seul, soit en groupe, et permettant :

- de préciser avec soin les réponses qui seront enregistrées à chaque essai ;
- de rechercher tous les facteurs pouvant influencer sur le processus étudié ;
- de définir les domaines d'étude de chacun des facteurs ;
- d'envisager les erreurs systématiques possibles pour éventuellement s'en affranchir ;
- de prévoir les contraintes expérimentales possibles ;
- d'organiser des essais supplémentaires pour évaluer l'erreur expérimentale.

Cette réflexion préalable peut durer plusieurs heures au cours desquelles se dégagent avec précision les principaux éléments à prendre en compte pour organiser au mieux les essais. Il est ensuite facile



de choisir les plans qui conviennent le mieux au problème posé : nombre de facteurs, ordre des essais, confusion à éviter, etc...

2- Analyse des résultats

Lorsque l'on possède les résultats des essais, il faut s'assurer, avant d'entreprendre les calculs :

- qu'il n'y a pas de résultats aberrants ou faux ;
- que les niveaux ont bien été respectés au cours de l'expérimentation;
- que le modèle mathématique retenu a priori représente bien les résultats d'expériences;
- que l'on a bien évalué les risques d'ambiguïté.

Étant sûr de la qualité de ses résultats, l'expérimentateur va pouvoir procéder aux calculs et à l'interprétation. En fonction des conclusions, il saura s'il a atteint pleinement son but ou s'il doit envisager une nouvelle série d'essais pour compléter son information.

3- Acquisition progressive des connaissances

Si l'expérimentateur n'a pas toutes les réponses aux questions posées ou si les premiers résultats soulèvent de nouvelles questions, il va entreprendre des essais supplémentaires. Les conclusions du premier plan lui permettront d'orienter les nouvelles investigations. En particulier, il saura :

- si le domaine d'étude retenu contient les réponses qui l'intéressent ; si oui, il le conservera ; sinon, il saura dans quelle direction il faut aller pour trouver ce qu'il cherche ;
- s'il doit envisager un modèle mathématique différent pour expliquer les résultats des essais ; le modèle du premier degré est parfois insuffisant et des expériences complémentaires devront être entreprises pour établir un modèle du second degré ;
- s'il faut prévoir des essais ou des plans complémentaires pour lever les éventuelles ambiguïtés.

L'organisation des expériences au départ de l'étude est telle que les nouveaux essais viendront s'intégrer harmonieusement aux premiers, évitant ainsi toute perte de temps ou d'argent. Les premiers résultats, s'ils ne répondent pas entièrement aux questions posées, serviront à orienter le choix des nouvelles expériences.

III. Modélisation mathématique

En l'absence de toute information sur la fonction qui lie la réponse aux facteurs, couramment, nous utilisons des équations analytiques pour modéliser un système ou phénomène physique.

$$y = f(x_1, x_2, x_3, \dots, x_n)$$

Où y représente la réponse du système modélisé, $x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$ les différents facteurs sur lesquels l'utilisateur peut agir et $f()$ la fonction mathématique reliant la réponse du système aux différents facteurs.

Cette fonction est trop générale et il est d'usage d'en prendre un développement limité de Taylor-Mac Laurin, c'est-à-dire une approximation. Le développement précédent prend la forme d'un polynôme de degré plus ou moins élevé :



$$y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ii} x_i^2 + \dots$$

Où :

- y est la grandeur à laquelle s'intéresse l'expérimentateur ; c 'est la réponse ou la grandeur d'intérêt,
- x_i représente un niveau du facteur i ,
- x_j représente un niveau du facteur j ,
- a_0, a_i, a_{ij}, a_{ii} sont les *coefficients* du polynôme.

Ce modèle est appelé le modèle *a priori* ou le modèle *postulé*. Les modèles établis sont des modèles de prévision valables dans le domaine d'étude, domaine que l'on doit toujours préciser.

CHAPITRE III : OPTIMISATION DE LA CRISTALLISATION AU SEIN DE LA COSUMAR

Introduction

A l'échelle industrielle, l'optimisation des paramètres pouvant influencer la granulométrie et la distribution granulométrique du sucre concerne pratiquement la conduite de la cristallisation, et la préparation de la semence. En effet, pour avoir une qualité de sucre optimale, il faut veiller d'une part à l'emploi d'une semence homogène et d'autre part au contrôle de l'apparition spontanée de germes de cristaux. Il est donc important de maîtriser la cuisson afin de prévoir et de contrôler la granulométrie finale du produit cristallisé.



C'est dans cette perspective que 5 facteurs ont pu être étudiés par l'intermédiaire d'un plan d'expériences pour maîtriser la cuisson afin de prévoir et de maîtriser la granulométrie du sucre issu de l'appareil à cuire **R3 (cuite R3)**.

- Durée de broyage de la semence;
- Quantité de la semence;
- Température des platulaires;
- Brix au grainage;
- Durée de grossissement.

Afin, dans une étape ultérieure, d'optimiser (minimiser) le **Coefficient de Variation -C.V-** du sucre issu de la cuite R3, nous avons fait une étude préliminaire permettant de trouver (cribler), parmi l'ensemble des facteurs, ceux dont la variation entraîne une variation de la réponse étudiée. Un modèle mathématique du premier degré a été envisagé par le biais d'un **plan de criblage**.

En deuxième approche, nous avons effectué un **plan d'optimisation** (basé sur un modèle mathématique du deuxième degré). L'intérêt de ce type de plan est de permettre, une optimisation plus fine et plus fiable de la granulométrie du sucre issu de la cuite R3. Nous avons conservé alors que les facteurs jugés les plus influents et affiner l'étude dans la zone où semble se situer la réponse optimum.

Le choix des facteurs entrant dans le plan d'expérience et leurs bornes respectives nécessitent néanmoins une bonne connaissance des règles de l'art et une large discussion avec l'équipe de pilotage de la cristallisation.

Autrement dit, nous avons proposé la démarche suivante :

- Réalisation d'un **plan de criblage** afin de sélectionner les facteurs potentiellement influents sur le coefficient de variation -C.V- du sucre granulé issu de la cuite R3;
- Réalisation d'un **plan d'optimisation** afin de déterminer les réglages des facteurs jugés influents donnant des bons résultats.

I. FORMALISATION DU PROBLEME

1- Objectifs assignés au plan d'expériences

- 1- Le **criblage** des facteurs potentiellement influents sur le coefficient de variation -C.V- du sucre granulé au niveau de la Cuite R3 ;
- 2- L'optimisation du CV du sucre granulé issu de la cuite R3.

2- Facteurs

a- Durée de broyage de la semence



Plus la durée de broyage augmente plus le nombre de fines augmente. Les fines introduites dans la semence sont généralement dissoutes et disparaissent au grainage.

Rq : une étude démontre la fragilité des germes de dimension inférieure à 2-3 micromètres qui disparaissent au moment de l'introduction en cuite et ceci quelle que soit la sursaturation. Des particules de semence trop fines peuvent se dissoudre, entraîner la création de nucléation spontanée et un C.V élevé.

b- sursaturation au grainage (Brix au grainage)

D'une cuite à l'autre, la phase de grainage se fait toujours à une même valeur de Brix 80. Pour contrôler la nucléation spontanée des cristaux il faut, avant tout, maîtriser la sursaturation au moment du grainage. Plus cette dernière est basse plus le risque d'apparition spontanée de germes est faible.

c- Quantité de semence

Cette quantité dépend du volume final de la cuite et de la granulométrie du sucre .La quantité de semence utilisée est d'environ 0,25 L

d- Températures des platulaires

Les platulaires sont des échangeurs de chaleurs placés avant la cuite dont le rôle est la fonte des cristaux qui peuvent entrer avec le sirop d'alimentation et perturber la maîtrise de la granulométrie de la cuite.

Une augmentation de la température provoque une accélération de la croissance des cristaux, à condition de rester à la même sursaturation. La température des platulaires est de 85°C.

Rq : l'augmentation de la température aboutit à une diminution de la viscosité

e- Durée du grossissement

Les microcristaux de la semence grossissent assez vite dans le plus petit volume disponible. La durée est de 900 secondes.

II. Plan de criblage

L'objectif de l'étude est de sélectionner les facteurs les plus influents sur le coefficient de variation du sucre granulé issu de la cuite R3. Il s'agit d'une étude préliminaire devant servir à préparer un plan d'optimisation. Il s'agit donc d'une étude de criblage faisant intervenir 5 facteurs.

Il y a 6 inconnues à déterminer : la constante (a_0) et les 5 effets principaux. Il faut donc au moins 6 essais. Le plan classique le plus proche est un plan de Plackett et Burman (ou HADAMARD) de 8 essais.

Les plans de Plackett et Burman sont des plans qui ne permettent de déterminer que les effets principaux des facteurs. Ils ne permettent pas d'évaluer les interactions. Toutes les interactions sont



donc supposées nulles avant même l'expérimentation (8). Le modèle mathématique adopté au départ de l'étude est un modèle du premier degré:

$$y = a_0 + \sum a_i x_i$$

Où :

- a_0 : effet moyen ;
- a_i : effet du facteur i ;
- x_i représente un niveau du facteur i .

1- construction de la matrice d'expériences

La construction du plan se fait comme suit :

- Rechercher le premier essai du plan dans la table (encadré rouge);
- Générer les n-2 essais suivants par permutation cyclique ;
- Pour le dernier essai, mettre tous les facteurs au niveau -1 ;
- Retirer éventuellement les colonnes superflues (encadré vert).

Tableau 2: Tableau de construction de la première ligne de la matrice

N	Premier essai du plan d'un plan de Plackett et Burman
4	-1 +1 +1
8	+1 +1 +1 -1 +1 -1 -1
12	+1 +1 -1 +1 +1 +1 -1 -1 -1 +1 -1
16	+1 +1 +1 +1 -1 +1 -1 +1 +1 -1 -1 +1 -1 -1 -1
20	+1 +1 -1 -1 +1 +1 +1 +1 -1 +1 -1 +1 -1 -1 -1 +1 +1 -1
24	+1 +1 +1 +1 +1 -1 +1 -1 +1 +1 -1 -1 +1 +1 -1 -1 +1 -1 -1 -1 -1

Donc la matrice d'expériences est la suivante :

N°exp	Durée de broyage	Brix au grainage	Qnt. de la semence	T°. platulaires	Durée grossissement	Colonnes superflues	
						X6	X7
1	1	1	1	-1	1	-1	-1
2	-1	1	1	1	-1	1	-1
3	-1	-1	1	1	1	-1	1
4	1	-1	-1	1	1	1	-1



5	-1	1	-1	-1	1	1	1
6	1	-1	1	-1	-1	1	1
7	1	1	-1	1	-1	-1	1
8	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1

 : Permutation

Les niveaux des facteurs (domaine Expérimental) sont résumés dans le tableau :

Tableau 3 : domaine expérimental de l'étude

Facteur	Durée de broyage (h)	Brix au grainage (°)	Qnt. de la semence (L)	T°. platulaires (°C)	Durée grossissement (s)
Niveau bas (-1)	3h	77,5	0,1	86,5	300s
Niveau haut (1)	3h30min	80	0,2	90	900s

Le plan réalisé a pour objectif de connaître la réponse (coefficient de variation) observée en fonction de la variation des différents facteurs. Chaque facteur varie comme illustre sur le tableau ci-dessous.

Tableau 4 : Tableau du plan d'expérimentation (criblage)

N°.Exp	Durée de broyage	Brix au grainage	Qnt. de la semence	T°. platulaires	Durée grossissement	C. V (%)
1	3h30	80	0,2	85	900	36
2	3h30	80	0,2	85	900	35
3	3h	80	0,2	86,5	300	35
4	3h	80	0,2	86,5	300	36
5	3h	77,5	0,2	86,5	900	34
6	3h	77,5	0,2	86,5	900	36
7	3h30	77,5	0,1	86,5	900	35
8	3h30	77,5	0,1	86,5	900	35
9	3h	80	0,1	85	900	34
10	3h	80	0,1	85	900	33
11	3h30	77,5	0,2	85	300	36
12	3h30	77,5	0,2	85	300	35
13	3h30	80	0,1	86,5	300	31
14	3h30	80	0,1	86,5	300	33



15	3h	77,5	0,1	85	300	34
16	3h	77,5	0,1	85	300	33

N.B : chaque expérience a été réalisée 2 fois afin d'aboutir à un bon criblage.

Le modèle mathématique postulé est un simple modèle polynomial ne faisant intervenir que les termes du premier degré :

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_4x_4 + b_5x_5$$

Une fois la réponse connue, nous pouvons alors interpréter les résultats obtenus, afin de visualiser l'influence de chacun des facteurs.

2- Interprétation des résultats

Les résultats ainsi que l'interprétation de ce plan d'expériences doivent nous conduire à connaître les facteurs prépondérants qui influent sur le coefficient de variation. C'est la connaissance de ces influences qui nous permettra d'optimiser ultérieurement le CV en fonction des facteurs considérés. Ce plan nous a conduits à la visualisation des résultats sous la forme d'un diagramme en bâton.

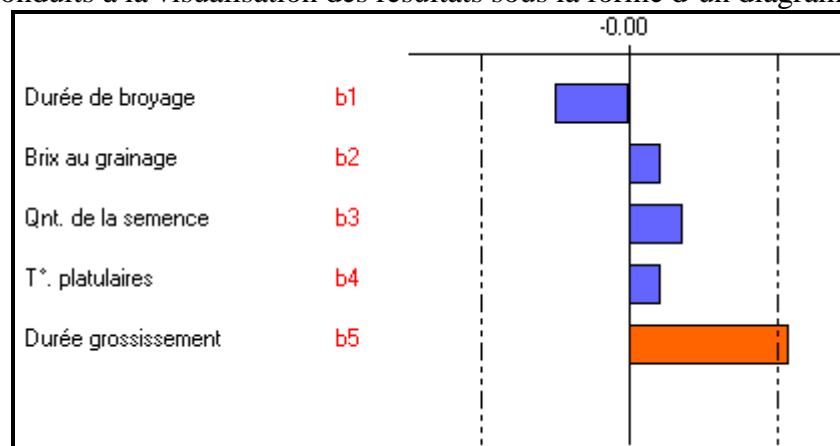


Figure 14 : Diagramme en bâton du plan de criblage

Cette visualisation nous permet d'observer simplement les effets du passage d'un facteur d'un état milieu (niveau 0) à un état haut ou à un état bas.

L'effet de la durée de grossissement est le plus élevé. Une variation de la durée de grossissement du niveau 0 au niveau 1 abouti à une augmentation importante du coefficient de variation. De même, une augmentation de la température des platulaires, de la quantité de la semence, et du Brix au grainage entraîne une élévation du coefficient de variation. Cependant la durée de broyage influence sur le CV dans le sens négatif, cela signifie que c'est le passage du niveau 0 au niveau bas qui conduit à une augmentation du CV.

Une observation du diagramme permet d'un coup d'œil, de se rendre compte de l'importance de la durée de grossissement, qui est un facteur **potentiellement** influent sur le CV, et de l'importance de la quantité de la semence et de la durée de broyage qui sont des facteurs **moyennement** influents.



C'est donc ces facteurs (**durée de grossissement, durée de broyage et quantité de semence**) qui vont être les plus efficaces pour approcher ou atteindre l'objectif et qui seront retenues pour réaliser le plan d'optimisation. Les autres facteurs jouent un rôle mineur sur le CV.

À travers ce plan, nous voyons tout l'intérêt d'un plan de criblage qui élimine tous les facteurs dont l'effet est secondaire et conserver les facteurs jugés les plus influents afin d'affiner l'étude par le biais d'une optimisation

III. Plan d'optimisation

Le modèle d'ordre un étudié, ne permet pas toujours de rendre compte correctement du phénomène étudié. Il existe en effet des situations où de tel modèle va s'avérer trop pauvre, principalement parce qu'il ne comporte pas de termes aptes à traduire une "courbure" dans la réponse étudié.

Afin de pallier ce type de problème il est possible d'ajuster un modèle polynomial complet de degré deux (contenant un effet moyen général, des effets linéaires, des effets d'interactions mais aussi des effets quadratiques) permettant une bonne modélisation du phénomène étudié. Un tel plan est dit **plan pour surfaces de réponse**.

Ce choix a été motivé par le fait que notre but est surtout d'optimiser le coefficient de variation. L'optimisation impose l'utilisation d'un plan de surface de réponse qui est fortement dépendant du choix du modèle polynomial, en l'occurrence un modèle de 2nd degré incluant aussi les effets dits quadratiques a_{11} , a_{22} et a_{33} . Ce modèle est donc donné explicitement par :

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_{12}x_1x_2 + b_{13}x_1x_3 + b_{23}x_2x_3 + b_{11}x_1^2 + b_{22}x_2^2 + b_{33}x_3^2$$

Avec :

b_0 : effet moyen

b_1 : effet de la durée de grossissement

b_2 : effet de la durée de broyage

b_3 : effet de la quantité de semence

b_{12} : interaction entre grossissement et broyage

b_{13} : interaction entre grossissement et quantité de semence

b_{23} : interaction entre broyage et quantité de semence

b_{11} : effet quadratique de grossissement

b_{22} : effet quadratique broyage

b_{33} : effet quadratique quantité de semence



Du fait de l'intervention de trois facteurs facilement modulables, un plan **composite centré** paraît tout à fait approprié. Ce plan d'expérience est constitué par un total de **17 expériences** et permet l'estimation des 10 paramètres inconnus du modèle.

Le plan d'expériences ainsi choisi est optimum : il permet, en effet, d'estimer les effets principaux et les interactions pressenties sans ambiguïté.

1- Construction de la matrice du plan composite centré

Un tel plan d'expérience est qualifié de composite car il est constitué de trois parties différentes utilisables pour divers types d'ajustements. La première partie (expériences 1 à 8) est la partie factorielle constituée par les 8 sommets du cube unité. La seconde partie (expériences 9 à 14) est la partie axiale constituée par des points sur les axes du repère utilisé. Chacune de ces 6 expériences utilise donc pour un des facteurs des niveaux hors des valeurs de fonctionnement usuelles. Enfin la dernière partie du plan composite (expériences 15 à 17) est constituée par une triple répétition de l'expérience qualifiée de centrale (avec tous les facteurs fixés à leur niveau moyen). Dans un contexte statistique il est intéressant de répéter plusieurs fois certaines expériences car la nature aléatoire du phénomène va entraîner que les réponses observées ne seront pas égales.

Le logiciel nous permet de générer la matrice correspondante au plan avec ajout de 3 points au centre.

Tableau 5 : Plan d'expériences et plan d'expérimentation (optimisation)

N°	Matrice d'expériences			Plan d'expérimentation			Réponse
	Durée de grossissement	Durée de broyage	Qt. De semence	Durée de grossissement (S)	Durée de broyage (h)	Qt. De semence (L)	C.V (%)
1	-1	-1	-1	300	3h	0.1	33
2	1	-1	-1	900	3h	0.1	35
3	-1	1	-1	300	3h30	0.1	32
4	1	1	-1	900	3h30	0.1	33
5	-1	-1	1	300	3h	0.2	31
6	1	-1	1	900	3h	0.2	32
7	-1	1	1	300	3h30	0.2	35
8	1	1	1	900	3h30	0.2	33
9	-1	0	0	300	3h15	0.15	33
10	1	0	0	900	3h15	0.15	34
11	0	-1	0	600	3h	0.15	34
12	0	1	0	600	3h30	0.15	35
13	0	0	-1	600	3h15	0.1	34
14	0	0	1	600	3h15	0.2	34
15	0	0	0	600	3h15	0.15	35
16	0	0	0	600	3h15	0.15	35
17	0	0	0	600	3h15	0.15	35

2- Interprétation et validation des résultats

a. Calcul des coefficients du modèle et test d'influence des facteurs



D'après les résultats obtenus par le logiciel NEMRODW sont présentés ci-dessous

Tableau 6 : Tableau des coefficients du modèle

Nom	Coefficient	F.Inflation	Ecart-Type	t.exp.	Signif. %
b0	34.775		0.173	201.55	< 0.01 ***
b1	0.300	1.00	0.128	2.35	4.96 *
b2	0.300	1.00	0.128	2.35	4.96 *
b3	-0.200	1.00	0.128	-1.57	15.9
b11	-1.106	1.54	0.246	-4.49	0.302 **
b22	-0.106	1.54	0.246	-0.43	68.2
b33	-0.606	1.54	0.246	-2.46	4.25 *
b12	-0.500	1.00	0.143	-3.51	0.991 **
b13	-0.500	1.00	0.143	-3.51	0.991 **
b23	1.000	1.00	0.143	7.01	0.0291 ***

Les coefficients du tableau permettent d'écrire le modèle du coefficient de variation :

$$CV = 34.775 + 0.3 X_1 + 0.3 X_2 - 1.106 X_1^2 - 0.606 X_3^2 - 0.5 X_1 X_2 - 0.5 X_1 X_3 + X_2 X_3$$

D'après ces résultats:

- les facteurs, **durée de grossissement** et **durée de broyage** influencent de manière significative le coefficient de variation ;
- les interactions **grossissement × broyage**, **grossissement × quantité de semence** et **broyage × quantité de semence** semblent être significativement influents ;
- les effets quadratiques de la **durée de grossissement** et de la **quantité de semence** ont un effet significatif sur le CV.

b. Analyse de la régression

Les résultats obtenus par le logiciel NEMRODW sont présentés ci-dessous :

Un tableau donnant les résultats de l'analyse de la variance et un autre donnant les résultats des estimations statistiques des coefficients.

Tableau 7 : Tableau de l'analyse de la variance

Source de variation	Somme des carrés	Degrés de liberté	Carré moyen	Rapport	Signif
Régression	24.3914	9	2.7102	16.6701	0.0931 ***
Résidus	1.1380	7	0.1626		
Total	25.5294	16			

Tableau 8 : Estimations statistiques des coefficients statistiques

Ecart Type de la réponse	0.403
--------------------------	-------



R^2	0.955
R^2_A	0.898
R^2_{pred}	0.389
PRESS	15.609
Nombre de degrés de liberté	7

Le coefficient de corrélation linéaire multiple quantifie de manière claire la très bonne qualité de l'ajustement (puisque $R^2 = 0.955 \approx 1$).

- ✓ Ce coefficient R^2 qui est le rapport entre la **somme des carrés des écarts entre les valeurs calculées et la moyenne des valeurs / somme des carrés des écarts entre les valeurs expérimentales et la moyenne des valeurs** (SCM/SCT) c'est-à-dire $24.3914/25.5294$ est égal à 0,955. Ce coefficient nous permet de conclure que notre modèle postulé permet d'expliquer 95,5% du phénomène étudié. Les 4,5% restants sont dus aux résidus.
- ✓ De même le coefficient R^2_A qui est égal à 0,898 donne une idée sur l'ajustement du modèle. Dans notre étude, l'ajustement du modèle est de 89,8% ce qui traduit une bonne qualité de l'ajustement de l'estimation des coefficients de l'équation.
- ✓ Le test de signification montre que notre modèle explique significativement le coefficient de variation à un seuil de 0.0931 %.

c. Distribution des résidus

Le logiciel peut éditer le "**tableau des résidus**" (donné ci-dessous) permettant de juger de manière plus précise, c'est-à-dire expérience par expérience, de la qualité de l'ajustement réalisé. La comparaison entre les colonnes "**Yexp**" (réponses mesurées) et "**Ycalc**" (réponses prédites par le modèle) confirme que l'ajustement est de très bonne qualité (21). Les autres colonnes proposées par ce logiciel évaluent la différence entre les réponses mesurées et prédites (colonne "**Différence**") et font subir un certain nombre de transformations à ces valeurs afin de les rendre statistiquement plus faciles à interpréter (par exemple tout résidu dit "studentisé" supérieur à 2 en valeur absolue traduit un défaut d'ajustement important).

Tableau 9 : Tableau des résidus

N°Exp	Yexp.	Ycalc.	Différence	Normée	dU	Student -R	R-Student	D-Cook
1	33.000	32.558	0.442	1.097	0.795	2.421	5.555	2.269
2	35.000	35.158	-0.158	-0.391	0.795	-0.863	-0.846	0.289
3	32.000	32.158	-0.158	-0.391	0.795	-0.863	-0.846	0.289
4	33.000	32.758	0.242	0.601	0.795	1.326	1.419	0.681



5	31.000	31.158	-0.158	-0.391	0.795	-0.863	-0.846	0.289
6	32.000	31.758	0.242	0.601	0.795	1.326	1.419	0.681
7	35.000	34.758	0.242	0.601	0.795	1.326	1.419	0.681
8	33.000	33.358	-0.358	-0.887	0.795	-1.958	-2.696	1.485
9	33.000	33.369	-0.369	-0.915	0.515	-1.315	-1.403	0.184
10	34.000	33.969	0.031	0.077	0.515	0.110	0.102	0.001
11	34.000	34.369	-0.369	-0.915	0.515	-1.315	-1.403	0.184
12	35.000	34.969	0.031	0.077	0.515	0.110	0.102	0.001
13	34.000	34.369	-0.369	-0.915	0.515	-1.315	-1.403	0.184
14	34.000	33.969	0.031	0.077	0.515	0.110	0.102	0.001
15	35.000	34.775	0.225	0.559	0.183	0.618	0.589	0.009
16	35.000	34.775	0.225	0.559	0.183	0.618	0.589	0.009
17	35.000	34.775	0.225	0.559	0.183	0.618	0.589	0.009

Si l'interprétation a été bien faite, le modèle doit bien représenter les réponses mesurées (R^2 proche de 1). Il est important de regarder comment les résidus se répartissent en fonction des réponses prévues. Les résidus d'un bon modèle doivent être distribués aléatoirement autour de zéro et ne pas dépendre de la valeur de la réponse. Notre analyse des résidus ne fait pas apparaître des dispositions remarquables (des résidus de plus en plus élevés lorsque la réponse augmente).

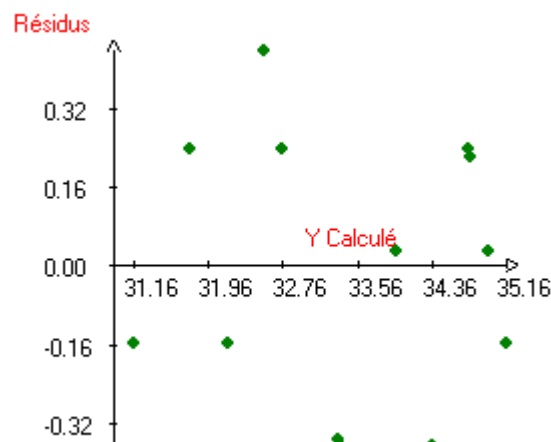


Figure 15 : Analyse des résidus (nuage de points)

Ceci peut être vérifié par la droite d'Henry où les résidus d'un modèle fiable doivent suivre une distribution normale. Dans notre modèle L'analyse nous permet de dire que les résidus sont distribués **normalement** selon une droite de Henry.

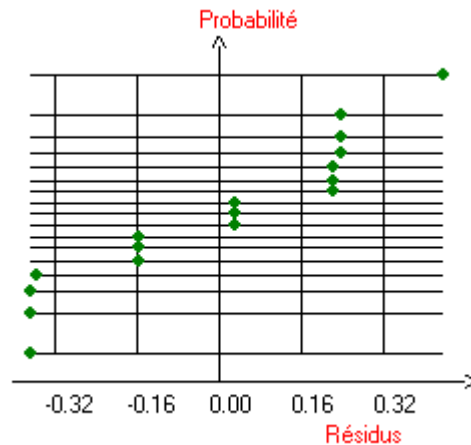


Figure 16 : Analyse des résidus (droite d'Henry)

Donc nous pouvons dire que le modèle mathématique associé à l'étude du coefficient de variation est validé statistiquement.

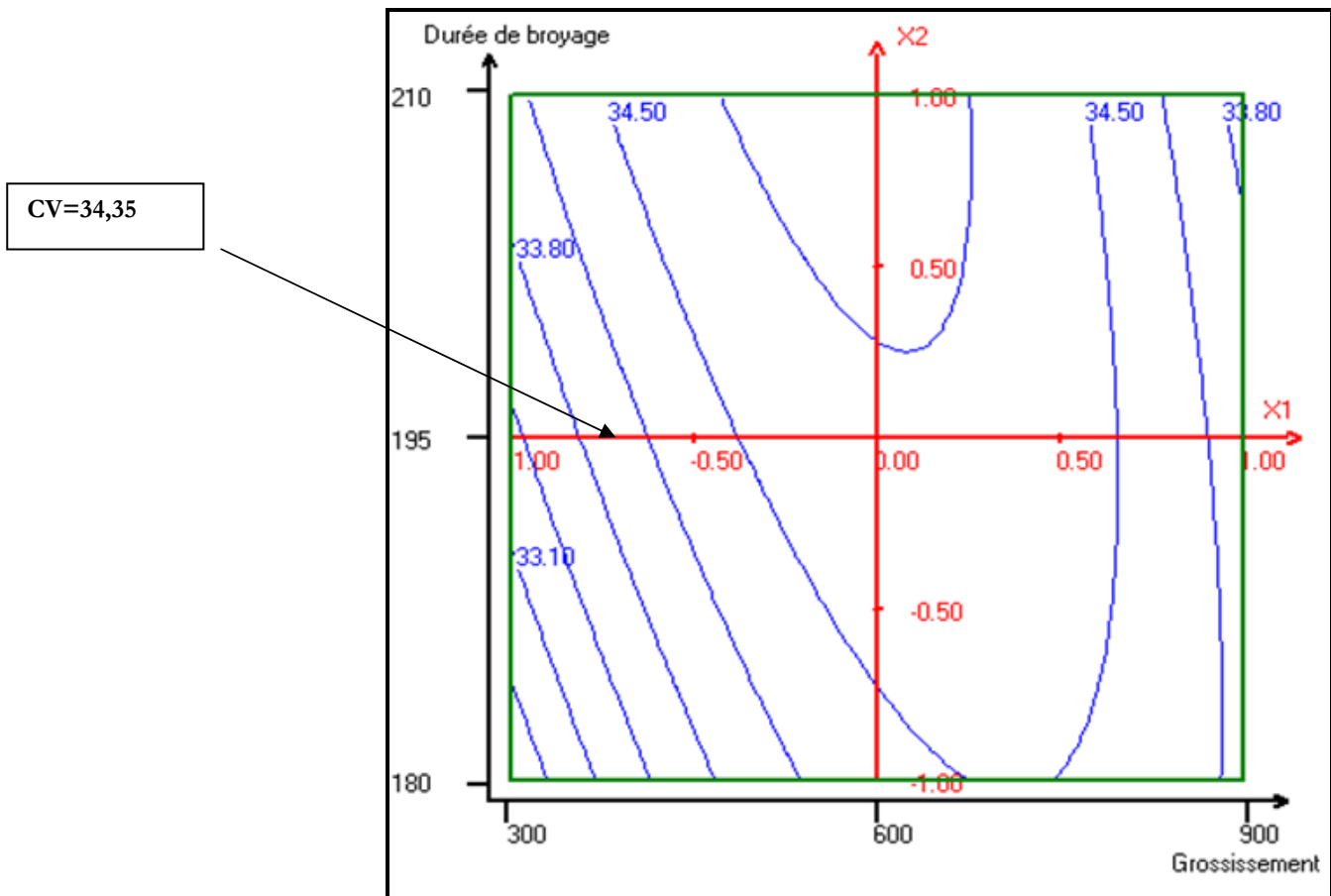
d. Test de validation expérimentale du modèle mathématique

Avant de faire des propositions, pour optimiser le coefficient de variation, il est bon de réaliser des expériences de contrôle pour confirmer les prévisions. Il faut réaliser donc trois essais de validation. Pour cela nous avons choisi au hasard un point au domaine expérimental, dont la valeur du coefficient de variation est connue (prédite par l'intermédiaire du modèle mathématique).

Ce point expérimental correspond aux réglages suivant :

- Grossissement: 450 s
- Broyage: 3h15
- Semence: 0,15L

. Grâce aux modèles établis, nous avons calculé des prévisions du coefficient de variation pour les conditions opératoires données. La valeur du CV prédite par le logiciel est de 34,35.



Expérimentalement 3 cuites R3 ont été réglées d'une façon à respecter ces conditions, et nous avons mesuré le CV du sucre granulé issu de ces 3 cuites :

N° d'essai	Durée de grossissement	Durée de broyage	Qnt de semence	CV
1	450 s	3h15	0,15L	34
2	450 s	3h15	0,15L	34
3	450 s	3h15	0,15L	35

Donc la valeur moyenne du coefficient de variation mesuré est de :

$$CV_{\text{moy}} = 34,33$$

Nous comparons les prévisions CV_{moy} = 34,33 que aux mesures effectuées. Nous constatons un bon accord : Le modèle que nous avons établi explique bien les résultats expérimentaux. **Le modèle est donc validé.**

3- Représentation des surfaces de réponse



Notre objectif est de trouver les conditions permettant d'atteindre le coefficient de variation minimal. Pour ce faire, nous avons effectué au moyen du logiciel NEMRODW l'étude graphique de la variation du CV en faisant varier les facteurs. L'exemple choisi montre l'influence de la **durée de grossissement** et de la **durée de broyage** sur le CV, sous condition que la quantité de semence soit maintenue constante.

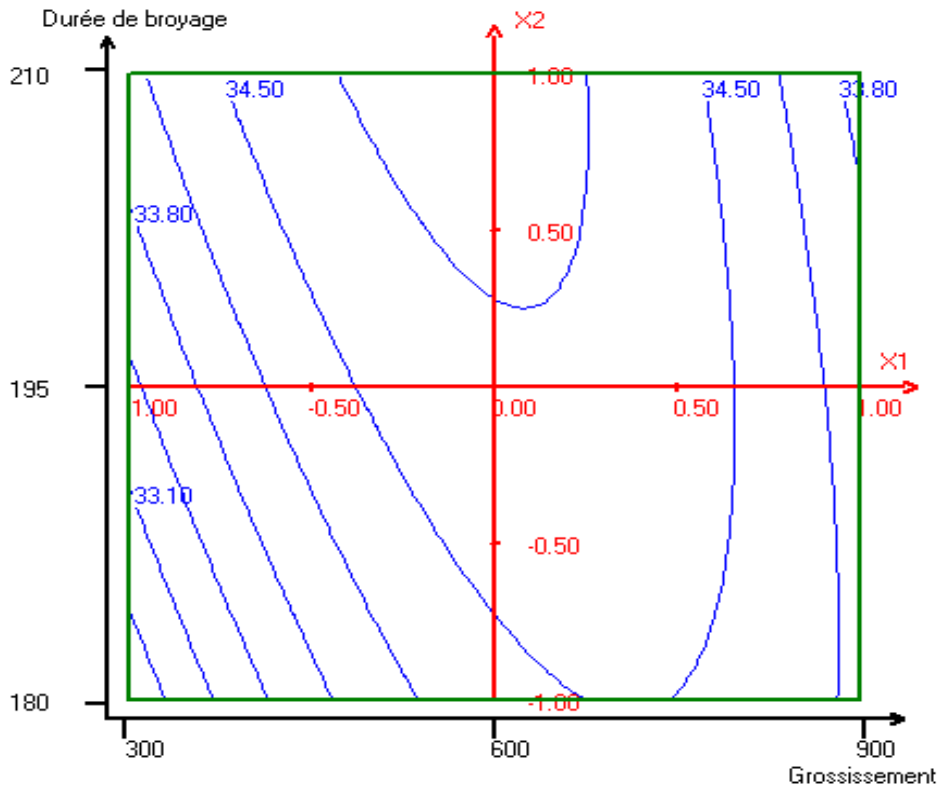


Figure 17 : La représentation en 2D du CV dans le domaine expérimental : $\text{Grossissement} \times \text{Broyage}$

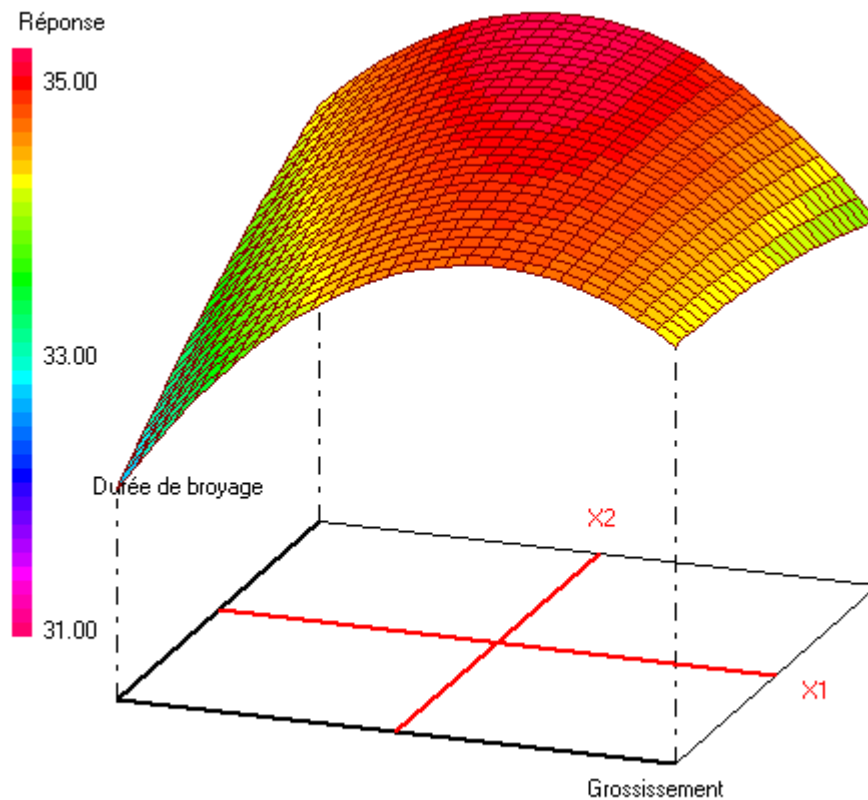


Figure 18 : La représentation en 3D de la réponse dans le domaine expérimental : Grossissement \times Broyage

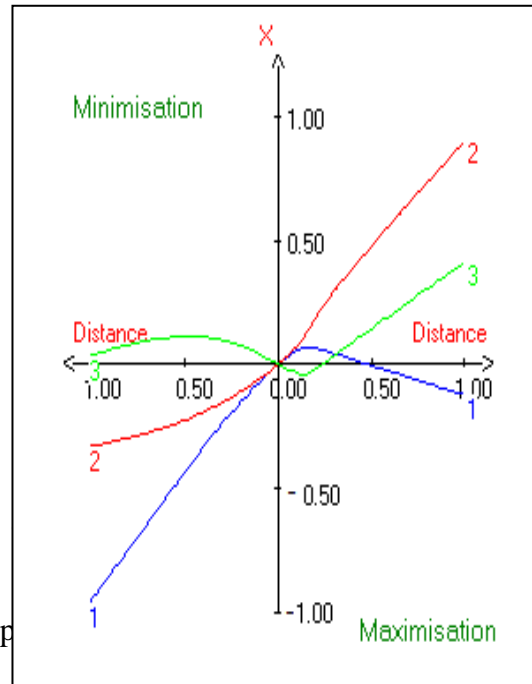
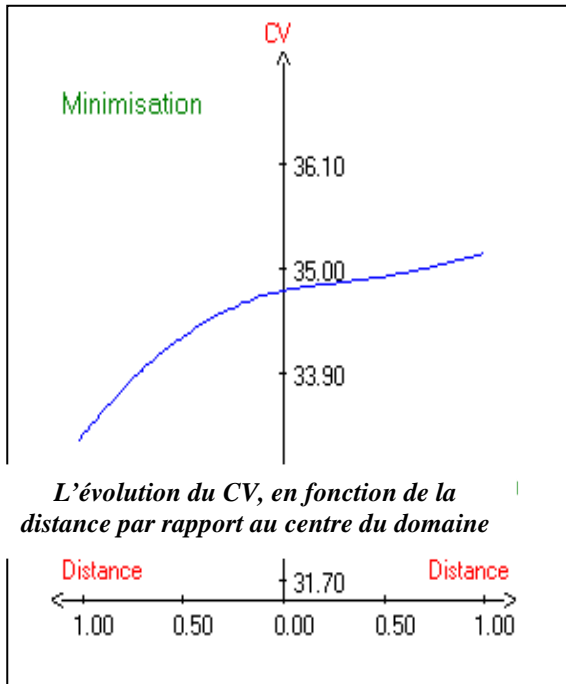
Les courbes indiquent un coefficient de variation minimal qui se situe dans le quart inférieur gauche, c'est-à-dire aux faibles durées de grossissement et aux faibles durées de broyage.

À l'examen des deux surfaces de réponse nous avons constaté que notre objectif peut être atteint. Les conditions optimales sont les suivantes :

- La durée de grossissement sera réglée au niveau -1, c'est-à-dire à une valeur de 300 secondes ;
- La durée de broyage sera fixée au niveau -1, c'est-à-dire à 3h de broyage de semence.

4- Optimisation du coefficient de variation

L'étape finale consiste à rechercher les conditions optimales pour le problème posé, c'est-à-dire les valeurs de la durée de grossissement, de la durée de broyage ainsi que la quantité de semence amenant à minimiser le CV.



- 1-Grossissement
- 2-Broyage
- 3-Qnt. de semence

à partir du
 ation (partie

La valeur minimale du coefficient de variation est obtenue dans le cas où la durée de grossissement est abaissée de son niveau moyen à son niveau bas. De la même manière la valeur du CV diminue quand la durée de broyage tend vers le niveau bas. Une quantité de semence au niveau moyen s'avère convenable pour minimiser le coefficient de variation.

5- Conclusion de l'étude

Comme nous avons pu le constater d'après les résultats obtenus précédemment le meilleur modèle permet d'écrire le coefficient de variation sous la forme :

$$CV = 34.775 + 0.3 X_1 + 0.3 X_2 - 1.106 X_1^2 - 0.606 X_2^2 - 0.5 X_1 X_2 - 0.5 X_1 X_3 + X_2 X_3$$



Ce modèle a été volontairement simplifié par élimination des effets jugés non significatifs dans l'analyse précédente. Ceci permet de manipuler plus facilement cette expression réduite tout en gardant une qualité d'ajustement quasiment similaire.

Le coefficient de variation de la distribution granulométrique du sucre issu de la cuite R3 est surtout influencé par la durée de grossissement. Il apparaît que les conditions expérimentales optimales, c'est-à-dire celles permettant de minimiser le CV du produit sont obtenues pour les réglages donnés ci-dessous :

Durée de grossissement	300 s
Durée de broyage	3h
Quantité de semence	0,15 L

CONCLUSION

La confection du sucre repose sur des principes physicochimiques de cristallisation du saccharose qui demeurent encore aujourd'hui plutôt obscurs. Il est donc absolument nécessaire d'effectuer la caractérisation des effets des paramètres de fabrication sur la cristallisation si l'on veut être en mesure de contrôler le procédé de fabrication et d'offrir un produit à la fois constant et de haute qualité.

Ce projet avait pour objectif principal l'optimisation de la granulométrie du sucre de la cuite R3. Plus précisément, il était visé de bien cerner comment la variation des facteurs, principalement ceux dont l'effet est jugé significatif, influencent le comportement du coefficient de variation.

C'est dans cette optique que cinq facteurs de cristallisation ont pu être étudiés par le biais d'un plan d'expériences, soient la durée de broyage de la semence, la quantité de la semence, la température des platulaires, le Brix au grainage et la durée de grossissement. Il a été possible de visualiser les effets de ces paramètres sur la **granulométrie** et la **distribution granulométrique** du sucre.

La modélisation du coefficient de variation est une brique essentielle dans l'optimisation de la distribution granulométrique du sucre en milieu industriel. Pour cela, nous avons tout d'abord



identifié les facteurs significativement influents, afin de déterminer, dans une étape ultérieure, les réglages permettant de minimiser le CV.

Le présent travail a permis de faire le point sur tout l'aspect théorique entourant la confection de sucre, soit la cristallisation du saccharose. Dans un premier temps, nous avons étudié l'influence des 5 facteurs sur le coefficient de variation de la granulométrie du sucre granulé issu de l'appareil à cuire R3. L'étude a permis de sélectionner les facteurs potentiellement influents sur le CV par l'intermédiaire d'un plan de criblage. Les résultats obtenus ont permis de discerner 3 facteurs (durée de grossissement, durée de broyage et quantité de semence) dont la variation entraîne une évolution du coefficient de variation.

Dans un deuxième temps, nous avons abordé l'étude de ces 3 facteurs via un plan d'optimisation (plan composite centré). Ce plan a permis de faire le point d'une manière plus raffinée sur l'effet de chaque facteur et sur les effets quadratiques. Nous avons porté ensuite un intérêt tout particulier aux différentes interactions entre les 3 facteurs.

A l'aboutissement de ce projet, nous avons obtenu des résultats satisfaisants et le modèle élaboré montre de bonnes performances. D'une part les paramètres estimés ont permis de minimiser le coefficient de variation, et d'autre part le modèle élaboré a été validé statistiquement et expérimentalement.