



Du mélange au génie des procédés des solides divisés, études multi-échelles

Cendrine Gatumel

► To cite this version:

Cendrine Gatumel. Du mélange au génie des procédés des solides divisés, études multi-échelles. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Toulouse, 2020. tel-03290864

HAL Id: tel-03290864

<https://imt-mines-albi.hal.science/tel-03290864>

Submitted on 19 Jul 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HABILITATION À DIRIGER LES RECHERCHES

DU MÉLANGE AU GÉNIE DES PROCÉDÉS DES SOLIDES DIVISÉS, ÉTUDES MULTI-ÉCHELLES

Présentée par

Cendrine Gatumel

Laboratoire RAPSODEE, CNRS UMR 5302

le 9 décembre 2020 à Albi

Jury

Véronique FALK	INPL	Rapporteur
Thierry RUIZ	Université de Montpellier	Rapporteur
Khashayar SALEH	Université de Technologie de Compiègne	Rapporteur
Béatrice BISCANS	CNRS Toulouse	Correspondante INPT
Henri BERTHIAUX	IMT Mines Albi	Président
Guillaume DELAPLACE	INRAE Lille	Examineur
Blanche DALLOZ	Aix-Marseille Université	Invitée

« Dans la vie y'a pas de grand, y'a pas de petit ; la bonne longueur pour les jambes,
c'est quand les pieds touchent bien par terre. »

Coluche

A mon père
(Sandeaux et al., 1977)

Mes premiers remerciements vont tout naturellement à Béatrice Biscans pour la bienveillance et l'enthousiasme avec lesquels elle a accueilli ce projet d'habilitation et accepté d'être ma correspondante INPT. Béatrice, au-delà de ce rôle très administratif, tu as su trouver les mots justes au bon moment. Je remercie infiniment Blanche Dalloz, Guillaume Delaplace, Véronique Falk, Thierry Ruiz, Khashayar Saleh qui m'ont fait le grand plaisir d'accepter si promptement de participer au jury ... et Henri de le présider.

Au moment où j'écris ces mots, premiers lus mais derniers écrits, tout est fini : le doute, l'introspection, la recherche du plan idéal, la documentation, l'introspection, la rédaction, les commentaires de maman sur mon manuscrit, le doute, les formalités administratives, la réception des rapports, le doute, l'angoisse devant les diapositives vides, l'angoisse devant les diapositives trop remplies et puis finalement le plaisir d'avoir 45 minutes pour parler de ce qui me plaît, de me remémorer tous ces moments partagés avec mes collègues et mes doctorants, les encouragements de chacun, le coaching de Bruno, Christine et Nathalie, le café-choco de Narendra, ma famille et collègues proches dans l'amphi, six selon le protocole sanitaire, pas un de plus, les autres sont au bout du lien, nous sommes en 2020 ... l'apparition des membres du jury dans mon écran d'ordinateur, le partage d'écran, tout qui s'accélère et puis ... cinq heures plus tard, l'HDR.

En réalité, ce fût un plaisir, parce que le quotidien Allée des sciences à Albi est souvent un plaisir, parce qu'il y a des moments de colère, des moments tristes et des bons moments, parce que nous avons tissé les liens qui nous permettent d'être une équipe, un laboratoire, une école, parce qu'il y a de l'estime et de l'envie. Henri, merci pour toutes ces années de quotidien d'enseignant-chercheur mutualisées, nos expériences d'enseignement, de recherche, d'encadrement, nos expéditions outre Atlantique, nos expériences gastronomiques diverses ... Collègues et amis artistes, coureurs, randonneurs, skieurs, snowboarders ... ce furent et ce sont toujours des moments privilégiés.

Dans les coulisses, il y a beaucoup de monde : Pierre, l'alchimiste du laboratoire, capable de transformer n'importe quelle matière en mélangeur ; Denis, qui n'a pas son pareil pour faire parler les instruments de mesure ; Laurent, le maestro du FT4 ; Christine et Philippe, pour qui les formes et mensurations des grains n'ont aucun secret ; Benjamin, comme un poisson dans l'eau dans les entrailles des processeurs de mes appareils informatiques.

Une mention particulière pour Dolores et tout le service de la « doc » qui ont assuré le *click and collect* bibliographique pendant le confinement, pour Olivier sans qui ce mémoire ne serait pas bien beau à voir.

Et puis ma famille ... ah, la famille ! Sarah qui m'a préparé de bons petits repas cet été lorsque je rédigeais, Hugo qui m'a régulièrement obligée à jouer au scrabble pour que je ne télé-travaille pas trop, Bruno qui a régulièrement organisé des apéros pour que je ne travaille pas trop (et donc merci les amis de vous être dévoués pour partager ces moments avec nous) ... Valérie, Vincent, Sylvianne, maman ... votre discussion WhatsApp durant la soutenance était surréaliste !

Voici à présent le moment de clore cette aventure d'HDR, Claire et Nathalie, je vous envoie « le bouquet de la mariée » ... c'est à vous !

Table des Matières

INTRODUCTION	15
1 CONTEXTE PROFESSIONNEL	15
2 LE FIL ROUGE	15
3 ORGANISATION DU MEMOIRE	16
CHAPITRE I ÉTAT DES ACTIVITES PROFESSIONNELLES	17
1 TITRES ET DIPLOMES, PARCOURS PROFESSIONNEL	19
1.1 <i>Titres et diplômes</i>	19
1.2 <i>Parcours professionnel</i>	19
1.3 <i>Responsabilités</i>	19
2 ACTIVITES PEDAGOGIQUES	20
2.1 <i>Enseignement</i>	20
2.2 <i>Ingénierie pédagogique</i>	20
2.3 <i>Encadrement</i>	21
3 ACTIVITE CONTRACTUELLE HORS CONTRATS D'ACCOMPAGNEMENT DE THESES	23
4 ACTIVITES DE RECHERCHE	23
4.1 <i>Encadrement</i>	23
4.2 <i>Production de recherche</i>	28
4.3 <i>Comités de thèse</i>	28
4.4 <i>Participation à des jurys de thèses hors RAPSODEE</i>	28
5 SYNTHESE	29
CHAPITRE II STRATEGIE DE RECHERCHE	31
1 ENTREE EN MATIERE	33
1.1 <i>La matière en poudre</i>	33
1.2 <i>La poudre dans tous ses états</i>	34
1.3 <i>De près ou de loin ? Tout est question d'échelle</i>	35
2 ÉTUDES SYSTEMIQUES DE MELANGE DES POUDRES	39
2.1 <i>Développement de méthodologies expérimentales pour étudier l'homogénéité et la dynamique de mélange</i>	40
2.2 <i>Mise en œuvre des chaînes de Markov pour la conduite des mélangeurs</i>	61
2.3 <i>Exploration de l'analyse dimensionnelle pour l'étude de l'agitation et le changement d'échelle</i>	74
2.4 <i>Conclusion</i>	86
3 AGITATION, COMPORTEMENT COLLECTIF ET CARACTERISTIQUES DE PARTICULES : ETUDES MULTI-ECHELLES	87
3.1 <i>Phénoménologie d'agitation, au-delà des échelles et de la géométrie</i>	88
3.2 <i>Expériences de traçage et modèle de Markov pour identifier des mécanismes de mélange à l'échelle mésoscopique</i>	99
3.3 <i>Caractéristiques des particules, forces mises en jeu et paramètres environnementaux</i>	104
3.4 <i>Propriétés des poudres – propriétés des mélanges ?</i>	116
3.5 <i>Conclusion</i>	124
4 SYNTHESE	126
CHAPITRE III MISE EN PERSPECTIVE	128
1 LES POUDRES DANS LES PROCEDES 4.0	128
1.1 <i>Contexte industriel</i>	128
1.2 <i>Projet de recherche</i>	130
2 ÉLÉMENTS DE MISE EN ŒUVRE DU PROJET	132
2.1 <i>Les moyens et collaborations</i>	132
2.2 <i>Contexte professionnel</i>	139
2.3 <i>« Diriger les recherches », réflexions autour de l'encadrement</i>	139
CONCLUSION GENERALE	140
BIBLIOGRAPHIE	141

LISTE EXHAUSTIVE DES PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS PERSONNELLES	148
ANNEXE.....	157

Table des illustrations

Figure 1 – Production scientifique et synthèse des activités	30
Figure 2 - Scientifiques ayant marqué la science des écoulements des fluides (haut) et des solides (bas), listes non exhaustives	33
Figure 3 - poudre dans l'air ambiant, en présence de condensation aux contacts	33
Figure 4 - Les échelles spatiales	34
Figure 5 – Écoulements et états de consolidation de la poudre dans les dispositifs industriels (Gotoh, 2018)	35
Figure 6 – Thèses et travaux encadrés, liens de précédence ; les thèses qui se rapportent aux études systémiques de mélange sont indiquées en orange, celles qui se rapportent aux études multi-échelles sont représentées en bleu ; les thèses encadrées en bleu marine sont soit en cours soit en projet.....	37
Figure 7 – (a) Diminution de l'échelle et de l'intensité de ségrégation par des mécanismes de convection et de diffusion (Schofield, 1970) (b) Suivi d'une cinétique de mélange : diminution d'un indice de mélange au cours d'un suivi cinétique, en lien avec les mécanismes de mélange probables	43
Figure 8 - Schématisation des échantillonnages stratifiés, sur une image représentée en fond gris, pour un mélange 24% couscous-76% lactose	44
Figure 9 - Moyennes (a) et variances (b) pour différents plans d'échantillonnage	45
Figure 10 – Pilote de mélange en continu et dispositif d'analyse en ligne de l'homogénéité du mélange en sortie du pilote	45
Figure 11 - Homogénéité de mélange en ligne à la sortie du mélangeur continu pour différentes tailles d'échantillons. Débit total 40 kg/h, vitesse d'agitation 40 Hz, composition massique du mélange 50% couscous fin- 50% couscous moyen	47
Figure 12 - Discrétisation du mélangeur et géométrie du mobile d'agitation	48
Figure 13 - (a) Répartition des masses internes dans les cinq cellules et leur compositions – débit 40 kg.h ⁻¹ , agitation 30Hz (b) répartition des teneurs en couscous fin – débit 40 kg.h ⁻¹ , mélange entrant 50% couscous fin	49
Figure 14 - (a) Mélange 50%-50% (b) Mélange 12,5%-87,5% - échantillons 5,5g	50
Figure 15 – Mélangeur Triaxe : schéma du système d'agitation combinant rotation et giration	51
Figure 16 - Trajectoire (simulation 10s) d'un point en bout de pale pour une vitesse du moteur de giration de 3000 tr.min ⁻¹ et rotation 1000 tr.min ⁻¹ (a) pour une vitesse du moteur de giration de 1200 tr.min ⁻¹ et rotation 2400 tr.min ⁻¹ (b) vitesse linéaire de bout de pale (c) et angle d'attaque des pales (d) pour les mêmes combinaisons de vitesses.....	52
Figure 17 - Détermination du temps de mélange pour un mélange de couscous/semoule, vitesse moteur giration 900 tr.min ⁻¹ et rotation 225 tr.min ⁻¹	53
Figure 18 - Temps de mélange en fonction du produit des vitesses des axes de rotation et de giration pour les mélanges couscous/semoule et couscous/lactose.....	54
Figure 19 - Temps de mélange en fonction de la vitesse linéaire de bout de pale maximale et de l'angle d'attaque maximal des pales pour les mélanges couscous/semoule (a) et (b) respectivement et les mélanges couscous/lactose (c) et (d) respectivement.....	54

Figure 20 – Visualisation de l'écoulement de poudres sur une pale droite en rotation autour d'un axe horizontal : semoule (gauche) et lactose (droite) agités par une pale non-inclinée.....	56
Figure 21 - Profils de vitesse (gauche) et d'accélération (droite) au cours d'une période T pour le point A situé au centre d'une face de la cuve, vitesse d'entraînement 22 tr/min.	57
Figure 22 - Régimes d'écoulement en tambour simple et correspondance pour le mélangeur Turbula rempli de poudre à 50% en volume (cadres grisés).	57
Figure 23 - Mélange en Turbula 2l, couscous fin (15%) et lactose (85%) à plusieurs vitesses d'entraînement (22, 32, 46, 67 et 96 tr/min) (a) intensité de ségrégation en fonction du nombre de tours (b) échelle de ségrégation à 2 tours (c) échelle de ségrégation à 500 tours	58
Figure 24 – Poudre après vidange pour deux mélanges de même homogénéité macroscopique mais de microstructures différentes (a) un mélange ordonné (b) un mélange non ordonné.....	60
Figure 25 - Variance des compositions dans les différentes cellules du mélangeur en fonction du nombre de passages consécutifs ou après renversement (a) mélange non ségrégant $p_A=p_B=0.92$ (b) mélange ségrégant $p_A=0.88$ $p_B=0.92$	64
Figure 26 - Résultats d'expériences, effet d'un échelon négatif de vitesse d'agitation de 50 Hz à 20 Hz sur l'homogénéité d'un mélange contenant 12,5% de couscous fin ; débit total 40 kg.h ⁻¹ , échelle d'observation 5,5g	65
Figure 27 - Débit de sortie en fonction de la masse retenue dans le mélangeur, M_1 , lors d'un échelon positif de vitesse d'agitation (de 20 Hz à 150 Hz).....	66
Figure 28 - Fractions moyennes en couscous moyen et en couscous fin mesurées et simulées ; débit d'alimentation 40 kg.h ⁻¹ , mélange à 50% de couscous fin, pas de temps 0,1s ; (gauche) échelon de 50 Hz à 10 Hz ; (droite) échelon de 25 Hz à 45 Hz ; échelle d'observation 17,8g	67
Figure 29 - Fractions moyennes en couscous moyen et en couscous fin mesurées et simulées ; débit d'alimentation 40 kg.h ⁻¹ , mélange à 12,5% de couscous fin, pas de temps 0,1s ; (gauche) échelon de 50 Hz à 20 Hz ; (droite) échelon de 25 Hz à 45 Hz ; échelle d'observation 17,8g	67
Figure 30 - Représentation des six cellules et des probabilités de transition (p_{ij} pour la poudre A, q_{ij} pour la poudre B) des chaînes de Markov conçue pour simuler le mélangeur continu.....	68
Figure 31 - Débit total, teneur moyenne en couscous fin et écart-types mesurés et simulés pour, colonne de gauche, un mélange à 50% de couscous fin, débit total 8,34 g.s ⁻¹ , à t=100s un échelon négatif de vitesse d'agitation (50hz à 30Hz) ; colonne de droite ; t=80s un échelon positif du débit d'alimentation de couscous fin (3,5 à 6 g.s ⁻¹), débit de couscous moyen 3,5 g.s ⁻¹ , vitesse d'agitation 30 Hz	69
Figure 32 - Contrôle en boucle fermée	70
Figure 33 - Comparaison des variables contrôlée en boucle ouverte et avec PID, pour deux plages de valeur de la vitesse d'agitation, cas d'étude 1	71
Figure 34 - Puissance effective totale en fonction de la vitesse des moteurs de giration et de rotation pour (a) du couscous (b) de la semoule (c) du lactose à taux de remplissage équivalent.....	76
Figure 35 - Temps de mélange adimensionnel en fonction du nombre de Froude modifié	77
Figure 36 - Modèles de mélangeur Tubula® pour étude du changement d'échelle.....	78
Figure 37 - Profils de vitesse et d'accélération en fond de cuve pour un point de similitude cinématique (a) et (b) et un point de similitude dynamique (c) et (d) ; le temps est adimensionnalisé par la période du mouvement de la cuve.....	79

Figure 38 - Cinétique de mélange pour le mélange composite en T2F (a) et en T10B (b), les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance statistique à 90% pour la prise de 80 échantillons	80
Figure 39 - Homogénéités de mélanges (CV) obtenues à deux points de similitudes cinématiques et dynamiques dans les mélangeurs T2F, T10B et T50A, à 12 tours pour le mélange composite cohésif en régime de cascade	80
Figure 40 – Interactions propriétés des matières premières, qualité de mélange et propriétés d'usage, procédé	87
Figure 41 - Les écoulements au sein de la poudre en relation avec les propriétés des matières premières et les paramètres procédés.....	89
Figure 42 - Lieux cinématiques de rupture (gauche) et fonction d'écoulement (droite) du lactose.....	90
Figure 43 – Puissance en fonction de la vitesse d'agitation, mélangeur Triaxe, 30 kg de poudre.....	90
Figure 44 - Nombre de puissance en fonction de nombre de Froude pour la semoule et le lactose, pour établissement des corrélations	91
Figure 45 – (a) (b) Paramètres de la corrélation $Np_m = a Fr_m^b$ en fonction de la cohésion mesurée pour une pré-consolidation de 4 kPa, (c) distinction entre poudres à libre écoulement et poudres cohésives..	91
Figure 46 – Maquette de mélangeur convectif batch : moteur et couplemètre, cuve cylindrique avec parois latérales mobiles, dimensions et conditions opératoires nominales	92
Figure 47 – Comparaison des corrélations nombre de Froude-nombre de puissance pour la semoule et le lactose à différents taux de remplissage f	94
Figure 48 – Écoulements de poudre à la surface du lit en fonction du nombre de Froude ; régimes de roulement et de cataracte	95
Figure 49 – Les mécanismes de mélange en relation avec les paramètres procédés.....	99
Figure 50 - Configuration du dispositif d'étude des mécanismes de mélange	100
Figure 51 - Mise en évidence de trois mécanismes de mélange par les expériences de traçage.....	100
Figure 52 - Cinétiques de mélange selon la cellule d'introduction de l'ingrédient minoritaire pour les systèmes semoule/semoule colorée et lactose fin/talc.....	101
Figure 53 – Définition des probabilités de transition entre les six cellules du mélangeur et matrice de transition du modèle	101
Figure 54 - Convection générée par les avalanches de surface	103
Figure 55 - Focus sur les propriétés des poudres en relation avec leurs caractéristiques microscopiques et les conditions environnementales.....	104
Figure 56 - Modèle de représentation pour le calcul du nombre de Bond granulaire entre deux particules A et B éloignées d'une distance z_0 dont les aspérités de surface sont représentées par leur diamètre $d_{asp,A}$ et $d_{asp,B}$ et dont les constantes de Hamaker sont notées A_A et A_B	105
Figure 57 – Images MEB des oxydes utilisés pour établir de modèle $ffc=f(Bo_G)$ et grossissements.....	107
Figure 58 - Fonction d'écoulement (pré-consolidation 9 kPa) en fonction du nombre de Bond granulaire calculé à partir de l'équation (25).....	110
Figure 59 - Schéma d'ensemble de l'installation et configuration de l'échantillonnage	112

Figure 60 – Images MEB et fonction d’écoulement des trois poudres de Marcalina stockées dans des conditions différentes	114
Figure 61 - Propriétés des poudres composites, ou mélanges, en relation avec les propriétés des poudres mères ou ingrédients.....	117
Figure 62 - Images MEB (x400) et positionnement sur le diagramme de Geldart de la semoule, du lactose et du lactose fin.....	118
Figure 63 - Illustration des hypothèses des modèles de calcul d’empilement, modèle simple (modèle1, gauche) ou avec enrobage des particules de semoule par le lactose (modèle 2, droite).....	119
Figure 64 - Porosité tassée calculée à partir des mesures dans les volumétre pour les mélanges semoule-lactose (gauche) et semoule-lactose fin (droite)	119
Figure 65 - Caractérisations des mélanges semoule - lactose (M1) et semoule – lactose fin (M2)	120
Figure 66 : Puissance totale mesurée pour 30 kg de poudre en fonction de la vitesse caractéristique u_{ch} , et de la teneur en lactose (a) ou en lactose fin (b)	120
Figure 67 - Fonction d’écoulement mesurée au FT4 à 9 kPa en fonction du nombre de Bond granulaire pour les poudres seules (points noirs) et pour les mélanges (symboles en couleur).	123
Figure 68 – Fonction d’écoulement des mélanges en fonction de la fraction massique de la poudre la plus cohésive ; les croix correspondent aux mesures, les courbes en pointillés correspondent aux prédictions par le modèle, avec un intervalle de confiance à 90%.....	123
Figure 69 - Interactions caractéristiques des poudres – paramètres procédés – qualité et propriétés d’usage.....	125
Figure 70 - Schéma d’une unité de compression en sortie d’un mélangeur continu (Ramachandran et al., 2011).....	129
Figure 71 – Maquette de mélangeur continu équipée d’un couplemètre, conçue au laboratoire RAPSODEE ; alimentation mobile par des doseurs pondéraux	135

Introduction

1	CONTEXTE PROFESSIONNEL.....	15
2	LE FIL ROUGE.....	15
3	ORGANISATION DU MEMOIRE.....	16

1 Contexte professionnel

Ingénieur et docteur en génie des procédés, je mène une carrière d'enseignant-chercheur dans ce domaine depuis 1998. Fortement impliquée dans l'enseignement en génie des procédés pour la formation étudiante dès mon arrivée à l'école j'ai petit à petit pris part à des projets de développements pédagogiques innovants et finalement conçu la formation en alternance sous statut d'apprenti. J'y ai assuré la fonction de responsable de l'option Systèmes Energétiques et Matériaux pour le Bâtiment et d'Aménagement durables de 2008 à 2018 et je suis aujourd'hui responsable de cette filière de formation. Il y a actuellement 150 élèves alternants à l'école. L'ensemble de ces activités d'enseignement, d'ingénierie pédagogique et responsabilités administratives m'a permis de développer des capacités d'organisation, de réactivité face aux besoins de collaborateurs internes ou externes ainsi que d'encadrement qui sont précieuses dans mes activités de recherche. En outre, cela m'a permis de rester en contact avec les entreprises et finalement de garder un lien avec l'industrie, ce qui est essentiel pour le chercheur en sciences de l'ingénieur et génie des procédés.

J'ai intégré le laboratoire RAPSODEE de l'IMT Mines d'Albi en 1999. Son périmètre de recherche est principalement celui du génie des procédés, dans l'optique de fournir des produits à propriétés maîtrisées, qui peuvent être des vecteurs énergétiques, des matériaux ou des médicaments. Les produits sous forme de, ou à base de poudre y sont prédominants. Ainsi, mes activités contractuelles et de recherche depuis 1999 portent sur les procédés qui mettent en œuvre de la matière sous forme de poudre, ils feront l'objet de ce mémoire.

2 Le fil rouge

Le mélange des poudres a été introduit au laboratoire RAPSODEE par Henri Berthiaux. Nous faisons équipe depuis 2003 et nous travaillons principalement sur cette thématique depuis lors. Lorsqu'il m'a proposé cette collaboration, il venait de développer un modèle stochastique pour un mélangeur continu et en avait identifié des paramètres par des expériences de DTS (Marikh et al., 2006). Cette étude avait montré que les outils du Génie des procédés permettaient de décrire la dynamique de mélange des poudres en mélangeur continu, ce qui laissait envisager la possibilité d'étendre ces études à la conception et à la conduite des procédés de mélange de poudres.

Il m'a alors posé une question : comment introduire dans ces études la notion de micromélange ? Il faisait alors référence à mes travaux de thèse « Précipitation du sulfate de

baryum sous ultrasons : effets sur le micromélange et sur la nucléation » au cours de laquelle j'avais étudié, entre autres, l'influence des ultrasons sur le micromélange en solution aqueuse (Gatamel et al., 1998). La physique des poudres différant considérablement de la physique des fluides, l'idée était plus de prendre en considération les propriétés des milieux pulvérulents à faible échelle que d'introduire une équivalence de diffusion moléculaire, c'est du moins comme cela que je l'ai compris. J'ai vite réalisé que ce défi allait me prendre plus de temps que je ne l'aurais imaginé en l'acceptant ! ... dans une certaine mesure, c'est aujourd'hui cette question qui sous-tend la rédaction de ce rapport.

3 Organisation du mémoire

Les travaux de recherche que je présente dans ce mémoire sont ceux que j'ai menés au laboratoire RAPSODEE depuis septembre 1999, en collaboration avec Henri depuis 2003. Nous avons développé une stratégie de recherche en nous appuyant sur les travaux des doctorants que nous avons encadrés ensemble, une activité contractuelle mais régulière grâce à laquelle nous sommes restés au fait des besoins de l'industrie et des stages (DUT, licence pro, travaux de fin d'études d'élèves ingénieurs) qui nous ont permis soit de concevoir ou mettre en service des dispositifs expérimentaux, soit d'en approfondir l'utilisation et l'exploitation des résultats entre deux projets de thèses. Pour chaque thématique abordée, je présenterai les problématiques, nos approches, nos réponses et finalement, mon analyse et mon projet.

Dans ce mémoire, rédigé en vue de l'obtention de mon Habilitation à Diriger les recherches, j'ai souhaité mettre en avant trois points essentiels. Le premier est une cohérence entre enseignement, activités contractuelles et activités de recherche. Le deuxième est une approche intégrée des problématiques industrielles qui permettent de travailler sur des verrous scientifiques. Le troisième est une approche multi-échelle des procédés mettant en œuvre des poudres. Cette stratégie s'est construite au cours de mon parcours professionnel, elle prend aujourd'hui sens pour définir des orientations de mon travail pour les années à venir.

Il est articulé autour de trois parties :

- un état de mes activités professionnelles,
- une synthèse des travaux de recherche auxquels j'ai participé ou que j'ai encadrés, cette partie met en évidence les approches scientifiques mises en place et quelques développements originaux, elle s'intitule stratégie de recherche,
- mon projet.

Chapitre I État des activités professionnelles

1	TITRES ET DIPLOMES, PARCOURS PROFESSIONNEL.....	19
1.1	TITRES ET DIPLOMES.....	19
1.2	PARCOURS PROFESSIONNEL	19
1.3	RESPONSABILITES.....	19
2	ACTIVITES PEDAGOGIQUES	20
2.1	ENSEIGNEMENT.....	20
2.2	INGENIERIE PEDAGOGIQUE	20
2.3	ENCADREMENT.....	21
3	ACTIVITE CONTRACTUELLE HORS CONTRATS D'ACCOMPAGNEMENT DE THESES	23
4	ACTIVITES DE RECHERCHE	23
4.1	ENCADREMENT.....	23
4.2	PRODUCTION DE RECHERCHE.....	28
4.3	COMITES DE THESE	28
4.4	PARTICIPATION A DES JURYS DE THESES HORS RAPSODEE.....	28
5	SYNTHESE	29

1 Titres et diplômes, parcours professionnel

1.1 Titres et diplômes

- 1994 Diplôme d'ingénieur de l'école Nationale Supérieure d'Ingénieurs de Génie Chimique de Toulouse
- 1997 Titre de docteur de l'Institut National Polytechnique de Toulouse
Précipitation du sulfate de baryum sous ultrasons : effets sur le micromélange et sur la nucléation

1.2 Parcours professionnel

- Janvier – août 1998 *Chargée de recherche*
Elf Atochem - Université de Lyon 1
- Septembre 1998 – août 1999 *Maître de conférences*
Université de Rouen – IUT Génie Chimique, génie des procédés
- Depuis septembre 1999 *Maître-assistante*
IMT Mines Albi

Enseignement : à l'IMT Mines Albi principalement mais aussi ponctuellement à CPE Lyon et Polytech Marseille.

Activités de recherche : Sciences et technologie des poudres, génie des procédés - Collaborations internationales (une thèse en cotutelle avec l'École Nationale d'Ingénieurs de Tunis, une thèse en cotutelle et publications avec l'Université d'Ivanovo en Russie) – Activité contractuelle régulière – Participation au projet ANR Mascotte (2008-2011).

Divers : Accompagnement de création d'entreprise, incubateur Mines Albi (Triaprocess 2007-2010– Margaux Bardou depuis 2016) – Administratrice ENVIROBAT Occitanie depuis 2017 – Élu(e) au conseil de perfectionnement MIDISUP mars 2020 – participation aux jurys de recrutement de maître-assistant IMT Mines Albi.

1.3 Responsabilités

- 2008-2018 Responsable de l'option Systèmes ENergétiques et Matériaux pour le Bâtiment et l'Aménagement durables – formation en alternance
Licence, master – Cycle de formation initiale et continue – Formation par alternance - IMT Mines d'Albi-Carmaux
- 1^{er} juillet 2020 Responsable de la filière formation en alternance IMT Mines Albi
- Organiser et superviser le recrutement des élèves du meilleur niveau possible pour nos formations, y compris dans le cadre de leur recherche d'entreprise d'accueil
 - Organiser et superviser la conception d'une offre de formation répondant aux besoins du monde économique
 - Organiser et superviser le déroulement de la formation, en particulier la coordination de la mise en œuvre des unités pédagogiques, jusqu'à la diplomation

2 Activités pédagogiques

2.1 Enseignement

Depuis 1999	Enseignements en énergétique et génie des procédés (environ 100 heures/an) en tronc commun et appliqués au secteur pharmaceutique, à l'énergie et au bâtiment Licence, master – Filières ingénieur sous statut d'étudiant ou en alternance, formation initiale et formation continue – IMT Mines Albi
2003-2009	Enseignement sciences et technologie des poudres (8 heures/an) Master, Polytech' Marseille
2005-2009	Enseignements ponctuels sciences et technologie des poudres Formation continue – CPE Lyon

2.2 Ingénierie pédagogique

a. Conception d'un cours en ligne en Sciences et Technologies des Poudres

<https://nte.mines-albi.fr/STP/co/STP.html>

Financement UNIT 2005 – protégé par une licence Creative Commons

Version 2.0.9 publiée le 9 octobre 2018

Chef de projet	IMT Mines Albi	C. Gatumel
Auteurs	IMT Mines Albi	C. Gatumel, JA Dodds, A. Chamayou, H. Berthiaux, R. Calvet, F. Espitalier, E. Rodier, A. de Ryck
	UTC	P. Guigon, K. Saleh
	IMT Mines Nantes	A. Delebarre
	Université de Toulouse Jean-Jaurès	JJ Maurice (laboratoire CREFI-T, Sciences de l'éducation)
Réalisation	F. Baillon, E. Loubignac	
Graphisme	V. Buous, E. Loubignac, E. Le Faucheur	

Plan du cours :

- Caractérisation
 - Analyse granulométrique : caractérisation de la taille et de la forme des particules
 - Adsorption
 - Caractéristiques et caractérisation des lits de particules et des poudres
 - Propriétés mécaniques
 - L'échantillonnage des solides divisés
- Opérations unitaires
 - La fluidisation des solides par un gaz
 - Stockage et Manutention des poudres

Valorisation

Colloque "E-Prospectives et territoires de la connaissance" Université JF Champollion, 5-7 oct. 2006

11^{ème} Congrès de de la SFGP, Saint-Etienne, Octobre 2007, Récents Progrès en Génie des Procédés, vol.96, CD-ROM édition.

b. Hybridation d'un cours de réseau de fluides sur la plateforme Campus (Moodle)

Conception et scénarisation : N. Veuillez, C. Gatumel

Valorisation : N. Veuillez, C. Gatumel , Fluid networks: from science-based training to a learning-centered pathway, a collaborative development involving a teacher, a pedagogical engineer and a learning management system, Core Programming Area at the 2016 AIChE Annual Meeting

c. Co-construction de savoirs : scénarisation d'activités pédagogiques variées pour un enseignement de caractérisation des solides divisés

Conception et scénarisation : C. Gatumel

Valorisation : V. Pomès, C. Gatumel , Séminaire IMT- Agreenium, 21 mars 2019

d. Conception de la formation d'ingénieurs sous statut d'apprenti de l'École Nationale Supérieure des Mines d'Albi-Carmaux

2006-2008 Ingénierie pédagogique

Première habilitation CTI 4 mars 2008

La formation par alternance d'IMT Mines Albi concerne les élèves sous statut d'apprenti, sous contrat de professionnalisation et en formation continue diplômante. Cette filière est un des leviers de l'école pour remplir ses missions de formation de cadres pour l'industrie. Elle contribue à l'ouverture sociale des formations d'ingénieur d'IMT Mines Albi.

La formation par alternance permet à des élèves issus de BTS, DUT, L2, L3 ou à des salariés en poste issus des mêmes filières et ayant 3 ans minimum d'expérience professionnelle, d'atteindre les compétences attendues correspondant au diplôme généraliste d'IMT Mines d'Albi.

Aujourd'hui environ 150 alternants sont présents à l'école.

2.3 Encadrement

a. 39 Tutorats pédagogiques Masters, PFE de l'IMT Mines Albi (6 mois)

VIAMONTE Xavier - MERIAL SAS – 2003, BELLOEUVRE Olivier - Peyraud Architecture - 2007, COULON Thomas - ADEME Midi-Pyrénées – 2007, BODIN Anne-Charlotte - SECA Ingénierie – 2008, DUFAU Laura - EDF R&D - 2008, JOURDAN Arnaud - ELYO SUEZ – 2008, CHAPUIS Arnaud - CREM, Suisse – 2009, ACHARD Amandine - CAeP SARL - 2010, DARMAYAN Loïc - CREM, Suisse – 2010, UBAUD Cyril - Services

Industriels de Genève, Suisse – 2011, LESUR Benedicte - Channel - 2011, MAUBAYOU Laurie-Anne - FAMAR – 2011, BASTONERO Audrey - Qualiconsult - 2011, GRIMALDI Thibault - Qualiconsult – 2011, BARQUE Mariam - HES SO Valais , Suisse – 2011, DELMAS Thomas - Dauchez Payet – 2011, PERADON Romain - Math INGENIERIE - 2012, PION Marc - DALKIA – 2012, WIENCIERZ Adam - Santerne Énergies Languedoc - 2012, DUPRE Marion - Dauchez Payet – 2013, LEGOIX Léonard - AREVA – 2013, TRIGARI Flore - Séquanais d'Ingénierie - 2013, SHANTHIRABALAN Santhiah - POUGET Consultants – 2013, VANHUYSSE Sylvain - CREM, Suisse – 2013, LABROUSSE Kim - Terre Ciel Énergies - 2014, RATSIMBA Andriatahiana – CREM, Suisse – 2015, POINCOT Pierre - ACCEO - 2016, RAGUENES Daisy - ACCEO - 2016, CREVANT Julien - CREM, Suisse – 2016, DOVERGNE Vincent - Société LE NICKEL, Nouvelle-Calédonie – 2017, VERSI Roman – CREM Suisse – 2018, BUFFAULT Joachim – S'pace Environnement – 2018, PARASCHIV Adrian – SUEZ – 2018, BARCELO Carla – Tetra Pak – 2018, LAUNEAU Céline – BMS- 2018, TAUVEL Albane – EGIS - 2019, THIBAUT Pascal – Etchart Énergies – 2019, ROUSSEAU Louise – AQUITEN (NEPSN) – 2020, RUGGIERI Baptiste – DEEPI - 2020

b. 19 Tutorats alternants de l'IMT Mines Albi (3 ans)

DELHOMME Antoine - Habitat 08 - 2008 à 2011, EGLISE Mathieu – CARDONNEL Ingénierie - 2008 à 2011, BIRAUD Patrick – ETH Architecture – 2009 à 2012, SOYER Mathieu – GIRUS Ingénierie - 2010 à 2013, RIVOLLIER Cyril – ALDES - 2010 à 2013, AROTARENA Cyril – SANOFI – 2011 à 2014, MIGNE Yvann – SANOFI – 2011 à 2014, POPOFF Boris – MERIAL – 2012 à 2015, DANIEL Coraline – Servier Industrie - 2013 à 2015, BOGUSIEWICZ Victor – Bouygues construction – 2013 à 2016, KICHENASSAMY Arnaud – LAFARGE – 2013 à 2016, ANTOINE Quentin – EIS Clemessy – 2014 à 2017, DUPONT Dimitri – ITEF Conception - 2015 à 2018, DENHEZ Simon – Agtherm Méditerranée – 2016 à 2018, PERICO Sylvain – Profil Systèmes – 2016 à 2019, MORAN Aude – DAHER – 2017 à 2020, AUDIARD Alex DAHER – 2017 à 2020 – BOUYSSOU Thomas ALABISO Ingénierie – 2018 à 2021, LABAT Baptiste SPIE City Networks – 2019 à 2022

3 Activité contractuelle hors contrats d'accompagnement de thèses

Année	Type	Entreprise	Mots clé
2001	Prestation	ALPOCO	Matériaux, Caractérisation, poudres d'alumines
2001	Prestation	VALITEC	Dispositif d'ionisation, électrostatique, PVDF
2003	Prestation	CALOR	Manufacture, électrostatique
2003	Prestation	FRAMATOME FBFC	Nucléaire, Combustible, tribo-électrification
2003	Prestation	UPSA	Pharmacie, tribo-électrification
2004	Prestation	TEKNIMED	Bio-médical, mélange, détection d'agglomérats
2004	Étude	UPSA	Pharmacie, mélange de poudres en continu
2007	Prestation	BMS	Pharmacie, électrostatique
2009	Prestation	Arkema CECA	Produits chimiques, coulabilité de poudres
2012	Prestation	TOUPRET	Bâtiment, enduits, caractérisation
2013	Expertise	AREVA MELOX	Nucléaire, combustible, mélange
2015	Prestation	SCHLUMBERGER	Exploitation pétrolière, ciments, ségrégation
2015	Étude	AIGROUP	Poudre extinctrice, formulation, mélange
2016	Prestation	FAMAR	Pharmacie, tribo-électrification
2016	Étude	CEA	Nucléaire, combustible, rhéologie
2017	Étude	CEA	Nucléaire, combustible, rhéologie, mélanges
2018	Étude	UPSA	Pharmacie, compressibilité, mélanges
2020	Étude	NUTRICIA	Alimentaire, mouillabilité, mélanges

4 Activités de recherche

4.1 Encadrement

c. 26 Stagiaires accueillis au laboratoire RAPSODEE

LALAAB Benyounes – DEA – 2001, LEFEBVRE Joseph – DUT – 2001, EL YACOUBI Marouan – DUT – 2003, LOSADA MARTIN Marta – PFE ETSEIB – 2003, LALLEE Mélanie – DUT – 2003, FOLIGUET Jean-Baptiste – DUT – 2004, JEMENEZ Mercedes - PFE ETSEIB- 2004, PHILIPPE Carole – Licence professionnelle – 2005, HENRARD Jennifer – Licence professionnelle – 2005, LAMBLIN Emilie – DUT – 2007, GROSDEMANGE Cédric - Licence professionnelle – 2008, GARCIA Adrien – DUT – 2010, BELKHEDIM Mohamed – DUT – 2011, GOMEZ Nolan - DUT – 2012, ROUCOU Florence – DUT – 2012, NTOTHOME MBA Léonce – DUT – 2013, BRU Manon – DUT – 2015, LI Zhe – M1 INSA – 2015, GRILLET Luana – DUT – 2016, LARSSON Timo – PFE INSA – 2016, HUANG Bichun – DUT – 2017, PHAN Kévin - Licence professionnelle – 2017, GIRAUD Martin – PFE UTC – 2017, BARCELO Carla – 1^{ere} année master DNM – 2018, CASTRO Alonso – DUT – 2018, KUAH Lydia – DUT - 2019

d. 11 Doctorants

REVEL Jérôme – soutenue le 6 février 2003 - Étude expérimentale de phénomènes électrostatiques lors de la fluidisation de granulés et de poudres de polyéthylène : charge et neutralisation par injection supersonique d'ions.

École doctorale et spécialité	École des Mines de Paris, spécialité génie des procédés
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	Valitec – convention CIFRE
Lieu d'accueil du doctorant	100% IMT Mines Albi
Encadrement	John Dodds, directeur Cendrine Gatumel, encadrante Joseph Taillet, Valitec, co-encadrant
Rapporteurs	Pierre Guigon Gérard Touchard
Mots clé	Champ électrostatique, charge électrique, électrostatique, éthylène polymère, fluidisation, ionisation
Pages	242
Langue	Français
Situation actuelle	Ingénieur développement - Recipharm

PONOMAREV Denis – soutenue le 9 novembre 2006 - Modèles Markoviens non-linéaires pour le mélange des poudres en mélangeur statique.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unités de recherche – co-tutelle	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi Ivanovo State Power University – Russia
Financement	Bourse Nationale Russe
Lieu d'accueil du doctorant	70% Université d'Ivanovo -30% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Vadim Mizonov, co-directeur Cendrine Gatumel, encadrante
Rapporteurs	Gérard Thomas Pierre Guigon
Mots clé	Modélisation, chaînes de Markov, mélangeur statique, solides divisés, poudres
Pages	170
Langue	Anglais

DEMEYRE Jean-François – soutenue le 22 juin 2007 - Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe®.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	Hogon SA - convention CIFRE
Lieu d'accueil du doctorant	100% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Cendrine Gatumel, encadrante Michel Grandjean, société Hogon, co-encadrant
Rapporteurs	Jamal Chaouki Pierre Guigon
Mots clé	Agitation, mélange, homogénéité, analyse d'image, Triaxe®, poudre
Pages	148
Langue	Français
Situation actuelle	Responsable maintenance et travaux neufs - Bel

AMMARCHA Chawki – soutenue le 9 décembre 2010 - Mélange des poudres en continu : modèles dynamiques et caractérisation en ligne.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	IMT Mines Albi
Lieu d'accueil du doctorant	100% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Michel Cabassud, co-directeur Jean-Louis Dirion, encadrant Cendrine Gatamel, co-encadrante
Rapporteurs	Jamal Chaouki Pierre Guigon
Mots clé	Caractérisation en ligne, chaînes de Markov, modélisation, mélangeur continu, poudres, régime transitoire
Pages	231
Langue	Français
Situation actuelle	Ingénieur conduite de procédés – Fives Stein

MAYER-LAIGLE Claire - soutenue le 2 juillet 2012 - Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes particuliers en mélangeur Turbula® : application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	Projet ANR MaSCoTe (Matériau Solide Conducteur Thermodurcissable)
Lieu d'accueil du doctorant	100% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Cendrine Gatamel, encadrante
Rapporteurs	Guillaume Delaplace Gérard Thomas
Mots clé	Agitation, mélange, homogénéité, analyse d'image, Triaxe®, poudre
Pages	235
Langue	Français
Situation actuelle	Ingénieur de recherche - INRA

TRABELSI Brahim - Cotutelle École Nationale d'Ingénieurs de Tunis, Institut National Polytechnique de Toulouse - soutenue le 12 mars 2013 - Simulation numérique de l'écoulement et mélange granulaires par des éléments discrets ellipsoïdaux.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unités de recherche – co-tutelle	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi LAMSIN-École Nationale d'Ingénieurs de Tunis, Tunisie
Financement	Bourse Nationale Tunisienne
Lieu d'accueil du doctorant	85% LAMSIN -15% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Maher Moakher, ENIT, co-directeur Cendrine Gatamel, encadrante
Rapporteurs	Mohamed Naceur Ammar Thierry Ruiz
Mots clé	Chaînes de Markov, contact ellipsoïdes, condition algébrique de contact, couplage DEM chaîne de Markov, milieux granulaires, modélisation, mélange des poudres, méthode des éléments discrets, particules ellipsoïdale, simulation numérique
Pages	122
Langue	Français

ZHAO Xiaojuan - soutenue le 26 novembre 2013 - Contribution à l'implémentation d'un système de contrôle-commande pour mélange de poudres en continu.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	IMT Mines Albi
Lieu d'accueil du doctorant	100% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Michel Cabassud, co-directeur Jean-Louis Dirion, encadrant Cendrine Gatamel, co-encadrante
Rapporteurs	Francis Courtois Khashayar Saleh
Mots clé	Commande en boucle fermée, contrôleur PID, chaînes de Markov, contrôle commande, implémentation, mélange des poudres en continu
Pages	188
Langue	Anglais
Situation actuelle	Lecturer – Department of life science and chemical engineering, Huaiyin Institute of technology

LEGOIX Léonard – soutenue le 25 novembre 2016 - Étude expérimentale et modélisation de mélangeurs convectifs : agitation de poudres de différentes coulabilités.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	IMT Mines Albi
Lieu d'accueil du doctorant	100% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Cendrine Gatumel, co-directrice Mathieu Milhé, co-encadrant
Rapporteurs	Guillaume Delaplace Khashayar Saleh
Mots clé	Mélangeur convectif, agitation, poudres cohésives, rhéologie, chaînes de Markov
Pages	246
Langue	Français avec publications en Anglais
Situation actuelle	Responsable technique développement industriel – CEVA santé animale

KUSUMANINDYAH Nur Andriani Pramudita – soutenue le 13 décembre 2016 - Study of the physicochemical properties of an extinguishing powder for sodium fires: aging, fabrication, and mechanism of extinction.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	CEA
Lieu d'accueil du doctorant	67% CEA Cadarache, DEN/CAD/DTN/SMTA/LIPC - 33% IMT Mines Albi
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Cendrine Gatumel, co-directrice Laurent Brissonneau, CEA, co-encadrant
Rapporteurs	Khashayar Saleh Jean-Louis Consalvi
Mots clé	Feu sodium, extinction, vieillissement, poudre, physico-chimique
Pages	155
Langue	Anglais
Situation actuelle	Ingénieur procédés travaux neufs – LAITA PGC

GIRAUD Martin – en cours depuis le 22 janvier 2018 - Analyse du comportement rhéologique des poudres à partir des propriétés des grains, application à l'étude d'un procédé de broyage/mélange pour la préparation du combustible nucléaire MOX

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	CEA
Lieu d'accueil du doctorant	67% IMT Mines Albi - 33% CEA, DMRC, Marcoule
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Guillaume Bernard-Granger, CEA, co-directeur Cendrine Gatumel, encadrante Stéphane Vaudez, CEA, co-encadrant

BOUSSOFFARA Hayfa – en cours depuis janvier 2020 - Homogénéité des mélanges et rhéologie en mélangeur à double arbre à pales.

École doctorale et spécialité	MEGEP : génie des procédés et de l'environnement
Unité de recherche	RAPSODEE – CNRS UMR 5302 Mines Albi
Financement	TETRA PAK Powder Handling - convention CIFRE
Lieu d'accueil du doctorant	65% IMT Mines Albi - 35% TETRA PAK
Encadrement	Henri Berthiaux, directeur Cendrine Gatumel, co-directrice François-Xavier Barbey, TETRA PAK co-encadrant Aurélien Mourain, TETRA PAK co-encadrante

4.2 Production de recherche

34 publications dans des revues à diffusion internationale

1 article soumis dans une revue à diffusion internationale

3 articles en préparation

5 publications dans des revues à diffusion nationales

1 chapitre d'ouvrage collectif

10 publications dans des actes de congrès avec comité de lecture sur texte complet

48 conférences internationales

La liste exhaustive de ces travaux figure en page 148.

4.3 Comités de thèse

Daniel WICOCHEA	2015-2018	GAIA Sup Agro Montpellier
Anh Tuan LE	2018	MEGEP IMT Mines Albi-ICA Albi
Linh Phuong LUONG	2018	MEGEP IMT Mines Albi-ICA Albi
Achille AHERFI	2020	MEGEP ISAE-énergétique et dynamique des fluides

4.4 Participation à des jurys de thèses hors RAPSODEE

Bettina BELLOCQ (2017) Docteur de Montpellier Supagro en Sciences des aliments, bioprocédés – Approche multi-échelles pour la maîtrise technologique de la transformation de la semoule de blé dur en couscous

École doctorale	GAIA, université de Montpellier
Unité de recherche	UMR IATE
Rapporteurs	Alain Le Bail, Christelle Turchiuli
Examineurs	Claire Gaïani, Cendrine Gatumel, Bernard Cuq (directeur de thèse), Thierry Ruiz (co-directeur de thèse), Agnès Duri (encadrante invitée)

Mathieu PERSON (2018) Docteur d'Agrocampus Ouest, Spécialité Sciences de l'aliment - Étude multi-échelle des relations matière première – procédé – produit lors de l'agglomération de poudres de lait

École doctorale	EGAAL, université de Montpellier
Unité de recherche	UMR 1253 INRA-AGROCAMPUS OUEST Science et Technologie du Lait et de l'œuf (STLO)
Rapporteurs	Claire GAIANI, Jack LEGRAND
Examineurs	Cendrine Gatumel, Pierre SCHUCK, Romain JEANTET (directeur de thèse), Bernard CUQ (co-directeur de thèse), Didier MISERERE (Directeur Qualité Régilait, invité)

Daniel WICOCHÉA (2018) Docteur de Montpellier Sup Agro en génie des procédés - Conception de granules insecticides à base de biomatériaux et d'huiles essentielles pour la protection des grains de blé

École doctorale	GAIA, université de Montpellier
Unité de recherche	UMR IATE
Rapporteurs	Pascale DE CARO, Denis PONCELET
Examineurs	Cendrine GATUMEL, Marie-Hélène MOREL, Pascale CHALIER (directrice de thèse), Thierry RUIZ (co-directeur de thèse)

5 Synthèse

La Figure 1 représente l'évolution de ma production scientifique dans le contexte de mes activités professionnelles et des faits marquant ma vie personnelle. La formation en alternance a été accréditée par le CTI le 4 mars 2008, après une année de travail de conception. Les premiers apprentis ont été accueillis à l'école en septembre 2008. Si je n'avais pas fait le choix de prendre cette direction, c'est sûrement à ce moment-là qu'aurait dû s'intensifier mon activité de recherche et la production associée. J'ai néanmoins pu conserver une activité « en ligne de fond » grâce à mon association avec Henri, lui aussi impliqué dans la formation en alternance et nous avons finalement structuré notre activité de recherche commune autour de l'encadrement de stagiaires et doctorants et de notre activité contractuelle. Les stages encadrés au laboratoire, dont beaucoup de stages de DUT, ont permis d'assurer une continuité d'une thèse à une autre : concevoir, mettre en service ou utiliser des dispositifs expérimentaux, ne pas perdre les connaissances acquises.

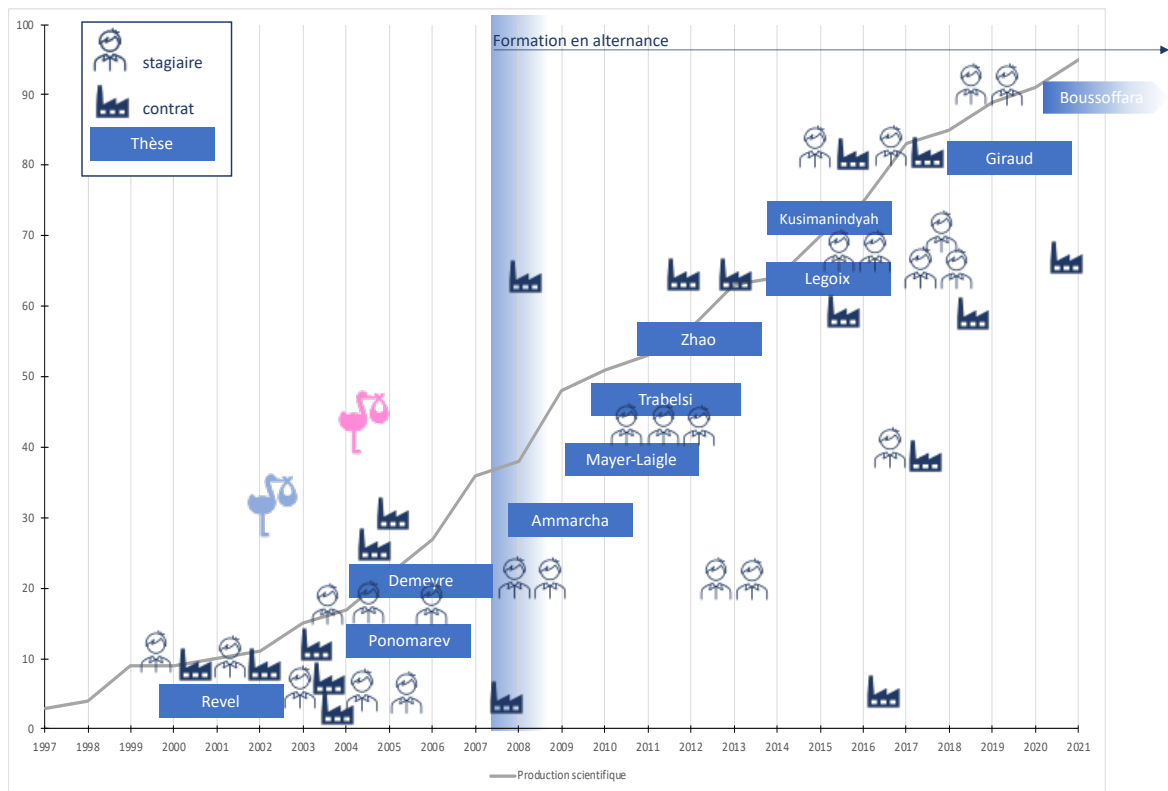


Figure 1 – Production scientifique et synthèse des activités

Au cours de ces vingt années, au travers d'encadrement de stages et de thèses et d'études contractuelles, j'ai pu travailler sur une grande variété de poudres (des poudres pharmaceutiques, alimentaires, des matériaux composites, des matériaux de construction, des poudres extinctrices, des poudres combustibles) et de procédés (fluidisation, mélange, broyage, conditionnement). Dans la partie suivante, intitulée « Stratégie de recherche », j'articulerai ma contribution au génie des procédés des solides divisés autour de deux thèmes :

- Les études systémiques du mélange des poudres : la détermination de l'homogénéité des mélanges, l'étude de la dynamique de mélange, la conduite des opérations de mélange, le changement d'échelle des dispositifs.
- Des études multi-échelles permettant d'aborder plus largement les procédés mettant en œuvre des solides divisés : étude des écoulements, mécanismes de mélange et de ségrégation, influence de l'environnement (stockage et procédé) sur les propriétés d'une poudre.

Chapitre II Stratégie de recherche

1	ENTREE EN MATIERE	33
1.1	LA MATIERE EN POUDRE	33
1.2	LA POUDRE DANS TOUS SES ETATS	34
1.3	DE PRES OU DE LOIN ? TOUT EST QUESTION D'ECHELLE.	35
2	ÉTUDES SYSTEMIQUES DE MELANGE DES POUDRES	39
2.1	DEVELOPPEMENT DE METHODOLOGIES EXPERIMENTALES POUR ETUDIER L'HOMOGENEITE ET LA DYNAMIQUE DE MELANGE	40
2.2	MISE EN ŒUVRE DES CHAINES DE MARKOV POUR LA CONDUITE DES MELANGEURS.....	61
2.3	EXPLORATION DE L'ANALYSE DIMENSIONNELLE POUR L'ETUDE DE L'AGITATION ET LE CHANGEMENT D'ECHELLE 74	
2.4	CONCLUSION	86
3	AGITATION, COMPORTEMENT COLLECTIF ET CARACTERISTIQUES DE PARTICULES : ETUDES MULTI-ECHELLES	87
3.1	PHENOMENOLOGIE D'AGITATION, AU-DELA DES ECHELLES ET DE LA GEOMETRIE.....	88
3.2	EXPERIENCES DE TRAÇAGE ET MODELE DE MARKOV POUR IDENTIFIER DES MECANISMES DE MELANGE A L'ECHELLE MESOSCOPIQUE	99
3.3	CARACTERISTIQUES DES PARTICULES, FORCES MISES EN JEU ET PARAMETRES ENVIRONNEMENTAUX	104
3.4	PROPRIETES DES POUDRES – PROPRIETES DES MELANGES ?	116
3.5	CONCLUSION	124
4	SYNTHESE	126

1 Entrée en matière

1.1 La matière en poudre

Bien qu'étant largement répandue dans l'industrie de transformation de la matière, dans les filières de transformation de produits chimiques dérivés du pétrole ou des filières de transformations de produits naturels (minéraux ou issus de la biomasse), pour la fabrication de matériaux, de combustibles, de médicaments, de cosmétiques, de détergents ou d'aliments, la poudre est une forme de matière pour laquelle les connaissances scientifiques sont encore limitées. En réalité, les opérations de stockage de transport ou d'homogénéisation ne sont pas considérées comme des opérations unitaires et n'ont pendant longtemps pas été l'objet d'une attention particulière. Un article récent du journal *The Chemical Engineer* (décembre 2019/janvier 2020, numéro 9442/3) présente sur une frise chronologique les fondateurs de la mécanique des fluides, on peut y superposer les pères de la mécanique des solides divisés, mais ils sont finalement peu nombreux (Figure 2).

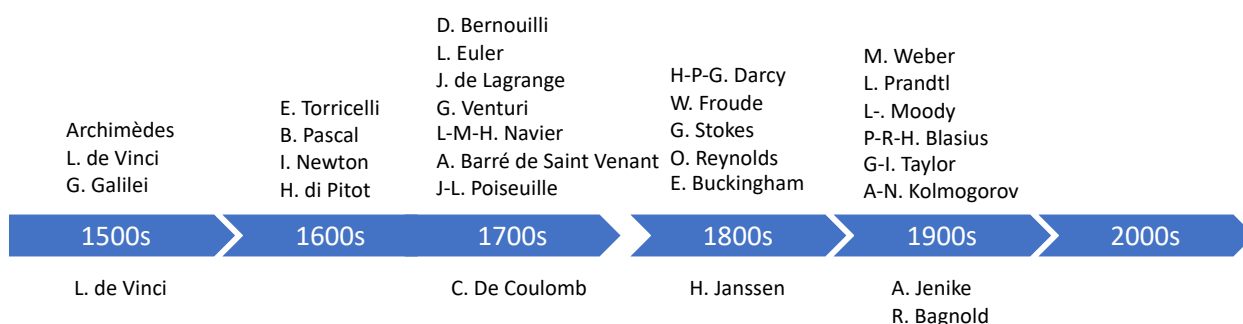


Figure 2 - Scientifiques ayant marqué la science des écoulements des fluides (haut) et des solides (bas), listes non exhaustives

Qu'on la nomme poudre, solide-divisé, milieu granulaire ou milieu pulvérulent elle n'appartient pas aux classifications usuelles de la matière puisqu'elle est ni un solide, ni un liquide, ni un gaz. Milieu composite par excellence, elle est composée de ces trois formes de la matière et de leurs interfaces (Figure 3), elle est compressible et elle peut se comporter comme l'une ou l'autre, ou aucune, en fonction des conditions environnementales et des sollicitations auxquelles elle est soumise. Pour des raisons de clarté, le terme poudre sera employé de façon générique dans ce mémoire et pourra concerner des particules de taille nanométrique, micronique ou millimétrique. Il s'agira de poudres sèches, sans liquide ajouté, bien que présentant potentiellement du liquide sous forme de condensation au niveau des contacts entre particules ou de condensation capillaire.

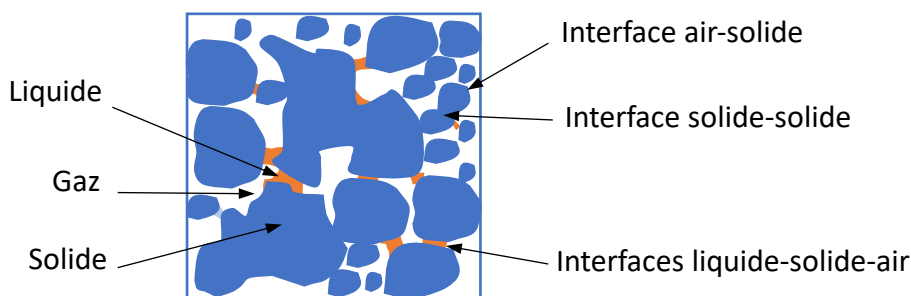


Figure 3 - poudre dans l'air ambiant, en présence de condensation aux contacts

Il est possible de définir quatre échelles spatiales pour décrire la poudre (Figure 4) :

- l'échelle macroscopique : échelle du procédé, du pilote ou du dispositif expérimental (maquette)
- l'échelle mésoscopique, c'est l'échelle d'un ensemble de particules dont on étudie le comportement collectif, c'est par exemple souvent l'échelle de la caractérisation des propriétés d'écoulement
- l'échelle du grain qui est l'échelle de taille des particules qui composent la poudre
- l'échelle microscopique qui concerne les contacts entre les grains, les phénomènes interfaciaux ou la microstructure des grains

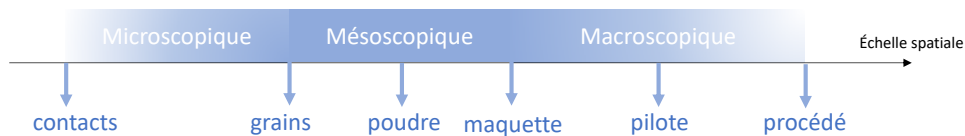


Figure 4 - Les échelles spatiales

Des temps caractéristiques peuvent être associés à ces échelles de tailles. A l'échelle macroscopique, ce sont les temps imposés par le procédé comme un temps de passage, un temps de circulation ou un temps d'homogénéisation. A l'échelle mésoscopique, c'est par exemple le temps de déformation d'un lit de particules ou leur temps de confinement (GDR MiDi, 2004). Enfin, à l'échelle microscopique, c'est le temps des dissipations internes d'énergie au sein des particules.

1.2 La poudre dans tous ses états

Les procédés et opérations unitaires concernés par la mise en œuvre des poudres peuvent être classés du point de vue de leur finalité : obtention des poudres par cristallisation, précipitation ou broyage, mise en forme par granulation sèche ou humide, extrusion ou encore broyage ; transformation finale par enrobage, compaction, injection-moulage, frittage, impression 3D ou conditionnement en contenants divers, sachets ou gélules. Sur un site de production, s'ajoutent les différents stockages et transports. L'efficacité de ces procédés est liée à la qualité des matières ou des produits obtenus mais aussi à leur capacité de production, à la maîtrise de leur consommation de matières premières et de ressources énergétiques et donc de ressources naturelles.

Les conditions de mise en œuvre des poudres dans ces différentes opérations peuvent varier considérablement. Dans un article de 2018, Gotoh et collaborateurs (Gotoh, 2018) ont repris une classification qui met en évidence, pour un jeu assez vaste de procédés métallurgiques, des conditions de mise en œuvre dans les installations, un état de consolidation pour les poudres qui sont à l'état statiques et un type d'écoulement pour les poudres en mouvement (libre ou forcé), que ce soit en voie sèche ou en voie humide (Figure 5).

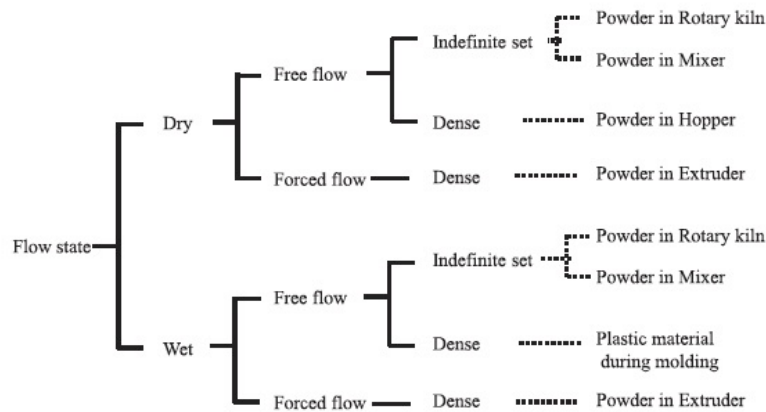


Figure 5 – Écoulements et états de consolidation de la poudre dans les dispositifs industriels (Gotoh, 2018)

On y voit clairement que les poudres mises en œuvre dans des appareils tournants ou des mélangeurs ne sont pas soumises à des sollicitations bien définies, elles sont généralement en écoulement dit libre, par opposition à écoulement forcé, on se doute ainsi que le lien poudre-procédé-produit, essentiel à la maîtrise de l'efficacité des procédés, sera plus difficile à établir dans ces conditions.

L'écoulement d'une poudre résulte de l'action de sollicitations extérieures imposées par les dispositifs, de la gravité ainsi que des interactions entre les grains, ou entre les grains et leur environnement, qui s'y opposent. Il est lié à son état de consolidation. La caractérisation des propriétés des grains est donc souvent insuffisante pour prévoir l'écoulement de la poudre. Pour autant, la prédiction des écoulements est une question cruciale dans l'industrie, en particulier pour les poudres cohésives (Ghadiri et al., 2020). Plus généralement, les transports, les blocages lors de remplissages et de vidanges, la forte dépendance des performances procédés vis à vis des caractéristiques des matières premières, sont des problématiques liées à l'écoulement des poudres. Ainsi se pose la question de l'état dans lequel se trouve la poudre dans le process, qui est encore aujourd'hui un frein au développement du génie des procédés particuliers [HDR Thierry Ruiz]. Dans quelle mesure la physique des solides ou la physique des fluides permettent-elles de décrire les écoulements de poudres ? Comment dériver les outils classiques du génie des procédés sans équation d'état, équations de Navier-Stokes ou définition de la viscosité ?

1.3 De près ou de loin ? Tout est question d'échelle.

Les problématiques industrielles liées aux procédés d'aujourd'hui et de demain, peuvent être vues comme relevant de l'échelle macroscopique, c'est le cas de la maîtrise de la qualité des produits, de la consommation énergétique et de matière du procédé, mais intègrent des verrous liés à des phénomènes mésoscopiques comme les écoulements, eux-mêmes intimement dépendants des caractéristiques des grains et des interfaces grains-grains, grains-environnement. Les caractéristiques des particules qui influent sur leur comportement en écoulement sont microscopiques ou à l'échelle du grain, c'est le cas de la forme, de la taille, de la porosité interne, de l'énergie de surface, de la rugosité de surface, des mécanismes d'adhésion, d'attraction ou de répulsion, de la distribution des contacts. Pour autant, elles sont mesurées à l'échelle mésoscopique et l'on obtient donc des distributions, de tailles et de formes par exemple, ou des propriétés globales/résultantes. C'est le cas des propriétés mécaniques des poudres, frottement granulaire et cohésion, que l'on déduit de mesures en cellule de cisaillement à partir du modèle de Mohr-Coulomb.

L'échelle d'observation, l'échelle du prélèvement ou de la mesure est une question cruciale pour qui manipule des poudres, en raison de l'hétérogénéités du milieu. En effet, la poudre est un milieu fortement hétérogène aux différentes échelles auxquelles on peut la caractériser. A l'échelle microscopique ou à l'échelle du grain, les hétérogénéités concernent la microstructure des particules, des surfaces. A l'échelle mésoscopique, il existe des distributions de taille et de forme des particules, des réseaux de contacts entre les grains, de fractions volumiques de solide dans la poudre, de composition, de gradients de vitesse. Enfin, à l'échelle macroscopique, on peut observer une hétérogénéité des niveaux de consolidation qui ne sont pas uniformes à l'intérieur des dispositifs, des distributions de composition. Dans la mesure où les propriétés des grains sont distribuées, des phénomènes de ségrégation au sein d'une même poudre peuvent intervenir, notamment la ségrégation liée à la distribution de taille des grains. Ainsi s'établit un cycle : des hétérogénéités aux phénomènes de ségrégation ... qui engendrent l'hétérogénéité.

Par surcroît, parmi les produits manipulés dans l'industrie, nombreuses sont les poudres formulées, que ce soit pour modifier leurs propriétés d'usage ou de processabilité (écoulement, compressibilité), ou simplement parce que le produit fini est multi-composant. Se posent alors des questions autour de l'homogénéité et de la ségrégation mais aussi des propriétés des mélanges : dans quelle mesure peut-on relier les propriétés d'un mélange aux propriétés des éléments qui le constituent ? Une hétérogénéité du mélange peut-elle engendrer une hétérogénéité des propriétés d'écoulement ? On s'aperçoit ainsi que la maîtrise de l'homogénéité et la maîtrise des écoulements sont intimement liées, elles sont gages de qualité du produit fini, mais également de la productivité des installations. Il en résulte que pour le chercheur ou l'ingénieur qui étudie les poudres, la question de l'échelle d'observation, et plus largement des prélèvements est cruciale. Caractériser un mélange nécessite d'avoir identifié une échelle d'observation pertinente vis à vis des objectifs ou de l'usage final, l'homogénéité apparente étant liée à l'échelle d'observation pratiquée.

C'est au travers des différentes échelles d'observation possibles que nos études sur les procédés mettant en œuvre des poudres seront présentées dans ce mémoire (Figure 6). Elles s'organisent autour de deux axes : des études systémiques du mélange des poudres et des études multi-échelles autour de l'agitation, du comportement collectif et des caractéristiques des particules.

Les études à l'échelle macroscopique, à pleine échelle ou à l'échelle pilote, concernent les thèses de Denis Ponomarev, Jean-François Demeyre, Chawki Ammacha, Claire Mayer-Laigle et Xiaojuan Zhao, Ibrahim Trabelsi. Toutes traitent du mélange des poudres, en batch ou en continu, en mélangeur statique, convectif ou à tambour. Dans cette partie, où la modélisation par chaînes de Markov sera largement abordée, figureront également des références aux travaux menés sur ce sujet par notre partenaire Vadim Mizonov.

Dans un second temps, les études multi-échelles seront présentées. Cela concerne les thèses de Jérôme Revel, Léonard Legoix, Nur Kusumanindyah et Martin Giraud. Ces travaux portent sur la triboélectrification des poudres, les transformations chimiques et physiques durant leur vieillissement, qui peuvent avoir une influence sur leurs propriétés d'usages, ainsi que la relation complexe entre propriétés physiques, formulation et écoulement des poudres dans les procédés. Tous les travaux issus de la thèse de Martin Giraud, qui est en cours, ne seront pas présentés, une partie d'entre eux figurant dans le projet de recherche à court terme. La thèse d'Hayfa Boussoffara, étude rhéologique multi-échelle, étant à peine commencée à l'heure où je rédige ce manuscrit, figurera dans le projet à moyen terme, ainsi qu'une thèse sur l'intensification du mélange en continu à démarrer prochainement.

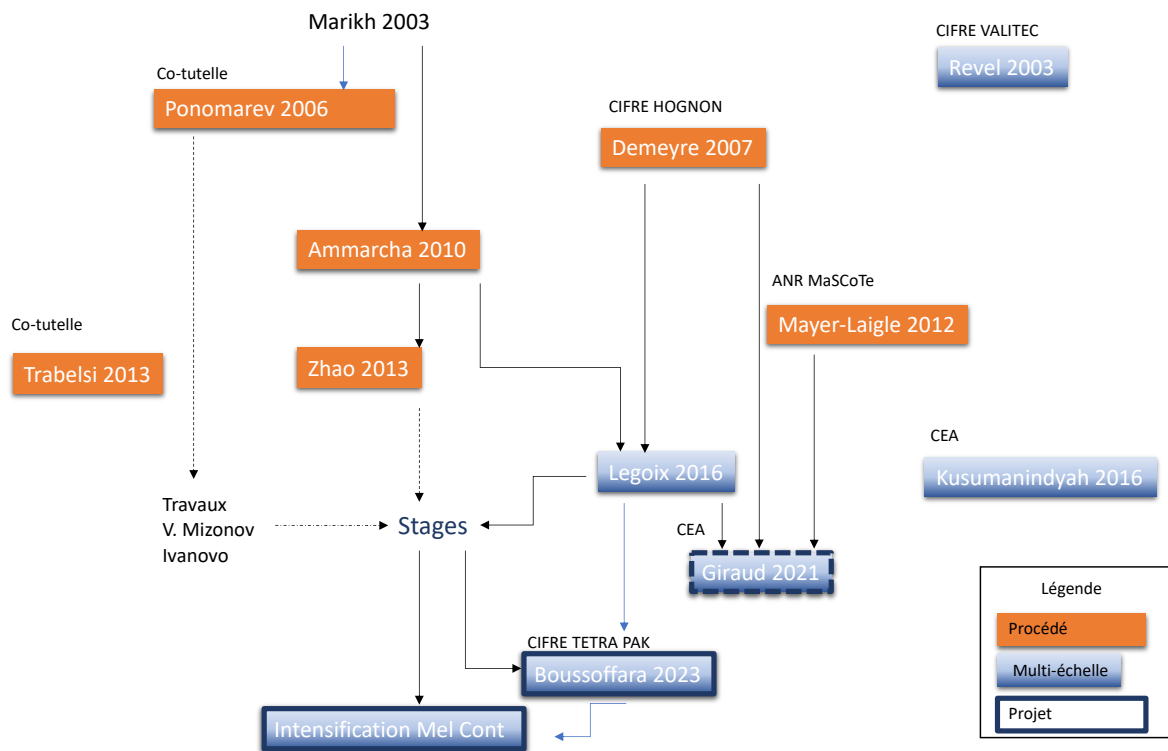


Figure 6 – Thèses et travaux encadrés, liens de précedence ; les thèses qui se rapportent aux études systémiques de mélange sont indiquées en orange, celles qui se rapportent aux études multi-échelles sont représentées en bleu ; les thèses encadrées en bleu marine sont soit en cours soit en projet.

2 Études systémiques de mélange des poudres

La thèse de Khadija Marikh (2003) et son post-doc en contrat avec la société UPSA (2004), supervisés par Henri Berthiaux, ont lancé cette thématique. Les approches systémiques, à l'échelle du procédé, typiques en génie chimique-génie des procédés n'avaient jusque-là pas ou peu été déployées pour des procédés mettant en œuvre des solides divisés. L'activité mélange en continu en découlera directement, avec les thèses de Chawki Ammarcha (2010) et Xiaojuan Zhao (2013).

Plus largement, différents types de mélangeurs ont été explorés, ils couvrent la diversité des mélangeurs qui sont utilisés en production, en dehors des mélangeurs à haut cisaillement : modèles commerciaux de mélangeur convectif continu Gericke GCM 500 et mélangeur à cuve tournante Turbula®, un prototype pour le mélangeur batch convectif Triaxe® et des mélangeurs statiques (garnissage Sulzer® et SysMix).

Il est important de noter que l'agitation et le mélange des poudres, bien qu'omniprésents sur toutes lignes de production industrielles et en fin de compte garants de la qualité des produits finis, ne présentent pas d'enjeux énergétiques importants, ou du moins ne sont pas considérés comme tels, et n'ont, pendant longtemps, pas été considérés comme des problématiques à traiter en priorité. Ceci explique le peu de travaux fondamentaux liés à ce sujet. Les configurations d'agitation le plus souvent exploitées dans la littérature sont les cuves tournantes, parce qu'elles sont mises à profit dans des opérations de broyage, de granulation ou de séchage, ainsi que l'agitation par un dispositif en rotation autour d'un axe vertical, situation que l'on retrouve sur les mélangeurs à haut cisaillement mis à profit pour les procédés de granulation mais finalement peu efficaces pour les simples opérations d'homogénéisation ou de mélange de poudres. La demande croissante en produits formulés ou fonctionnalisés, associée au développement de l'assurance qualité, remet aujourd'hui les procédés de mélange et l'estimation de l'homogénéité des mélanges au centre des préoccupations de l'industrie, n'en voulant pour preuve que les sollicitations régulières des entreprises que nous recevons à ce sujet.

Nos études ont été menées dans l'objectif de répondre à trois types de problématiques industrielles :

- la détermination d'un temps de mélange, d'une vitesse optimale d'agitation et plus généralement de l'effet d'une modification des paramètres opératoires sur le mélange obtenu, ils relèvent de la conduite de procédé ;
- le transfert d'échelle (scale-up ou scale-down) pour un appareillage donné ou la transposition d'une opération dans un dispositif de géométrie différente ;
- l'effet d'un changement de propriétés des matières premières (distribution granulométriques et/ou forme par exemple) sur les écoulements et sur les mélanges.

Pour réaliser ces études, des mesures d'homogénéité en ligne, des cinétiques de mélange, des mesures de couple d'agitation, ont été mises en œuvre et exploitées par la modélisation stochastique de type chaîne de Markov ou l'analyse dimensionnelle. Certaines des problématiques scientifiques, expérimentales ou théoriques, associées à ces études sont décrites dans cette partie. La présentation ne fait pas état de manière exhaustive du contenu des thèses qui ont soutenu ce programme de recherche, l'objectif est simplement de souligner quelques développements originaux, en les plaçant dans un contexte plus général.

Collaborations

Post-doc et Doctorants	Khadija Marikh, Denis Ponomarev, Jean-François Demeyre, Chawki Ammarcha, Xiaojuan Zhao, Brahim Trabelsi, Claire Mayer-Laigle, Martin Giraud
Collègues du laboratoire RAPSODEE	Henri Berthiaux, Jean-Louis Dirion, Denis Marty
Collaborations hors RAPSODEE	Blanche Dalloz (IUSTI UMR 7343, Polytech Marseille), Guillaume Delaplace (INRAE UMR UMET 8207, Lille), Michel Grandjean (Hognon Sa), Michel Cabassud (LGC UMR 5503 CNRS-INPT-UPS), Vadim Mizonov (Department of Applied Mathematics, Ivanovo State Power Engineering University, Ivanovo, Russie), Maher Moaker (LAMISIN, ENIT, Tunis)
Programmes de recherches et contrats	Contrat Schlumberger (2015) Contrat Hognon SA (2003-2007) ANR MaSCoTe (Matériau Solide Conducteur Thermodurcissable) – (2008-2012) – partenaires : CEA le Ripault, INSA Lyon, RAPSODEE Mines Albi, RAIGI, BILLION, HELION, TIMCAL Ltd) – Optimisation de la chaîne de production des plaques bipolaires entrant dans la composition des cellules électrochimiques qui constituent les piles à combustible PEMFC : connaissance détaillée du cahier des charges industriel, le choix des matériaux, la conception et l'étude de différentes étapes du procédé : fabrication, qualification et tests des plaques.

Valorisation

Citation par numéro correspondant aux publications personnelles listées en page 148

<i>Thèses soutenues</i>	
Denis Ponomarev (2006)	[10], [11]
Jean-François Demeyre (2007)	[4], [15], [18]
Chawki Ammarcha (2010)	[14], [16], [24], [30]
Claire Mayer-Laigle (2012)	[13], [19], [32]
Brahim Trabelsi (2013)	[8]
Xiaojuan Zhao (2013)	
<i>Collaboration Blanche Dalloz</i>	[3]
<i>Collaboration Vadim Mizonov</i>	[9], [12], [20], [21], [22], [27]

2.1 Développement de méthodologies expérimentales pour étudier l'homogénéité et la dynamique de mélange

Préalable incontournable de l'exploration et de la mise en œuvre d'opérations de mélange, la détermination de l'homogénéité des mélanges de poudres soulève des questions récurrentes tant sur l'échantillonnage que sur la détermination des compositions des échantillons par des méthodes d'analyses physiques ou chimiques, ou sur la façon de traiter les données obtenues. La détermination des compositions est-elle d'ailleurs inévitable ? Identifier une propriété du mélange qui dépend de sa composition est parfois une alternative à considérer, la méthode de mesure peut alors être qualifiée d'indirecte et il n'est pas forcément nécessaire de la calibrer pour quantifier la teneur. Étudier la distribution de cette propriété dans les divers prélèvements peut s'avérer suffisante. Par exemple, si l'un des composants d'un mélange a une masse volumique très différente de celles des autres composants, alors déterminer la masse volumique des échantillons peut s'avérer pertinente, comme l'a montré une étude de ségrégabilité de mélange menée dans le cadre d'un contrat

de prestation avec la société Schlumberger (2015). De la même façon, par les travaux de stage de Martin Giraud avec le CEA Marcoule, nous avons étudié la possibilité de suivre la fonction d'écoulement d'un mélange d'oxydes pour estimer son degré d'homogénéité (Bernard-Granger et al., 2019).

L'homogénéité apparente d'un mélange est indissociable de l'échelle à laquelle on l'observe, un mélange donné paraît d'autant plus homogène que l'échelle d'observation est grande et inversement. La première question à laquelle il faut répondre lorsqu'il s'agit d'étudier la qualité d'un mélange est donc celle de l'usage auquel le produit est destiné, c'est-à-dire l'échelle à laquelle le mélange doit être homogène. L'échelle d'observation du mélange sera donc liée à l'échelle d'usage du produit.

Deux aspects caractérisent communément, en négatif, l'homogénéité d'un mélange : l'intensité et l'échelle de ségrégation. L'intensité de ségrégation est relative à la différence de concentration entre les régions ségréguées, de compositions différentes, alors que l'échelle de ségrégation est relative à la taille des régions qui ont des compositions différentes (Villermaux Jacques, 1993).

La détermination de l'intensité du mélange, pour une échelle d'observation définie, est réalisée en déterminant la composition d'échantillons prélevés dans le mélange, dont la taille correspond à l'échelle d'observation. La composition est généralement réduite à la concentration des échantillons en un seul ingrédient d'intérêt, soit parce qu'il est l'ingrédient responsable de la qualité d'usage comme le principe actif dans une formule pharmaceutique, soit parce qu'il est l'ingrédient le plus difficile à répartir dans le mélange. Si n échantillons de concentration x_i ($i=1,n$) sont prélevés parmi les N possibles, l'homogénéité observée pourra être considérée comme étant la variance des concentrations s_{obs} (BERTHIAUX, 2002), définie dans l'équation (1).

$$s_{obs} = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n \left(x_i - \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n x_j \right)^2 \quad (1)$$

Cette variance englobe la variance intrinsèque des concentrations, dite variance vraie, l'erreur d'échantillonnage (sélection et prise) et l'erreur de mesure. Il est ainsi impératif d'accorder une attention particulière à la sélection des échantillons, selon un protocole adapté au caractère statistique de l'estimation de l'homogénéité, c'est-à-dire en nombre suffisant et prélevés de façon à ce que chaque « partie » du mélange ait la même probabilité d'être prélevée.

Le nombre d'échantillons à prélever doit être déterminé de façon à satisfaire la précision recherchée. La variance observée n'étant finalement qu'une estimation de la variance des concentrations du mélange, à une échelle donnée, la fonction discriminante χ^2 qui permet d'estimer un intervalle de confiance peut être employée à cet effet (Schofield, 1976).

L'échelle de ségrégation d'un mélange (DANCKWERTS, 1953), relative à la taille des régions ségréguées, est une caractéristique de l'état du mélange, qui peut être complémentaire de l'intensité de ségrégation. Les prélèvements effectués pour la déterminer doivent être pris de façon consécutive et non aléatoire. L'indication qu'elle donne est parfois plus directement liée à l'usage du mélange que l'intensité de ségrégation, c'est le cas lorsqu'un ingrédient d'un mélange a tendance à former des agglomérats indésirables dont la taille ou la masse unitaire maximale est définie par des contraintes d'usage. Nous avons été amenés à explorer cette question lors de la thèse de Claire Mayer-Laigle, dans le cadre du projet ANR MASCOTE. Les plaques bipolaires qui constituent les supports de membranes

électrolytiques des piles à combustible PEMFC sont constituées d'un mélange de graphite (85%) qui assure les propriétés conductrices des plaques et d'une matrice polymérique thermodurcissable (15%) qui assure leurs propriétés mécaniques. La présence d'agglomérats de matrice polymérique dans le mélange peut compromettre les propriétés thermiques et électriques des plaques et engendrent des problèmes de démoulage lors de leur fabrication ; ils sont considérés comme des défauts. Afin d'être représentatifs de l'usage du mélange, nous avons choisi de travailler sur le produit fini, c'est-à-dire les plaques. L'échelle de ségrégation est généralement étudiée en 1-D par la fonction d'autocorrélation entre les échantillons prélevés consécutivement, en 2-D il est possible d'utiliser à cet effet l'indice de Moran. La plaque est découpée fictivement en 360 échantillons unitaires (EU). La plaque est observée par microscopie, elle est fictivement découpée en échantillons de taille 25 EU, ce qui représente donc l'échelle d'observation. Des matrices échantillon sont réalisées, à partir desquelles il est possible d'établir les matrices de voisinage qui entrent en compte dans le calcul de l'indice. La distance de non-corrélation entre les échantillons, appelée distance spécifique, donne une indication de l'échelle de ségrégation. La méthodologie développée a été testée par des simulations d'images comportant des défauts de différentes tailles et en différents nombres. Jusqu'à 5 défauts dont la taille varie entre 1 et 4 EU. Les résultats obtenus montrent clairement que le nombre de défauts affecte l'intensité de ségrégation (exprimée par le coefficient de variation des échantillons) mais pas l'échelle de ségrégation. En revanche, l'intensité et l'échelle de ségrégation sont toutes deux sensibles à la taille des défauts. L'échelle de ségrégation est alors une caractéristique discriminante pour l'étude de la taille des défauts (Mayer-Laigle et al., 2011).

Dans l'industrie l'estimation de l'homogénéité des mélange est encadrée par des standards bien précis, comme ceux de la Pharmacopée européenne et de la Food and Drug Administration Américaine (FDA, 2003) (Bergum et al., 2014). Une tolérance sur la teneur moyenne des prélèvements effectués (7,5% de la moyenne attendue) est donnée comme validant l'échantillonnage, le coefficient de variation des compositions mesurées est également encadré (6%).

Ainsi, le traitement de la question de l'homogénéité d'un mélange de poudres est loin d'être trivial et nécessite de développer des méthodologies adaptées à chaque étude réalisée (Massol-Chaudeur et al., 2002).

Une fois la question de l'estimation de l'homogénéité résolue, comment obtenir un bon mélange ? Les mécanismes de mélange et de ségrégation qui s'établissent au sein du mélangeur sont responsables de l'état de ségrégation du mélange obtenu, ils sont liés à l'action mécanique imposée par le mélangeur (sa géométrie, son mode d'action mécanique, la vitesse d'agitation) mais aussi aux caractéristiques intrinsèques des poudres telles que la taille ou la forme des particules, ainsi que leurs distributions. La notion de dynamique de mélange est relative à ces mécanismes.

On considère classiquement trois mécanismes de mélange :

- La convection : de larges groupes de particules sont transportés par les pales d'un agitateur ou entraînés par la rotation de la cuve
- La diffusion : concerne les déplacements aléatoires des particules les unes par rapport aux autres, liés à la collision des particules, souvent dans la direction orthogonale à l'écoulement
- Le cisaillement : nécessaire pour séparer des particules agglomérées ou des particules liées entre elles par des forces attractives. Le niveau de cisaillement en mélangeur convectif est lié à la vitesse d'agitation.

Ces différents mécanismes de mélange ont lieu simultanément, à des échelles spatiales différentes donnant lieu à des progressions du mélange à des échelles de temps différentes, les cinétiques de mélange sont généralement la signature de ces mécanismes, comme le montre la Figure 7.

Lorsque les poudres à mélanger ont des tailles, des masses volumiques ou des formes différentes des mécanismes de ségrégation se développent simultanément au mélange, en fonction des situations rencontrées. Les mécanismes de ségrégation couramment cités sont la ségrégation par trajectoire, l'élutriation ou la percolation des fines particules au travers du réseau formé par les plus grosses particules, en situation de vibration par exemple. La formation d'un tas, ou plus généralement les situations d'avalanches sont sources de ségrégation. Les poudres à écoulement libre, dont les particules sont mobiles les unes par rapport aux autres sont généralement plus ségrégantes que les poudres cohésives.

Le cisaillement induit par le système d'agitation en mélangeur convectif génère des contraintes dans la poudre qui sont plus importantes que celles qu'on peut rencontrer dans des mélangeurs à tambour (qui est dans ce cas la contrainte compressive sous le poids de la poudre). Ainsi les particules y sont moins mobiles, donc moins sujettes à ségrégation. Ces mélangeurs sont à préférer aux tambours pour le mélange des poudres à fort risque de ségrégation.

Le suivi de l'homogénéité des mélanges au cours du temps, ou cinétique de mélange, est un moyen d'accéder à la dynamique de cette opération (Lacey, 1954) du moins pour les mélangeurs fermés. Les méthodes listées par Gyenis en 1999 sont, par exemple, toujours d'actualité (Gyenis, 1999), pour déduire des mécanismes de mélange de type convectifs ou diffusifs des descripteurs d'homogénéité obtenus à partir des cartographies de concentration, tels les fréquences de distribution, les méthodes de corrélation, l'analyse fractale ou l'analyse spatiale de l'espace des phases (analyse de portraits de phases). Pour les systèmes ouverts, le suivi en ligne de l'homogénéité en sortie du mélangeur peut être employé à cet effet.

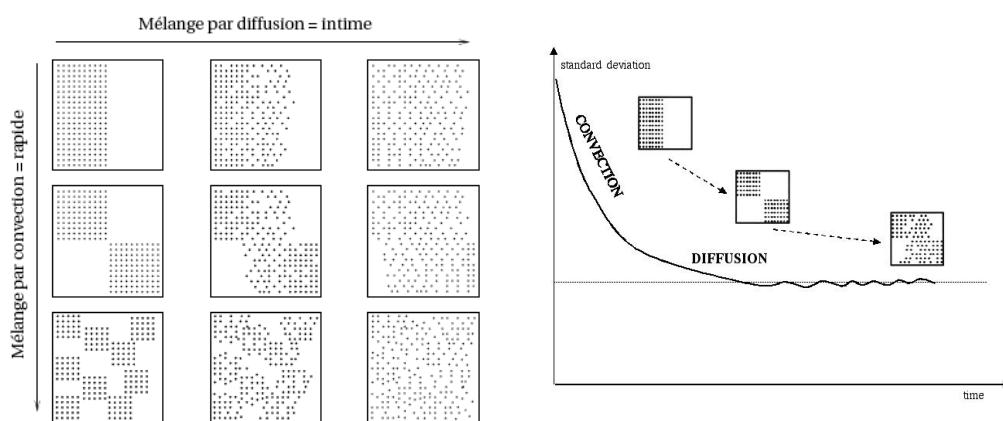


Figure 7 – (a) Diminution de l'échelle et de l'intensité de ségrégation par des mécanismes de convection et de diffusion (Schofield, 1970) (b) Suivi d'une cinétique de mélange : diminution d'un indice de mélange au cours d'un suivi cinétique, en lien avec les mécanismes de mélange probables

Dans ce chapitre, un exemple de développement d'une méthodologie d'estimation de l'homogénéité de mélange sera présenté, il sera appliqué à l'analyse en ligne et le suivi de l'homogénéité en sortie d'un mélangeur continu. L'application des méthodologies que nous avons développées sera alors illustrée par trois exemples : l'étude dynamique d'un mélangeur continu, l'étude des mécanismes de mélange en mélangeur planétaire et en mélangeur à tambour.

a. Analyse en ligne de l'homogénéité des mélanges

L'échantillonnage dynamique, en vidange d'un mélangeur est une alternative intéressante au prélèvement statique par « sonde voleuse ». Pratiqué en 1-D avec sélection aléatoire, il est de surcroît en accord avec le principe du prélèvement équiprobable. Jean-François Demeyre (Demeyre, 2007) a mis au point une méthodologie d'estimation de la qualité des mélanges en vidange d'un mélangeur batch. Le mélange, déversé dans une trémie, est étalé sur une bande transporteuse en mouvement et sa composition est déterminée par acquisition et analyse d'image. Cette technique permet, en outre de s'affranchir de l'erreur de prise d'échantillon. Les mélanges considérés dans l'étude sont constitués de 25% en masse de couscous coloré en noir par absorption d'iode, $d_{50}=1400\text{ }\mu\text{m}$ et de lactose, $d_{50}=70\text{ }\mu\text{m}$. L'acquisition est réalisée par une caméra linéaire (prise d'image d'une ligne de 5000 pixels) dont la fréquence est réglée en fonction de la vitesse de déplacement de la bande transporteuse, afin de reconstituer l'image sans la déformer. La totalité du mélange peut ainsi être observée avec une résolution de $60\text{ }\mu\text{m}$, ce qui est inférieur à la taille des grains de couscous. Un programme a été développé sur Labview® pour échantillonner le mélange, c'est-à-dire former des images de différentes tailles, avec différentes modalités de sélection. La teneur en couscous dans les échantillons est mesurée à l'aide d'un programme d'analyse d'image « maison » : détermination d'une région d'intérêt excluant les bord de la bande de grains et binarisation de l'image en fonction d'un seuillage permettant de distinguer le couscous noir du lactose.

Afin d'illustrer l'importance de la taille et du nombre d'échantillons analysés sur la détermination de l'homogénéité, un mélange de couscous et de lactose a été filmé entièrement puis échantillonné suivant 6 protocoles différents, représentés sur la Figure 8 :

- a échantillonnage complet, 311 échantillons de taille 730.10^3 pixels
- a' échantillonnage aléatoire, 100 échantillons de taille 730.10^3 pixels
- b échantillonnage stratifié, aléatoire, 311 échantillons de taille 160.10^3 pixels
- c échantillonnage stratifié, aléatoire, 311 échantillons de taille 4.10^3 pixels
- d échantillonnage stratifié, aléatoire, 311 échantillons de taille 182.10^3 pixels
- e échantillonnage stratifié, 311 échantillons de taille 182.10^3 pixels

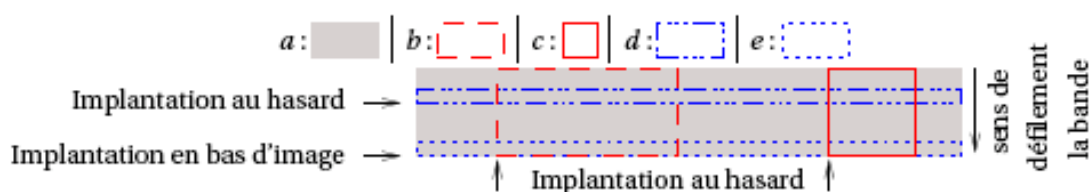


Figure 8 - Schématisation des échantillonnages stratifiés, sur une image représentée en fond gris, pour un mélange 24%couscous-76%lactose

La moyenne observée des teneurs est un indicateur de la représentativité de l'échantillonnage. Les teneurs moyennes, et leurs intervalles de confiance à 95% calculés avec la loi de Student sont représentés sur la Figure 9 (a). L'homogénéité du mélange est représentée par la variance des teneurs. Les variances obtenues pour chaque plan d'échantillonnage sont représentées sur la Figure 9 (b), avec des intervalles de confiances à 95% par la loi de χ^2 . Il n'y a pas d'intervalle de confiance pour les valeurs obtenues à partir de l'échantillonnage a car il est exhaustif.

La représentativité des échantillons obtenus avec les différents plans est acceptable dans la mesure où la moyenne observée sur l'échantillonnage exhaustif est incluse dans tous les intervalles de confiance. De la même façon, le fait de prélever 100 échantillons parmi les 311 possibles n'est pas pénalisant pour l'estimation de l'homogénéité, il en est de même pour la sélection des échantillons dans les images. En revanche, cette étude montre que l'homogénéité apparente du mélange est fortement corrélée à la taille des échantillons. Il apparaît ici clairement que l'on ne peut pas utiliser la variance comme indice d'homogénéité pour comparer des mélanges s'ils n'ont pas été prélevés à la même échelle.

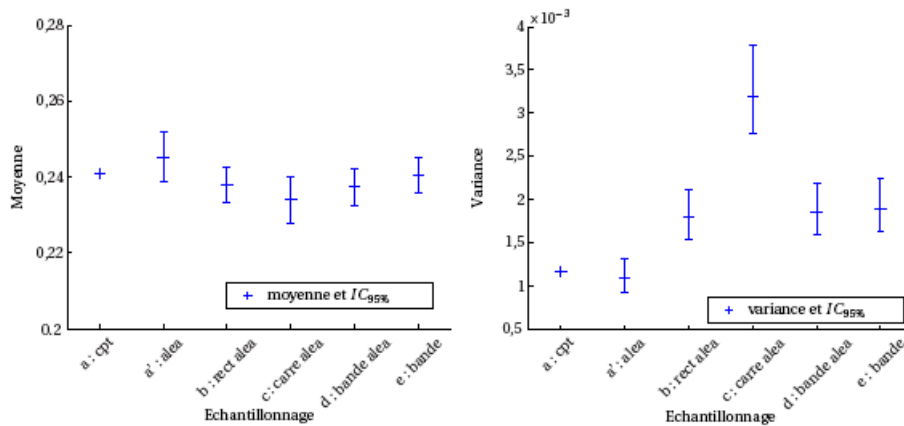


Figure 9 - Moyennes (a) et variances (b) pour différents plans d'échantillonnage

Cette méthodologie a été mise à profit par Chawki Ammarcha pour l'analyse en ligne de l'homogénéité obtenue en sortie du mélangeur continu Gericke GCM 500 (Ammarcha et al., 2017), en temps réel. Le dispositif expérimental est présenté en Figure 10. Trois doseurs pondéraux sont disponibles pour alimenter le pilote. Le mélange de poudres est étalé sur la bande transporteuse en sortie du mélangeur, et analysé par la caméra linéaire associée au programme d'acquisition et de traitement d'images précédemment décrit.

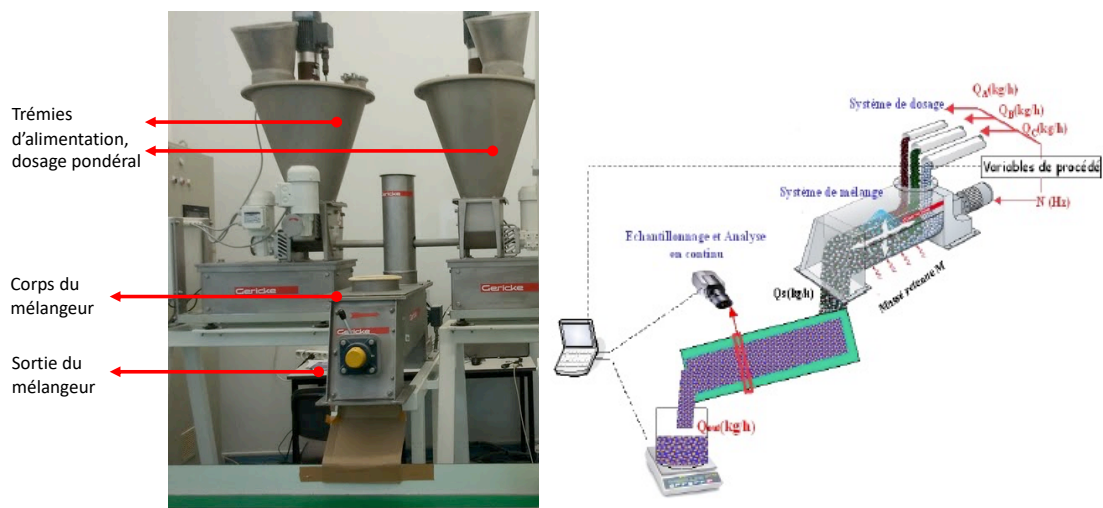


Figure 10 – Pilote de mélange en continu et dispositif d'analyse en ligne de l'homogénéité du mélange en sortie du pilote

La vitesse de la bande transporteuse est ajustée à la vitesse à laquelle la caméra filme le mélange, celle-ci ayant été déterminée en fonction de la chaîne de traitement d'image (numérisation, stockage, analyse). Les mélanges étudiés sont composés de couscous fin ($d_{50}=860 \mu\text{m}$) et de couscous ($d_{50}=1400 \mu\text{m}$) moyen, le couscous fin est coloré par absorption

d'iode. Les mélanges étalés ne recouvrant pas totalement la surface de la bande transporteuse, dont le tapis est de couleur verte, un double seuillage est nécessaire pour déterminer la composition des échantillons.

La caméra réalise ainsi 14 images, ou échantillons, par seconde, elles ont une largeur fixe et la masse échantillonnée dépend du débit de sortie du mélangeur. Pour un débit de sortie de 40 kg/h, la masse d'un échantillon élémentaire est de 0,794g. Il est possible d'échantillonner à des tailles plus importantes en prélevant plusieurs images consécutives. Un échantillon sera alors composé de n échantillons élémentaires. Deux mesures sont alors forcément séparées d'un laps de temps de n fois la prise d'échantillon élémentaire. Afin d'augmenter la fréquence d'acquisition de nos données il a été décidé de procéder par échantillonnage élémentaire « glissant ». A chaque prise d'un nouvel échantillon élémentaire une image est reconstituée en l'ajoutant aux $n-1$ précédents. Cette méthode permet de mieux détecter de petits défauts dans les mélanges (Ehrhardt et al., 2005).

L'homogénéité de mélange est suivie au travers de la teneur en couscous fin dans les échantillons, ainsi que la variance calculée sur les 200 derniers échantillons analysés et le coefficient de variation correspondant (écart-type divisé par la moyenne observée). Conformément aux standards de l'industrie pharmaceutique (pharmacopée européenne ou FDA), nous avons admis que le mélange est homogène lorsque trois conditions sont réunies :

- le coefficient de variation est inférieur à 6%
- la composition moyenne observée est comprise dans un intervalle de plus ou moins 7,5% de la composition désirée
- aucun échantillon n'a une composition qui s'écarte de plus de 15% de la composition désirée.

Un mélange de composition 50% couscous fin- 50% couscous moyen réalisé avec un débit total de 40 kg/h et vitesse d'agitation 40 Hz a été analysé en ligne en sortie du mélangeur Gericke GCM500 à différentes échelles d'observation. Le mélangeur est mis en route à cuve vide et il est ainsi possible de suivre l'établissement du régime permanent. A la plus petite échelle d'observation, la dispersion des teneurs en couscous fin des échantillons analysés résulte en des valeurs élevées du coefficient de variation, entre 8 et 10%. Si l'on augmente l'échelle d'observation cette dispersion diminue, les CV calculés en sont d'autant plus faibles, entre 2 et 4% à partir de 11g.

La teneur moyenne en couscous fin (Figure 11) fluctue autour de sa valeur nominale et il en résulte des fluctuations du CV lui-même. L'amplitude et la fréquence des fluctuations observées ne dépendent pas de l'échelle d'observation. En effet, la teneur moyenne est calculée sur la composition de 200 échantillons successifs, pris à une fréquence de 1/14^{ème} de seconde quelle que soit l'échelle d'observation (échantillonnage glissant), soit sur une durée totale de 14,28 secondes dans tous les cas.

Le mélange serait déclaré non conforme avec une échelle d'observation de la taille de l'échantillon élémentaire (0,794g) alors qu'à une échelle d'observation d'au moins 7 fois cette taille (5,5g) le mélange serait déclaré conforme. Cette forte dépendance de l'homogénéité apparente vis à vis de l'échelle d'observation reste souvent une zone d'ombre pour les études de mélange. En effet, hormis dans l'industrie pharmaceutique où l'échelle d'usage est souvent bien définie, comme celle d'un comprimé par exemple, cette échelle est rarement connue des industriels et une attention particulière doit être portée à ce point-là au démarrage des études.

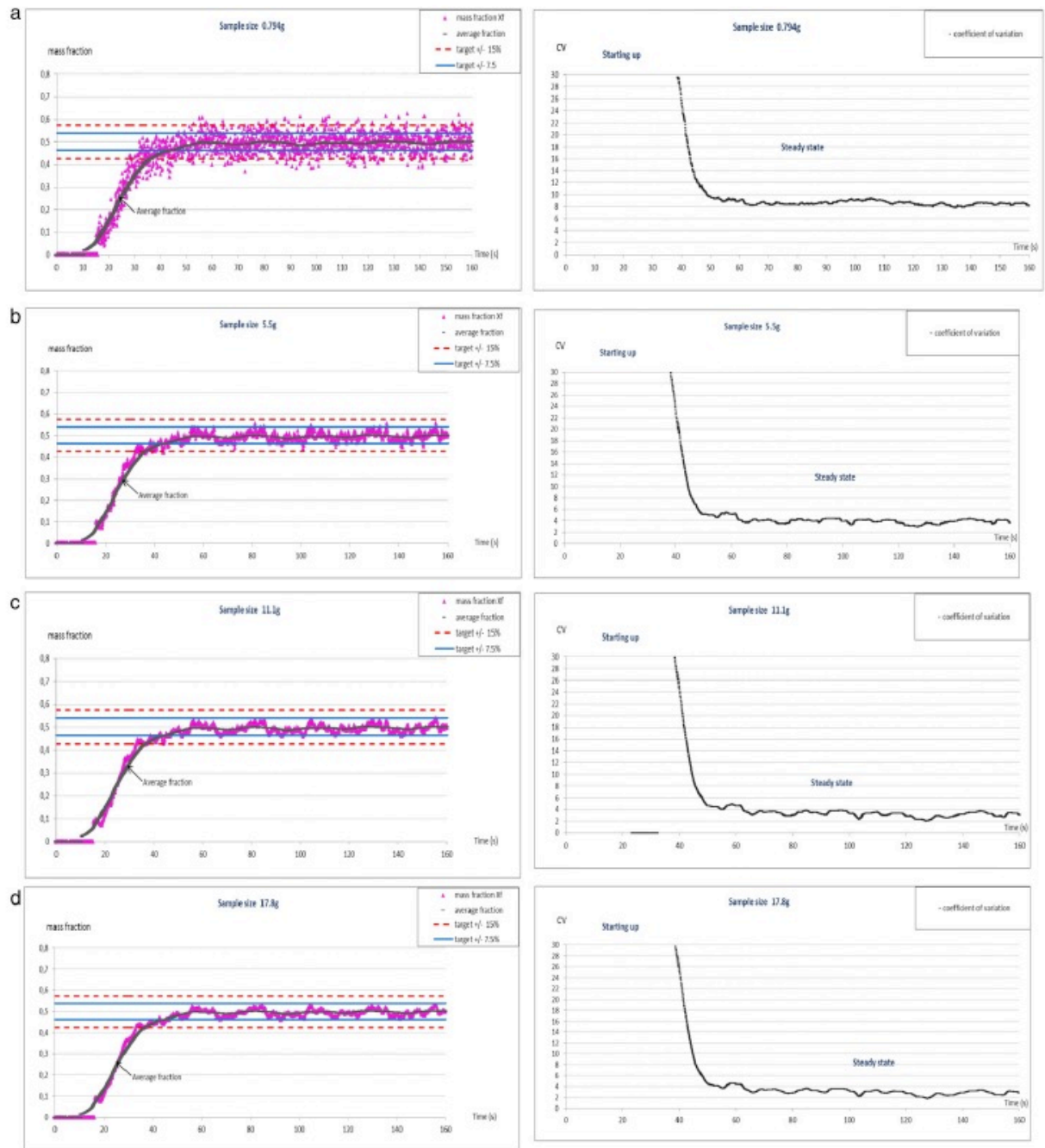


Figure 11 - Homogénéité de mélange en ligne à la sortie du mélangeur continu pour différentes tailles d'échantillons. Débit total 40 kg/h, vitesse d'agitation 40 Hz, composition massique du mélange 50% couscous fin- 50% couscous moyen

Notre méthode d'analyse en ligne de l'homogénéité des mélanges étant basée sur l'acquisition et l'analyse d'image n'a pas une résolution suffisante pour travailler sur des mélanges de poudres fines, ni sur des mélanges faiblement dosés qui sont pourtant répandus dans l'industrie. Les techniques spectroscopique NIR (proche infrarouge) pourraient pallier cette problématique (Berntsson et al., 2002), soit à partir de sondes qui peuvent être implémentées à la surface des installations, soit utilisée en imagerie pour scanner un échantillon et en déterminer la distribution spatiale des constituants. En réalité, l'étendue des méthodes non-invasives est grande mais finalement peu offrent la possibilité d'une analyse en ligne, rapide, et donc sans trop de post-traitements (Nadeem and Heindel, 2018).

Lorsque l'analyse en ligne n'est pas possible, des prélèvements peuvent être effectués sur la bande transporteuse et doivent être analysés par d'autres méthodes, qui sont adaptées aux constituants du mélange : dissolution et dosage chimique ou dégradation thermique par exemple, que nous avons mis en œuvre pour certaines de nos études.

b. De l'estimation de l'homogénéité à la dynamique de mélange

La notion de dynamique est relative aux forces mises en jeu. Par dynamique de mélange, on entendra ici les mécanismes de mélange engendrés par les actions mécaniques du système d'agitation (rotation d'une cuve ou d'un agitateur). Chaque mécanisme ayant une cinétique qui lui est propre, le niveau d'homogénéité que l'on peut atteindre dépend à la fois des mécanismes mis en jeu et de la durée du mélange.

Le terme régime de mélange, ou régime d'écoulement, qui sera employé à maintes reprises dans le mémoire, désigne une plage de conditions opératoires (géométrie du dispositif, vitesses, taux de remplissage) dans laquelle les mécanismes impliqués sont identiques.

Les descripteurs classiques d'homogénéité (moyenne, variance, échelle de ségrégation) seront mis à profit pour étudier la dynamique de mélange, à partir de cinétiques en mélangeur fermé ou mesurés en ligne en mélangeur continu.

Dynamique d'un mélangeur continu

Durant le régime transitoire observé sur la Figure 11, la fraction massique en couscous fin augmente progressivement jusqu'à atteindre sa valeur nominale lorsque le régime permanent est établi. C'est une observation surprenante au premier abord, signe d'un phénomène de ségrégation par la taille au sein du mélangeur : pendant la phase transitoire de démarrage les plus grosses particules parcourent plus vite le volume du mélangeur, celui-ci est le siège de phénomènes de ségrégation par la taille, percolation des fines et/ou ségrégation par trajectoires, tout comme pendant la formation d'un tas. Dans les différents modèles que nous avons développés, le mélangeur est discrétisé en cinq zones, correspondant aux cinq « paires de pales » situées sur le cadre de l'agitateur (Figure 12). Une analyse de la composition de la masse retenue dans le mélangeur (Figure 13) en régime permanent montre que dans les quatre premières, la teneur en couscous fin est de 70%, seule la zone située près de la sortie a la composition attendue de 50%. Cette ségrégation est prépondérante dans la première partie du mélangeur, ce qui laisse envisager qu'une alimentation étagée serait pertinente pour l'addition d'ingrédients ségrégant dans certains mélanges.

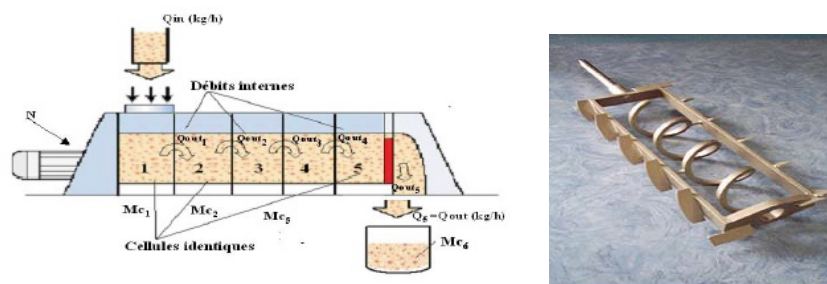


Figure 12 - Discretisation du mélangeur et géométrie du mobile d'agitation

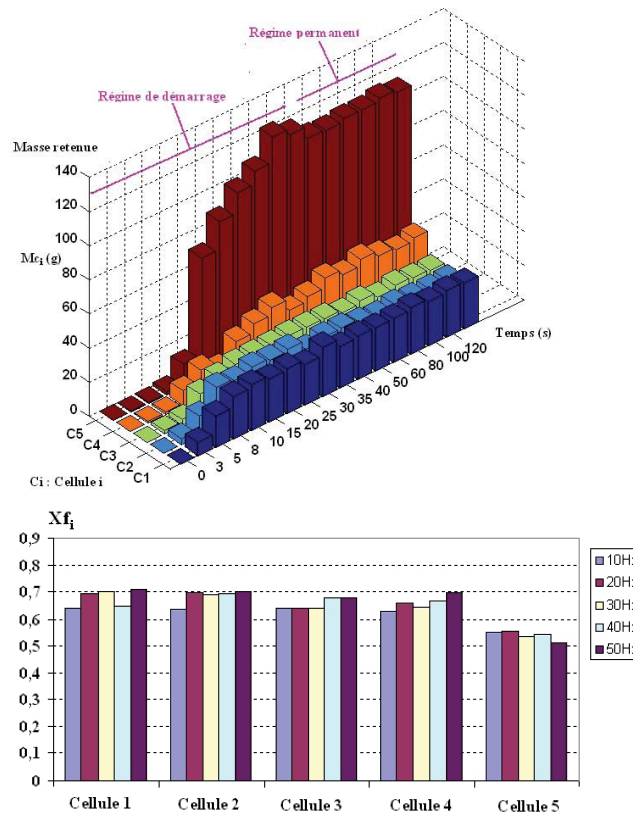


Figure 13 - (a) Répartition des masses internes dans les cinq cellules et leur compositions – débit 40 kg.h^{-1} , agitation 30Hz (b) répartition des teneurs en couscous fin – débit 40 kg.h^{-1} , mélange entrant 50% couscous fin

Les fluctuations de la teneur moyenne autour de sa valeur nominale en sortie du mélangeur qui sont observables sur la Figure 11, en régime établi, montrent que le mélangeur n'est jamais réellement en régime permanent. Ceci a été corroboré par l'enregistrement de fluctuations du débit mesuré en sortie du mélangeur, ce n'est pas étonnant dans la mesure où le débit d'alimentation lui-même est sujet à des fluctuations aléatoires. De plus, le mélangeur est le siège de mécanismes d'écoulement intermittents, le transport vers la sortie s'opérant, en surface, par avalanches successives qui induisent des phénomènes de mélange et de ségrégation qui ne s'établissent pas en continu. Les fluctuations de teneur moyenne sont de fréquence identique quelle que soit la vitesse d'agitation pratiquée (entre 10Hz et 50Hz), elles sont la signature de phénomènes dont le temps caractéristique n'est pas imposé par le dispositif d'agitation.

En travaillant à des vitesses d'agitation comprises entre 10 et 50 Hz (tour.s^{-1}), on observe que le régime permanent s'établit d'autant plus vite que la vitesse d'agitation est élevée, ce qui montre l'intérêt industriel de démarrer l'installation à vitesse importante. Le coefficient de variation mesuré en sortie de mélangeur est représenté sur la Figure 14. En régime établi, pour les vitesses de 10 et 20 Hz les CV moyen observés sont 8,5% et 8% alors que les vitesses de 30, 40 et 50 Hz ils sont de 3%, 4% et 3% respectivement (Tableau 1). Cette étude pose ainsi l'existence de régimes d'agitation au sein desquels la vitesse n'a finalement que peu d'influence sur l'homogénéité telle que définie par le coefficient de variation. En revanche, dans chaque régime, des mécanismes différents de mélange et de ségrégation prennent place et n'aboutissent pas à la même intensité de mélange.

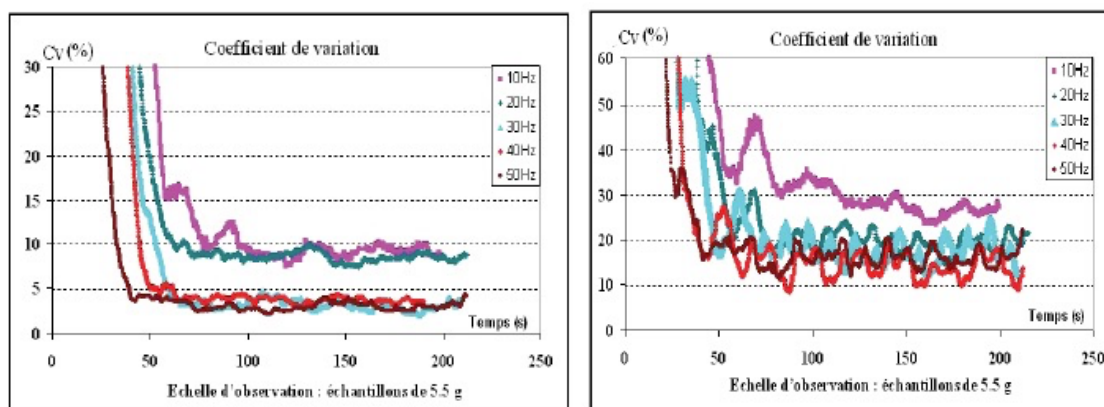


Figure 14 - (a) Mélange 50%-50% (b) Mélange 12,5%-87,5% - échantillons 5,5g

La composition du mélange peut affecter ces mécanismes, comme le montre la Figure 14 (b). Si les vitesses de 30 à 50 Hz mènent toujours à des CV identiques entre eux (voir Tableau 1), ce n'est pas le cas pour les vitesses 10 et 20 Hz. De plus, les fluctuations du CV restent importantes même à forte vitesse d'agitation. Le mélange contenant seulement 12,5% massique de couscous fin est sans doute plus sujet à la ségrégation. Ainsi, la composition du mélange elle-même impacte les mécanismes qui prédominent au sein du mélangeur. Paramètres opératoires et propriétés des poudres sont impliqués conjointement dans l'établissement des mécanismes de mélange.

Tableau 1 - Coefficients de variation moyens en régime permanent pour une échelle d'observation de 5,5g à différentes vitesses d'agitation

CV (%)	10 Hz	20 Hz	30 Hz	40 Hz	50 Hz
mélange à 50% de couscous fin	8,5	8	3	4	3
mélange à 12,5% de couscous fin	27	20	16	14	15

En système ouvert, la vitesse d'agitation impacte la masse retenue dans la cuve ainsi que le temps de passage, rendant complexe l'interprétation directe de ces résultats (Sarkar and Wassgren, 2009). La géométrie du mobile d'agitation a également un effet considérable, induisant au sein du mélangeur des recirculations qui peuvent être déterminantes et qui de surcroît dépendent des propriétés d'écoulement des produits agités (Marikh et al., 2008). Extraire la dynamique de mélange à partir de ces informations requiert ainsi de plus amples observations, comme la visualisation de la poudre au sein de la cuve, ou une analyse plus poussée des résultats, par l'établissement d'un modèle.

Mécanismes de mélange en mélangeur convectif planétaire

Les travaux ont été réalisés dans le cadre de la thèse de Jean-François Demeyre, en contrat CIFRE avec la société Hognon SA, en collaboration avec Michel Grandjean. Nous devons étudier la capacité d'un mélangeur prototype, le Triaxe®, à réaliser des mélanges de poudres. Conçu pour l'agitation des produits visqueux, en particulier des confitures avec présence de fruits entiers, il avait été testé au Laboratoire de génie des procédés et Technologies Alimentaires de l'INRA de Lille mais n'avait jamais été utilisé pour l'agitation des poudres. Sa cuve sphérique d'une capacité de 40 l est agitée par un mobile constitué de quatre pales planes mis en mouvement selon deux axes, de rotation et de giration, par deux moteurs indépendants l'un de l'autre (Figure 15).

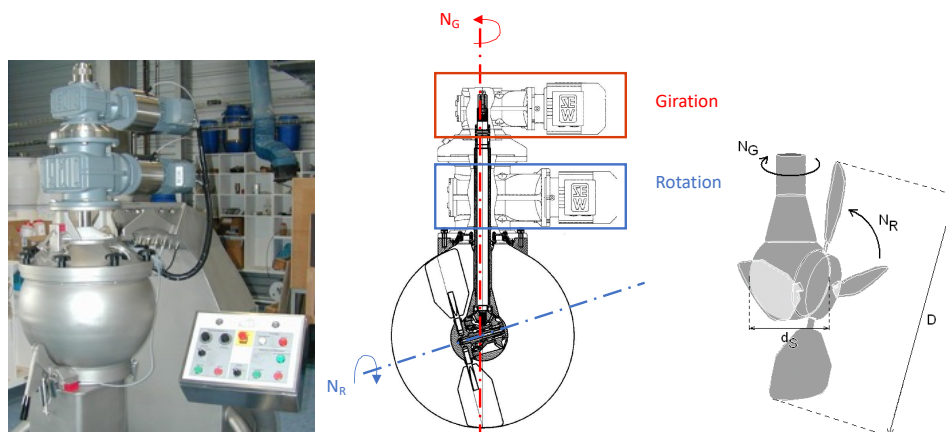


Figure 15 – Mélangeur Triaxe : schéma du système d'agitation combinant rotation et giration

Il s'agit donc d'un mouvement planétaire et la combinaison des vitesses de giration et de rotation permet de travailler dans une large gamme de conditions d'agitation. La vitesse maximale de chaque moteur est de 3000 tr/min^{-1} , la vitesse maximale de l'axe de giration est de 20 tr.min^{-1} , pour la rotation 100 tr.min^{-1} . L'entrefer de $0,3 \text{ mm}$ évite la formation d'une zone morte près des parois.

La trajectoire des pales a été modélisée, ce qui nous a permis de calculer la vitesse de bout de pale ainsi que l'angle de pénétration des pales dans les différentes combinaisons de vitesses de rotation et de giration (Figure 16). Les grandes vitesses de giration favorisent l'amplitude des variations de vitesse linéaire et d'angle d'attaque. Les grandes vitesses de rotation mènent aux vitesses linéaires les plus grandes, la valeur maximale est de $2,6 \text{ m.s}^{-1}$ lorsque les deux moteurs tournent à 3000 tr.min^{-1} . L'angle d'inclinaison des pales au repos est de 45° , en rotation il est d'autant plus important que le rapport vitesse de rotation/vitesse de giration est petit, il peut atteindre 80° . La vitesse linéaire à laquelle nous nous sommes référés dans l'étude est la vitesse maximale que l'on peut observer sur les oscillations. En milieu liquide les agitateurs à grande inclinaison de pale, telles les turbines, sont considérés comme induisant une turbulence et des mécanismes de cisaillement importants et les mobiles à pales peu inclinées, de type hélices, sont considérés comme étant convectifs dans la mesure où ils induisent une circulation, ou pompage, dans le milieu. La rhéologie des poudres ne permet pas vraiment de réaliser d'analogie. Nous nous contenterons d'écrire que les combinaisons de vitesses qui mènent aux vitesses linéaires de bout de pale importantes induisent plus de cisaillement et que plus l'angle d'attaque est grand, plus grande est la quantité de poudre mise en mouvement par les pales, ce mécanisme sera nommé convection.

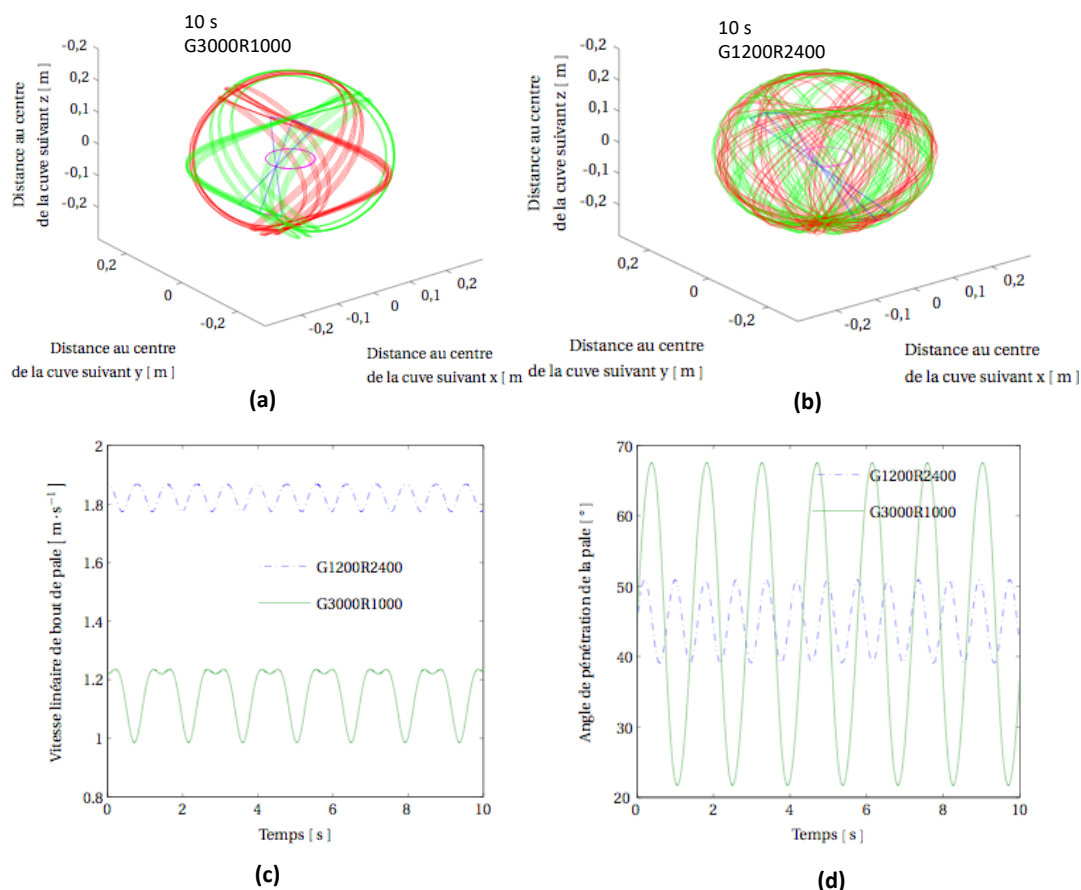


Figure 16 - Trajectoire (simulation 10s) d'un point en bout de pale pour une vitesse du moteur de giration de 3000 $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ et rotation 1000 $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ (a) pour une vitesse du moteur de giration de 1200 $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ et rotation 2400 $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ (b) vitesse linéaire de bout de pale (c) et angle d'attaque des pales (d) pour les mêmes combinaisons de vitesses

Des études cinétiques ont été réalisées pour deux types de mélanges de 30 kg de poudre :

- Un mélange ségrégant de 21% massique de couscous coloré en noir ($d_{50}=1400\mu\text{m}$) et de semoule ($d_{50}=340\mu\text{m}$), d'indice de Carr 12%
- Un mélange plus cohésif et donc moins ségrégant de 24% massique de couscous coloré en noir ($d_{50}=1400\mu\text{m}$) et de lactose ($d_{50}=70\mu\text{m}$), d'indice de Carr 24%

L'homogénéité des mélanges est estimée par acquisition et analyse d'image en vidange du mélangeur, l'indice de mélange qui est suivi est la variance entre les compositions mesurées. L'estimation de l'homogénéité en vidange du Triaxe® impose de réaliser une nouvelle manipulation pour chaque point de la cinétique. Les mélanges de couscous et de semoule sont entièrement échantillonnés à une échelle d'observation de 2g et les mélanges de couscous et de lactose sont échantillonnés aléatoirement à l'échelle de 0,7g (1500 échantillons), les prises d'image sont différentes car les deux mélanges ne s'étalent pas de la même façon sur la bande transporteuse. Dans la mesure où les tailles d'échantillon sont différentes, les variances calculées ne sont pas comparées. Notons seulement qu'elles varient très peu en fonction des conditions d'agitation pour un même mélange, et qu'à échelle d'observation identique on obtient les mêmes ordres de grandeur pour les deux mélanges. Les résultats sont exprimés en temps de mélange, celui-ci étant

considéré comme la durée de mélange nécessaire pour obtenir une variance de 110% de la variance minimale (Figure 17). Le choix de ne pas conserver le temps pour lequel la variance minimale est observée vient du fait que la cinétique de mélange est lente lorsque le mélange est en cours d'achèvement, voire dans certains cas, la variance « oscille » autour de la valeur minimale pour les temps longs. Ainsi, l'erreur de détermination du temps de mélange est grande et ce choix avait pour but de la réduire.

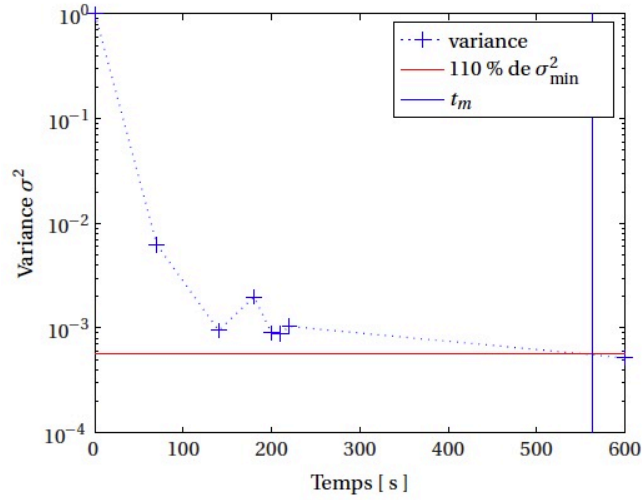


Figure 17 - Détermination du temps de mélange pour un mélange de couscous/semoule, vitesse moteur giration 900 tr.min⁻¹ et rotation 225 tr.min⁻¹

Les conditions d'agitation testées sont 14 combinaisons de vitesses de giration (de 150 à 2400 tr.min⁻¹) et de rotation (de 300 à 1800 tr.min⁻¹), les angles d'attaque des pales allant de 45,8° à 78,9° et les vitesses maximales de bout de pale allant de 0,21 à 1,87 m.s⁻¹.

On trouve dans la littérature des corrélations qui lient le temps de mélange et les caractéristiques d'agitation, dont celle d'Entrop (Entrop, 1978) pour un mélangeur orbital type Nauta® (équation (2)).

$$N_v t_m = 13 \left(\frac{L}{D_v} \right)^{1,93} \quad (2)$$

D_v , L sont les diamètre et longueur de la vis (m), N_v est la vitesse de rotation de la vis sur elle-même (s⁻¹) et t_m est le temps de mélange (s).

Cette relation signifie que l'homogénéisation est obtenue en un certain nombre de tours de la vis sur elle-même, qui ne dépend que des caractéristiques géométriques du mélangeur.

Les temps de mélange obtenus pour les mélanges couscous/semoule et couscous/lactose sont tracés en fonction du produit vitesse axe de rotation*vitesse axe de giration sur la Figure 18. Les corrélations obtenues ne sont pas précises, mais se rapprochent d'une corrélation du type (équation (3)) :

$$\sqrt{N_{AR} N_{AG}} \cdot t_m = \text{cte} \quad (3)$$

$\sqrt{N_{AR} N_{AG}}$ est la moyenne géométrique des vitesses de rotation des deux axes du mobile et la constante, à géométrie donnée, dépend du système granulaire. La complexité du

mouvement du mobile d'agitation rend difficile l'interprétation de ce résultat mais il mériterait une attention particulière dans une future étude sur ce dispositif.

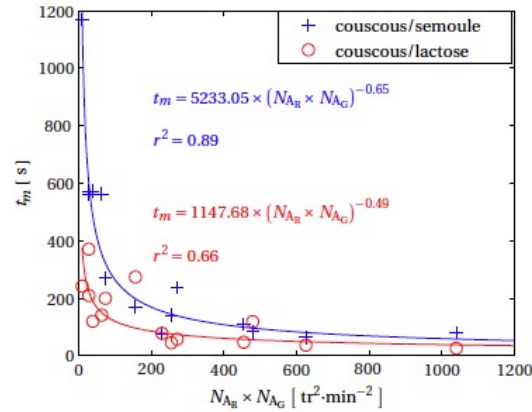


Figure 18 - Temps de mélange en fonction du produit des vitesses des axes de rotation et de giration pour les mélanges couscous/semoule et couscous/lactose

Afin d'approcher des mécanismes de mélange, les temps de mélange ont été tracés en fonction des conditions d'agitation. Pour les mélanges couscous/semoule le temps de mélange semble corrélé à la vitesse linéaire de bout de pale (Figure 19) alors que pour les mélanges couscous/lactose, plus cohésifs, c'est l'angle d'attaque qui semble être déterminant.

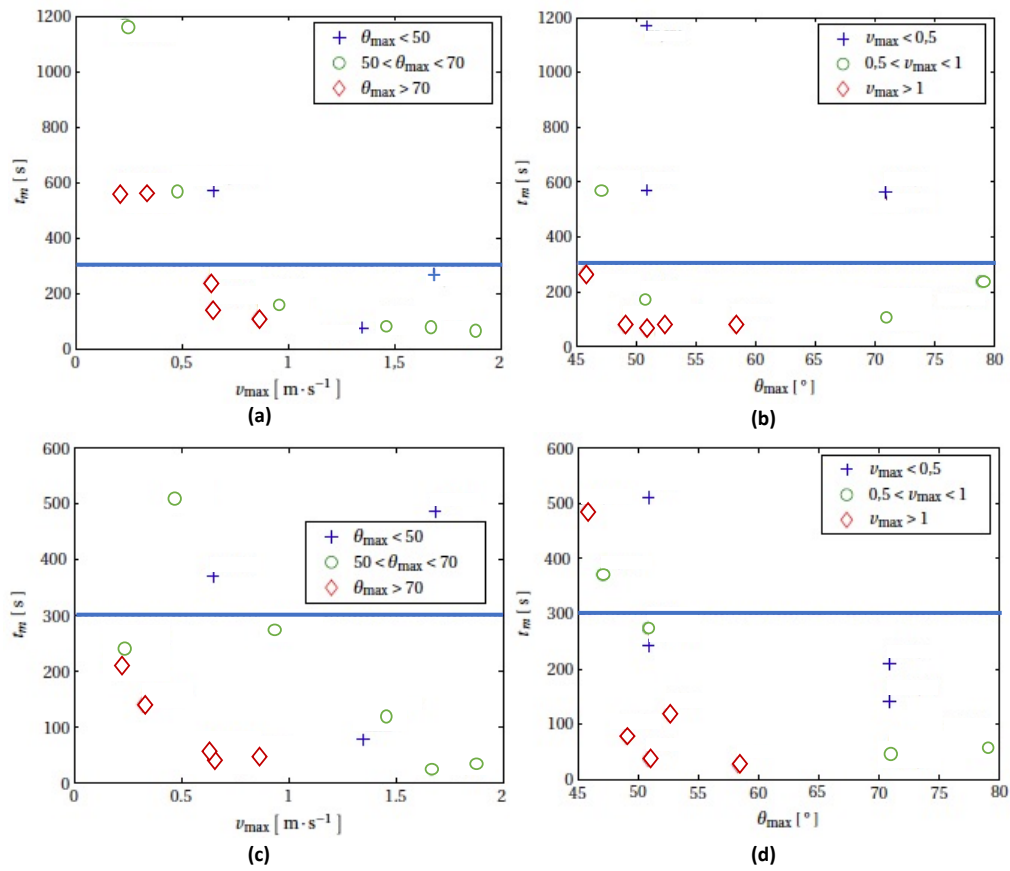


Figure 19 - Temps de mélange en fonction de la vitesse linéaire de bout de pale maximale et de l'angle d'attaque maximal des pales pour les mélanges couscous/semoule (a) et (b) respectivement et les mélanges couscous/lactose (c) et (d) respectivement

L'écoulement d'un milieu granulaire ensilé, ou semi-confiné, au passage d'une pale a été étudié par Sandra Mandato (Mandato et al., 2012) pour un milieu granulaire à écoulement libre constitué de semoule ($d_{50}=250\text{ }\mu\text{m}$) ou de billes de verres ($d_{50}=1000\text{ à }2000\text{ }\mu\text{m}$). Dans les expériences, la contrainte exercée par le milieu sur la pale en mouvement ascendant a été enregistrée en fonction de la profondeur dans le lit de poudre. Au-delà d'une profondeur caractéristique de la poudre, dans laquelle la contrainte normale est saturée, la remontée de la pale intensifie les contraintes en amont, les chaînes de force se chargent jusqu'à atteindre un seuil puis se rompent, une relaxation de la contrainte est alors enregistrée. C'est du moins le cas si le nombre d'inertie I au niveau des grains, que l'on peut définir comme le rapport entre la vitesse de sollicitation v_p et la vitesse de relaxation des grains $\sqrt{gd_p}$ (équation (4)) est grand. Lorsque la rupture est atteinte, le milieu s'effondre en avalanches en arrière de la pale. Un signal périodique est enregistré. Si en revanche I est petit, le milieu granulaire se réarrange « en continu » au passage de la pale et la contrainte enregistrée est plus faible, c'est un régime frictionnel. Proche de la surface libre le réseau de contact n'est pas suffisant pour résister à l'avancement de la pale, quelle que soit la valeur de I . On observe alors des rouleaux de convection, l'écoulement se rapproche d'un régime collisionnel.

$$I = \frac{v_p}{\sqrt{gd_p}} \quad (4)$$

Les conditions d'écoulement dans le mélangeur Triaxe sont d'autant plus difficiles à décrire que la cuve du mélangeur est opaque. Le volume utile de la cuve représentant 80% de sa capacité, les pales sont principalement immergées, la surface libre est faible. Aussi, l'analogie est incertaine mais les mécanismes en jeu sont à rapprocher des écoulements observés en milieu ensilé. La vitesse maximale de bout de pales, dans les 14 combinaisons de vitesse étudiées est comprise dans l'intervalle $[0,21 ; 1,87]\text{ m.s}^{-1}$, le nombre d'inertie, calculé avec cette vitesse maximale, pour un milieu constitué de couscous serait de l'ordre de la dizaine (Tableau 2), en revanche, dans les mélanges constitués à 79% de semoule, les grains de semoule étant largement majoritaires dans le mélange, I peut être calculé avec le diamètre des grains de semoule et varie entre 3,5 et 31. Les avalanches décrites en arrière des pales seraient alors impliquées dans le mélange et celui-ci est atteint d'autant plus vite que la vitesse linéaire est grande, et donc que ce phénomène est important. Notons que ces avalanches sont sans doute aussi le siège de ségrégation, ce qui explique l'allure des courbes cinétiques que nous observons dans les premiers temps (Figure 17).

Tableau 2 - Vitesse de relaxation des grains de couscous et de semoule

	$d_p\text{ (}\mu\text{m)}$	$\sqrt{gd_p}\text{ (m/s)}$
Couscous	1400	0,12
Semoule	340	0,06

Pour les mélanges couscous/lactose, plus cohésifs, c'est l'angle d'attaque qui semble être déterminant. Les phénomènes d'avalanche décrits précédemment sont perturbés du fait que la poudre est cohésive et que, compactée par le passage d'une pale, elle supporte plus de contraintes sans s'effondrer. On peut supposer que les pales découpent des blocs de poudre à leur passage et convoient ainsi la poudre. Pour illustration de ce phénomène, la Figure 20 représente un bloc de lactose transporté par une pale droite (pour une agitation en surface).

Dans ce cas, ce n'est pas la vitesse qui est importante mais la quantité de poudre déplacée. L'établissement des cinétiques de mélange permet ainsi de dégager quelques tendances sur les conditions optimales à mettre en œuvre pour réduire les temps de mélanges de systèmes granulaires différents, montrant que la versatilité des mélangeurs est un atout pour s'adapter à la diversité des produits. Il apparaît aussi clairement que ces phénomènes doivent être explorés à plus faible échelle, dans une géométrie simplifiée, comme celle de la Figure 20.



Figure 20 – Visualisation de l'écoulement de poudres sur une pale droite en rotation autour d'un axe horizontal : semoule (gauche) et lactose (droite) agités par une pale non-inclinée

Étude dynamique d'un mélangeur à tambour

Le mélangeur Turbula® est couramment utilisé dans les laboratoires de recherche et l'industrie, pour homogénéiser ou mélanger tous types de poudres. Son système d'entraînement engendre un mouvement tridimensionnel qui se rapproche d'un mouvement chaotique (Hon-Cheung, 1980), (Wohlhart, 1981). C'est une amélioration considérable par rapport aux tambours classiques qui génèrent des mouvements systématiques et sont généralement employés uniquement pour des poudres à écoulement libre alors qu'ils sont le siège de mécanismes de ségrégation importants. Marigo et al. (Marigo et al., 2012) ont simulé l'homogénéisation de billes lisses et sphériques dans le Turbula 21 à partir d'un modèle DEM. Les résultats qu'ils ont obtenus montrent que les conditions optimales de mélange y sont difficiles à déterminer. Trois vitesses d'entraînement de la cuve ont été simulées (23, 46 et 67 tr/min) et l'homogénéité obtenue est moins bonne à 46 tr/min qu'aux deux autres vitesses. Ce résultat a été attribué à l'existence de régimes d'écoulements et de mécanismes de mélange différents en fonction des vitesses d'agitation. Le modèle, confronté à des expériences de tracking de particules radioactives (Marigo et al., 2013) permettra de conclure à l'existence de deux régimes en fonction des vitesses de rotation. Un régime de roulement dominé par les forces de gravité est identifié, par analogie avec les régimes mis en évidence en mélangeur à tambour simple, pour 23 tr/min. Un régime inertiel est identifié pour des vitesses d'entraînement supérieures à 67 tr/min. A la vitesse de 46 tr/min le régime est dit intermédiaire.

Dans le cadre de la thèse de Claire Mayer (Mayer-Laigle, 2012), nous nous sommes intéressés à la description du mouvement de la cuve, modélisé avec le logiciel de CAO Solidworks®, pour le mettre en relation avec les mécanismes de mélange et de ségrégation qui pouvaient en découler. Le nombre de Froude est calculé pour un point situé au centre du fond de la cuve (Figure 21) par le ratio accélération inertielle maximale/accélération de la pesanteur.

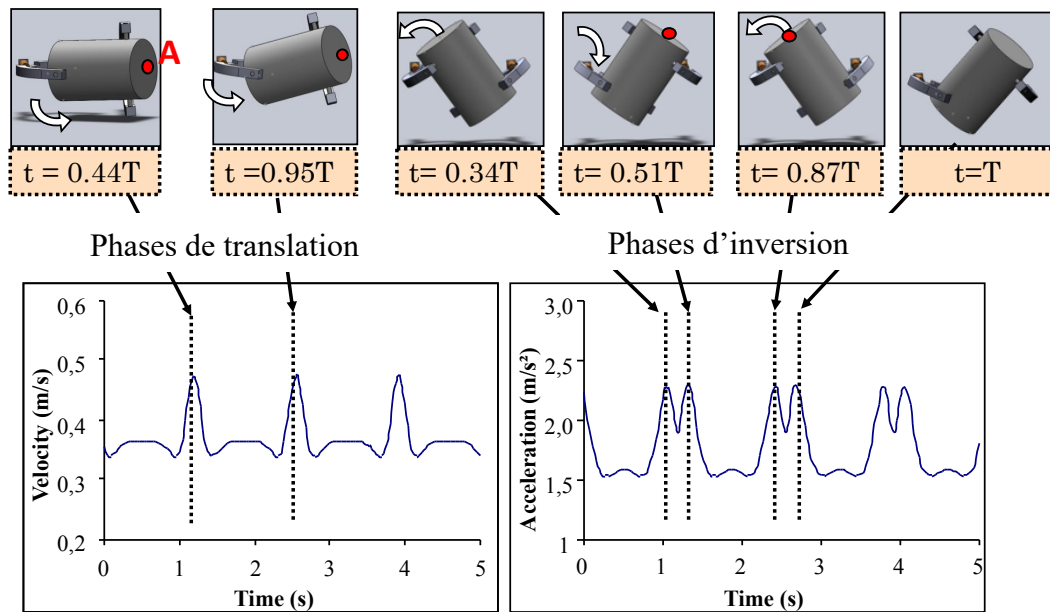


Figure 21 - Profils de vitesse (gauche) et d'accélération (droite) au cours d'une période T pour le point A situé au centre d'une face de la cuve, vitesse d'entraînement 22 tr/min.

On peut identifier des régimes d'écoulements par analogie avec les travaux de Mellmann en mélangeur à tambour simple (Mellmann, 2001). Pour des vitesses d'entraînement de 22 à 96 tr/min et à un remplissage de 50% du mélangeur, les régimes de cascade, cataracte et centrifugation sont observés (voir Figure 22). Le régime de cascade est dominé par les avalanches et donc les forces de gravité, on l'observe tant que Froude est inférieur à 1, c'est-à-dire pour 22 et 32 tr/min, c'est le régime qui est le plus favorable au mélange. A 46 tr/min, Froude est égal à 1, c'est le régime transitoire décrit par Marigo et al, la poudre entraînée par les forces centrifuges induites par la rotation de la cuve est éjectée et retombe en cataracte. Lorsque Froude est supérieur à 2,5 les forces centrifuges deviennent prépondérantes et à très fortes vitesses la poudre ne retombe plus.

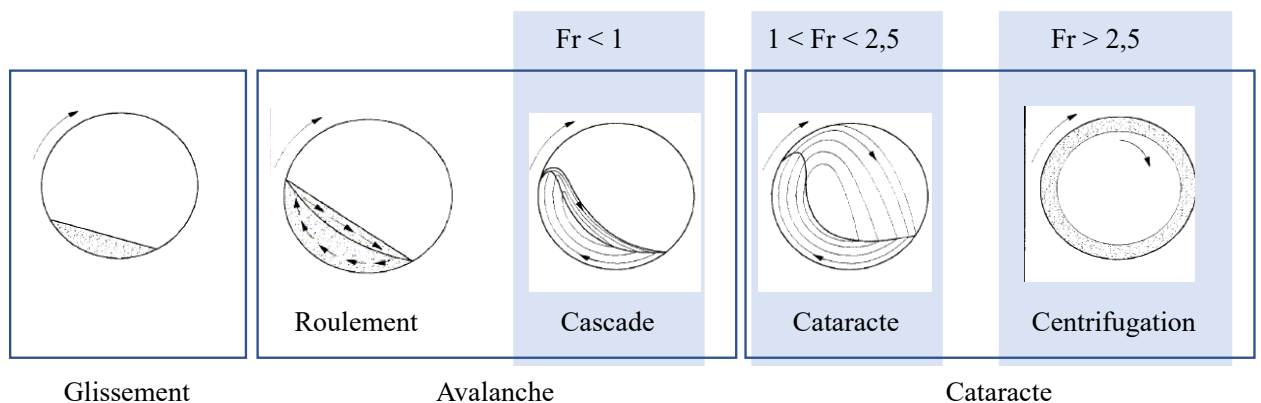


Figure 22 - Régimes d'écoulement en tambour simple et correspondance pour le mélangeur Turbula rempli de poudre à 50% en volume (cadres grisés).

Le système granulaire étudié est un mélange de 15% massique de couscous fin et de 85% de lactose, qui présente une aptitude moyenne à l'écoulement (Indice de Carr 25%, rapport d'Hausner 1,32) tout en restant sujet à la ségrégation du fait de la différence des tailles des particules de couscous ($d_{50}=1000 \mu\text{m}$) et de lactose ($d_{50}=65 \mu\text{m}$). Les résultats de cette étude sont publiés dans (Mayer-Laigle et al., 2015). Des cinétiques de mélange ont été

obtenues par des mesures d'homogénéité en vidange du mélangeur sur une bande transporteuse et analyse d'image, selon le protocole mis en place par Jean-François Demeyre. L'indicateur d'homogénéité choisi pour l'intensité de ségrégation est le coefficient de variation CV. L'échantillonnage est exhaustif et l'échelle d'observation est de 0,6g. L'échantillonnage exhaustif a permis en outre d'établir des autocorrélogrammes pour étudier l'échelle de ségrégation, représentée par r_0 . Les résultats sont présentés sur la Figure 23 en fonction du nombre de tours plutôt que du temps afin de distinguer les aspects cinétiques et dynamiques, pour mettre en évidence des régimes de mélange liés aux mécanismes.

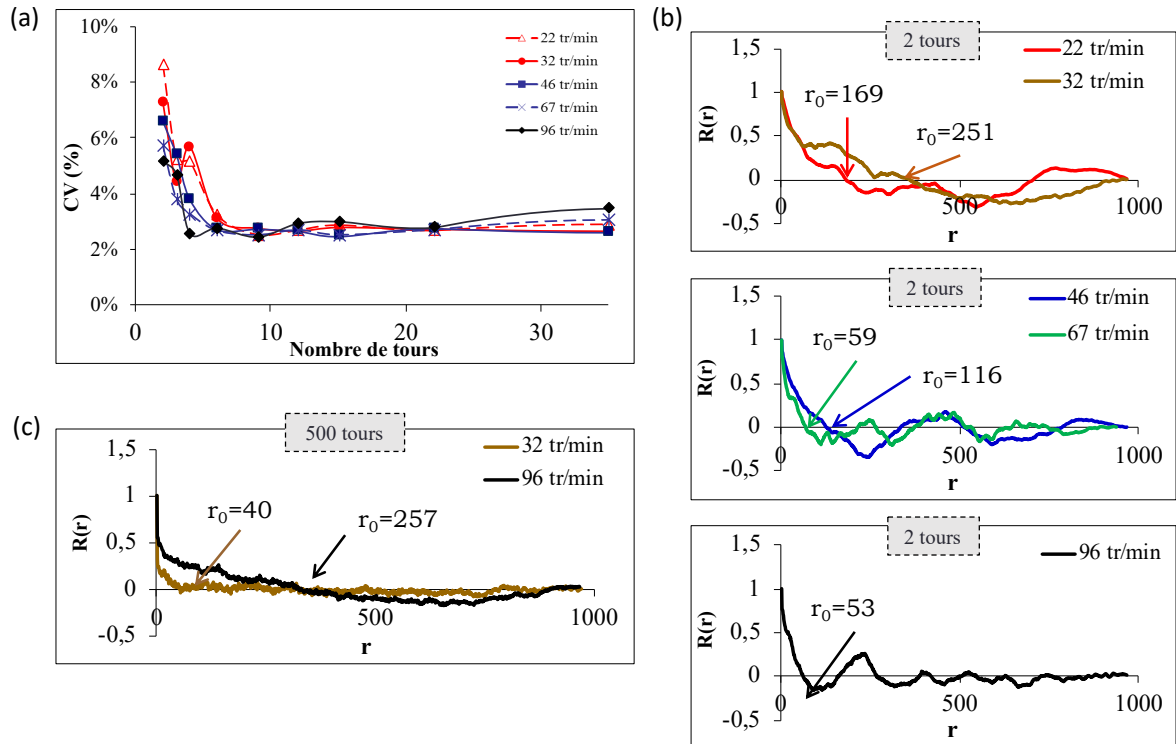


Figure 23 - Mélange en Turbula 2l, couscous fin (15%) et lactose (85%) à plusieurs vitesses d'entraînement (22, 32, 46, 67 et 96 tr/min) (a) intensité de ségrégation en fonction du nombre de tours (b) échelle de ségrégation à 2 tours (c) échelle de ségrégation à 500 tours

En régime de cascade, des mécanismes de mélange et de ségrégation à grande échelle coexistent dans les premiers tours, comme le montrent les oscillations des courbes sur la Figure 23 (a). A deux tours, l'échelle de ségrégation est encore importante Figure 23 (b). La réduction de l'échelle et de l'intensité de ségrégation est progressive, on n'observe pas de ségrégation aux temps longs. En régime de cataracte, le mélange convectif lié à la chute des particules compense les mécanismes de ségrégation par trajectoire qui peuvent se mettre en place, l'intensité et l'échelle de ségrégation diminuent plus « rapidement ». En revanche on peut observer aux temps longs un phénomène de ségrégation Figure 23 (c). En régime centrifuge les mécanismes convectifs liés aux avalanches et chute de particule ont moins d'importance et le mélange intime s'effectue par diffusion liée aux petits mouvements vibratoires de la poudre qui reste proche des parois du fait de l'accélération centrifuge. L'échelle de ségrégation est faible à deux tours mais finalement aux temps longs ces mouvements provoquent un phénomène local de ségrégation de type percolatif. En réalité, ces deux mécanismes agissant à petite échelle sont identiques. Ceci a été confirmé récemment par une étude des mécanismes de ségrégation par la taille menée pour des billes

de verre de tailles bi-disperses, dans un mélangeur à tambour (Yari et al., 2020). En fonction du ratio entre les tailles de particules, des mécanismes différents sont impliqués. Un ratio de tailles permettant la ségrégation par percolation des fines mène à optimiser l'homogénéité globale du mélange. Bien que souvent associée à la ségrégation, la percolation des fines particules dans les interstices du lit de poudre est aussi un mécanisme de mélange. Sur un mélange ségrégué, la percolation des fines particules dans les interstices du lit de poudre favorise le mélange à petite échelle, alors que sur un mélange homogène ce mécanisme mène à de la ségrégation.

Les hypothèses relatives aux mécanismes qui prennent place dans le mélangeur Turbula en fonction des régimes d'agitation sont synthétisées dans Tableau 3. Dans un régime donné, les mouvements imposés par le mélangeur induisent des écoulements qui provoquent mélange et ségrégation, si ce n'est mélange ou ségrégation, en fonction de l'état d'homogénéité de la poudre. Outre le fait que l'on doit en conclure qu'il n'est pas forcément pertinent d'imposer des temps de mélange longs pour homogénéiser une poudre cela montre clairement l'importance de la formulation des produits et de pré-mélanges éventuels, voire de l'ordre d'introduction des ingrédients dans la cuve. Ce dernier point a été mis en évidence par les simulations et les expériences de tracking de (Marigo et al., 2013).

Tableau 3 - Mécanismes de mélange et de ségrégation présumés dans le Turbula 2l pour un mélange de couscous fin (15%) et lactose (85%)

Régime d'écoulement	Vitesse d'entraînement	Froude	Temps courts	Temps longs
cascade	22 tr/min 32 tr/min	0,2 0,5	Mélange par convection et ségrégation par écoulement en surface libre	Pas de ségrégation aux temps longs
cataracte	46 tr/min 67 tr/min	1 2,2	Mélange convectif plus important et ségrégation par trajectoire	Équilibre mélange convectif-ségrégation
centrifuge	96 tr/min	4,5	Mélange diffusionnel	Ségrégation par percolation

c. Discussion

Les trois études présentées dans cette partie révèlent que la dynamique imposée par le système d'agitation (agitateur et cuve) est pertinente pour définir des régimes de fonctionnement, à l'intérieur desquels des mécanismes de mélange et de ségrégation prennent place, menant à des degrés d'homogénéité différents. Nous avons soulevé l'importance de la formulation des mélanges mais aussi des propriétés intrinsèques des poudres pour expliquer les phénomènes rencontrés. L'homogénéité des mélanges résulte de mécanismes de mélange et de ségrégation induits par les conditions opératoires du procédé mais sont liés aux propriétés d'écoulement des poudres. Pour décrire ces phénomènes il est alors indispensable de les explorer à une échelle plus fine que l'échelle du système, celle de la poudre ou des particules.

Pour aborder la qualité des mélanges on parle généralement de leur homogénéité macroscopique : intensité ou échelle de ségrégation, ... quid de leur microstructure ? La Figure 24 représente une poudre en sortie d'une opération de mélange. Dans le premier cas (a) un mélange intime des particules a été obtenu, la poudre est structurée à l'échelle des particules, ou microstructurée par abus de langage (c'est le cas de certains mélanges dits

ordonnés), des interactions entre les particules (ici l'adhésion des plus fines sur les plus grosses) assurent une robustesse au mélange. Dans le second cas (b) le mélange peut être satisfaisant à l'échelle des prélèvements mais pas stable vis à vis des opérations de traitement ultérieures, la poudre est potentiellement sujette à ségrégation. La microstructure des mélanges, ou mélange à l'échelle des particules, peut déterminer leur processabilité ou leurs qualités d'usage : la robustesse du mélange ou tout simplement son aptitude à l'écoulement dépendent de la structure du mélange à petite échelle. Pour faire un parallèle avec l'état de micromélange pour les liquides qui est obtenu grâce au processus de transfert diffusif, cet état microstructuré est atteint si des mécanismes à petite échelle peuvent se développer au cours du mélange, comme la percolation.

On pourrait imaginer travailler sur des échantillons de petite taille pour accéder à ces échelles mais, outre le fait que cela est difficilement faisable avec les moyens de prélèvement ou d'analyse en ligne usuels, cela n'aurait pas de sens d'un point de vue de leur usage et mènerait de surcroît à l'affichage d'une homogénéité inacceptable (l'homogénéité observée dépend de l'échelle d'observation). C'est la limite de l'analyse du coefficient de variation en tant qu'indice de qualité.

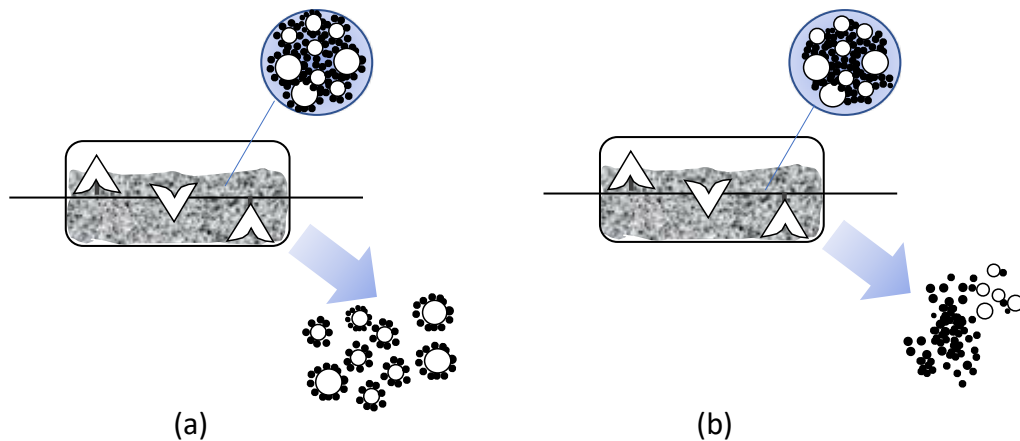


Figure 24 – Poudre après vidange pour deux mélanges de même homogénéité macroscopique mais de microstructures différentes (a) un mélange ordonné (b) un mélange non ordonné

Ce dilemme qui se pose sur le choix de l'échelle d'observation est inhérent aux indices de mélange basés sur la variance. Bhalode et Ierapetritou (Bhalode and Ierapetritou, 2020) proposent une revue complète des indices de mélanges utilisés pour les poudres, ainsi que les situations dans lesquelles ils ont été étudiés et les contraintes qui limitent leur utilisation. Deux autres types d'indices de mélange sont présentés en alternative à ces indices macroscopiques :

- des indices basés sur les contacts : il s'agit de différencier les contacts entre particules du même type ou d'ingrédients différents, ces indices ne peuvent donc pas être employés si la poudre est fluidisée ou agglomérée durant l'opération de mélange ;
- des indices basés sur les distances : les particules sont localisées et leur trajectoires suivies au cours du temps, un des indices cités dans l'article est par exemple lié au suivi de la distance entre deux particules.

Ces indices, donnant une indication du degré de mélange à l'échelle des particules, ne sont accessibles qu'à partir de simulations basées sur les modèles DEM et donc difficiles à exploiter expérimentalement.

Les enjeux scientifiques associés à la détermination de l'état d'un mélange à une échelle pertinente se situent à deux échelles :

- A l'échelle mésoscopique : déterminer l'échelle à laquelle le niveau d'homogénéité attendu (par exemple $CV=6\%$) est pertinent, qui correspondrait à une échelle d'acceptation d'un mélange
- A l'échelle microscopique : déterminer l'échelle spatiale à laquelle on peut étudier les processus responsables du micromélange et en déduire un temps caractéristique de micromélange, en référence aux études menées dans les liquides (Midoux Noël, 1985), micromélange et échelle de Kolmogorov, chapitre 11).

Le premier point sera abordé dans la thèse de Martin Giraud, qui constitue une perspective à court terme aux travaux présentés dans ce mémoire.

Le second point est plus prospectif. Dans un liquide, l'échelle de Kolmogorov est la taille des plus petits tourbillons présents dans un écoulement turbulent. C'est la plus petite échelle à laquelle l'énergie apportée au système est dissipée. En dessous de cette échelle, c'est la diffusion spontanée qui permet l'homogénéisation des molécules. Le temps caractéristique de micromélange lors d'une opération dans un liquide est ainsi approché par le carré de l'échelle de Kolmogorov (exprimée en m) divisé par le coefficient de diffusion de l'élément considéré dans le liquide (exprimé en m^2/s). Dans une poudre, l'agitation macroscopique imposée par le système d'agitation se traduit par des mouvements collectifs de particules sous l'action de la convection ou du cisaillement, à plus ou moins grande échelle en fonction des propriétés de la poudre. Cette agitation est complétée par les mouvements spontanés des particules, sous l'action de la gravité, comme par exemple la percolation des fines particules ou certains mécanismes de ségrégation par la taille (ou la masse volumique). Si l'on peut oser une analogie entre ces deux systèmes, la question est alors d'estimer la plus petite échelle de dissipation dans le milieu granulaire.

2.2 Mise en œuvre des chaînes de Markov pour la conduite des mélangeurs

En l'absence de modèles réellement prédictifs et applicables à pleine échelle, la conception, les transferts d'échelles et l'optimisation du pilotage des mélangeurs de poudre nécessitent des expérimentations si lourdes que peu d'avancées ont été réalisées au cours de ces dernières années. Les modèles lagrangiens, dont les modèles DEM, permettent de prendre en considération la physique pour améliorer la compréhension des processus mais, outre les temps calculs liés au nombre des particules à considérer dans un mélangeur de taille industrielle, c'est la disparité des propriétés des particules qui pose peut-être les problèmes les plus importants, le premier étant d'être capable de les mesurer expérimentalement. En alternative intéressante à cette approche « microscopique » se posent les modèles eulériens pour lesquels les propriétés des particules, et de la poudre, sont moyennées dans un espace fini, dont l'échelle se rapproche de l'échelle des équipements, le temps calcul n'est alors plus un problème. Les phénomènes microscopiques sont décrits à l'échelle méso voire macroscopique et deviennent un coefficient de dispersion ou une probabilité de transition, on parle alors de méthode stochastique. C'est naturellement vers ce type de méthode que nous nous sommes tournés pour mener les études systémiques de mélange des poudres.

La notion de chaîne a été introduite en 1902 par Andrei Markov. C'est une forme simplifiée de processus markovien, pour un espace d'états fini, la résolution du modèle passe par des calculs matriciels. Une chaîne de Markov modélise l'évolution d'un système représenté par un jeu de propriétés. Lorsque l'on modélise le broyage ou l'agglomération, le

système peut être une particule, le jeu de propriétés est alors un ensemble de tailles auquel la particule peut appartenir. On parle alors d'état pour désigner la taille de la particule à un instant donné. L'espace d'états est fini si on divise l'espace des tailles en classes X_i , par exemple pour m classes de tailles, l'ensemble des classes X_i ($i=1,m$) est représenté par le vecteur d'états $S(n)$ (équation (5)) :

$$S(n) = \begin{pmatrix} X_1(n) \\ \vdots \\ X_m(n) \end{pmatrix} \quad (5)$$

Le temps est discrétisé sous la forme de transitions. A la transition n , la particule a une probabilité p_{ji} de passer d'un état $X_i(n+1)$ à un état $X_j(n+1)$, qui ne dépend que de $S(n)$ et pas des états précédents. Le système n'a pas de « mémoire ». Si les probabilités sont regroupées dans une matrice $P(n)$ alors $S(n+1)$ s'écrit (équation (6)) :

$$S(n+1) = P(n) * S(n) \quad (6)$$

Si les probabilités sont indépendantes de n , la chaîne est dite homogène (équation (7)) :

$$S(n+1) = P^n * S(0) \quad (7)$$

Une chaîne non-homogène peut être linéaire si les probabilités dépendent de la transition mais pas du vecteur d'état. Si en revanche les probabilités dépendent du vecteur d'état, c'est-à-dire si $P(n) = P(S(n))$ alors la chaîne est dite non linéaire.

L'utilisation de chaînes de Markov pour les écoulements granulaires a été introduite dans les années 70 (Inoue and Yamaguchi, 1970) et depuis appliquée à de nombreux procédés mettant en œuvre des milieux granulaires tels que la fluidisation, la classification, la sédimentation, la filtration ou le broyage (Berthiaux and Mizonov, 2004) (Berthiaux et al., 2005). Les états correspondent dans ce cas à une discrétisation de l'espace. La poudre se déplace d'un état à un autre au cours d'une transition, en fonction du système d'agitation ou de transport. Les états sont alors représentés par la quantité de matière qu'ils contiennent. Les transitions sont calculées en fonction d'un temps caractéristique, comme le temps pour effectuer un tour pour une cuve ou un mobile d'agitation.

On nomme probabilité de transition la probabilité qu'une quantité de matière passe d'une cellule à une autre à chaque pas de temps. Les principaux avantages et inconvénients de cette approche pour les milieux granulaires, ou les poudres sont que :

- Les flux, ou probabilités de transition, sont identifiés à partir d'expériences. Cela pallie le manque de connaissances sur les écoulements de poudres dans les procédés mais nécessite un travail expérimental qui peut s'avérer fastidieux et les modèles ainsi développés restent peu extrapolables à des conditions expérimentales différentes de celles qui ont servi à identifier les paramètres (changement de poudre, par exemple).
- Il est possible de traiter rapidement un grand nombre de particules.

Associées à des expériences de traçage, les chaînes de Markov permettent de décrire les écoulements au travers de la simulation des Distributions de temps de Séjours. Par exemple, pour étudier l'effet des paramètres d'agitation sur la dynamique des écoulements à l'intérieur d'un mélangeur. C'est le travail qui a été accompli par Khadija Marikh (Marikh et al., 2006) sur le mélangeur Gericke GCM500®. Des expérimentations de traçage ont été réalisées avec de la semoule ($d_{50}=340 \mu m$) et du couscous ($d_{50}=1400 \mu m$), dont les traceurs

sont simplement les mêmes produits colorés en noir par absorption d'iode. Chacun des produits est tracé seul ou dans un mélange à 50% massique. Les DTS sont reconstituées à partir des expériences. Un premier modèle pour un écoulement en 1-D, avec rétro-mélange, a permis d'introduire un coefficient de recirculation de l'écoulement R , à partir duquel sont exprimées toutes les probabilités de transition. R peut être ajusté pour retrouver les DTS, en fonction des débits d'alimentation et de la vitesse d'agitation, pour tous les systèmes particuliers étudiés. Un modèle 2-D a été développé, introduisant un coefficient de mélange radial, qui permet de retrouver les DTS particulières observées expérimentalement dans les situations de débit élevé pour le couscous. Ainsi, la modélisation à partir de chaînes de Markov a montré sa capacité à simuler l'écoulement dans le mélangeur en régime permanent, pour deux systèmes granulaires différents, ainsi que leur mélange, sous différentes conditions d'agitation. C'est un premier pas vers la modélisation des opérations de mélange.

Pour modéliser une opération de mélange, la cuve est découpée en m cellules considérées homogènes en composition, appelées états, les flux de matière entre les cellules sont représentés par des probabilités de transition. Il est possible de modéliser un mélange de k constituants par k chaînes. A chaque transition on recalcule alors la composition de chaque cellule. On peut approcher l'homogénéité de l'ensemble des états par la variance des compositions de chaque cellule. La taille des cellules représente alors l'échelle d'observation. C'est l'objectif que nous nous sommes fixés.

L'inconvénient de ces méthodes réside dans le fait que l'on perd les notions de physique qui permettraient de rendre les études réellement généralisables, transposables et prédictives. Dans ce qui suit, je m'attacherai à montrer que finalement, pour les modèles développés, la physique des situations est englobée dans un ou plusieurs paramètres qui sont identifiables au moyen d'un nombre relativement limité d'expérimentations. En ce sens, ils peuvent être considérés comme une aide précieuse à l'étude et à conception des mélangeurs.

a. Mélangeurs statiques

Les mélangeurs statiques sont couramment utilisés en ligne pour effectuer des pré-mélanges ou une homogénéisation au sein des liquides entre deux opérations unitaires. Ils présentent l'intérêt de ne pas comporter d'éléments en rotation, souvent sources de multiplication des opérations de maintenance. Peu utilisés dans le domaine des poudres car sujet à l'encrassement et sources de blocages d'écoulement, ils ont pourtant un rôle intéressant à jouer, disposés sur un écoulement gravitaire, pour participer à l'homogénéisation de la poudre sans dépense énergétique ajoutée.

Les mélangeurs qui ont fait l'objet de la thèse de Denis Ponomarev (Ponomarev, 2006) sont d'une part un mélangeur Sultz® Chemtech 4571 utilisé classiquement pour des fluides, des suspensions ou des solides ainsi qu'un mélangeur statique à retournement SysMix. Ce dernier mélangeur est en rotation alternative autour d'un axe horizontal : après une rotation de 180° le mélangeur est stoppé et la poudre s'écoule au travers des éléments qui le garnissent. La principale différence avec un mélangeur à retournement ou un mélangeur à tambour est que la rotation n'est pas « continue ». Son fonctionnement peut néanmoins donner des indications sur ce que pourrait être un mélangeur à retournement comportant des inserts.

Des modèles de mélange à base de chaînes de Markov homogènes et linéaires 1-D pour les deux mélangeurs et 2-D pour le SysMix ont pu être développés en collaboration avec l'institut d'Ivanovo en Russie.

L'influence des probabilités de transition p_A et p_B pour deux constituants ainsi que de la position initiale des constituants à mélanger sont étudiées au travers de simulations. En 1-D des simulations ont été réalisées en considérant plusieurs passages de la poudre dans le mélangeur, soit en simulant plusieurs passages consécutifs comme si la poudre traversait plusieurs mélangeurs, soit en simulant un mode « retournement ». Pour les mélanges ségrégants, le mélangeur à simple passage présente un optimum à 4 passage. Pour un nombre de passages plus important les effets de ségrégation s'établissent, alors que ce n'est pas le cas dans le mélangeur à retournement alternatif qui offre alors de meilleures performances (voir Figure 25). Il est également intéressant de noter que, à nombre de passage égal, la variance est nettement plus faible dans le cas d'un mélange ségrégant, du moins dans les 6 premiers passages. Le mécanisme de ségrégation verticale s'exerce ainsi comme un mécanisme de mélange diffusif dans les premiers temps du mélange.

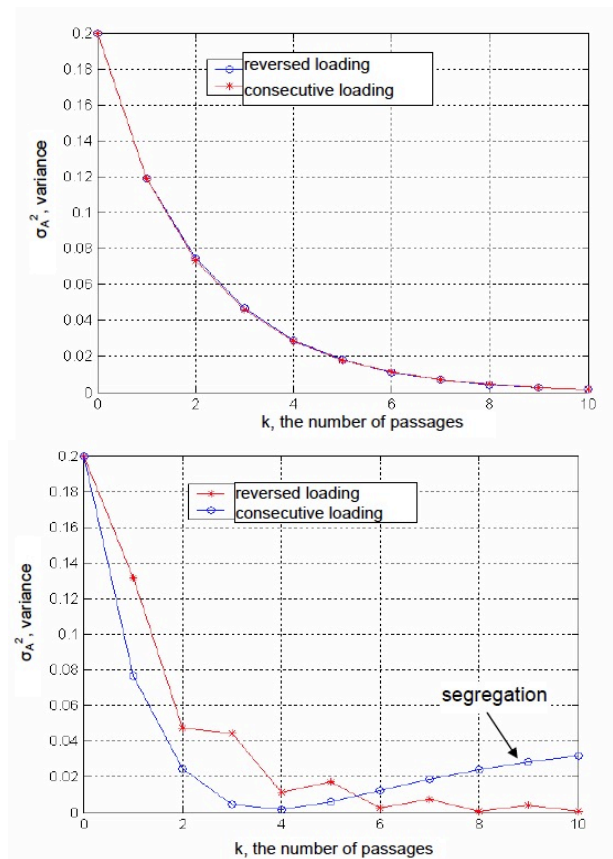


Figure 25 - Variance des compositions dans les différentes cellules du mélangeur en fonction du nombre de passages consécutifs ou après renversement (a) mélange non ségrégant $p_A=p_B=0.92$ (b) mélange ségrégant $p_A=0.88$ $p_B=0.92$

Un modèle 2-D est développé pour prendre en considération le mélange transversal dans le mélangeur à retournement SysMix. L'influence de la disposition des constituants en fonction de leurs propriétés physiques (représentées par des probabilités de transition verticales différentes s'il y a un contraste de masses volumiques) a été étudiée par des simulations. Dans le cas de particules ségrégantes, le remplissage initial le plus efficace est de disposer les deux poudres en couches horizontales, la poudre ayant la plus grande masse volumique au-dessus. Un optimum d'homogénéité est dans ce cas obtenu pour deux retournements.

Des expériences menées dans ces deux mélangeurs avec des poudres à écoulement libre de tailles et de masses volumiques différentes ont permis d'identifier les probabilités

de transitions des deux constituants du mélange, y compris dans le cas de mélanges ségrégants. Pour le modèle 2-D, seule la ségrégation verticale a pu être prise en considération. Les résultats expérimentaux montrent la pertinence des modèles développés.

Les modèles employés permettent d'étudier des configurations de mélange originales et de dériver des bonnes pratiques, notamment pour le remplissage des mélangeurs. Lier les propriétés des particules (taille, masse volumique, angle de frottement interne ou d'avalanche) aux probabilités de transition serait intéressant pour déterminer des conditions d'utilisation optimales de tels mélangeurs, notamment pour ce qui concerne la configuration en plusieurs passages. En effet, le mécanisme de ségrégation peut participer pleinement au mélange ... dans la limite d'un nombre de passages ou de rotations qu'il serait intéressant de prévoir.

b. Écoulement et homogénéisation en mélangeur continu

A l'échelle industrielle, le mélange en continu n'est pas toujours opéré en régime permanent, il est sujet à des phases d'arrêt et de démarrage, de modifications de débits, pour de multiples raisons, comme par exemple lors du remplissage des trémies d'alimentation. Ces phases transitoires ont une influence considérable sur la masse retenue dans le mélangeur, le débit de sortie et finalement la qualité du mélange obtenu, menant à rejeter une partie de la production (Ammarcha et al., 2017). Il est possible de réduire ces pertes en ajustant certains paramètres opératoires. Par exemple, nous avons montré qu'augmenter la vitesse d'agitation en phase de démarrage de l'opération permet de réduire la durée du régime transitoire. Ainsi, augmenter la vitesse d'agitation lors d'un changement de débit pourrait s'avérer pertinent pour réduire les pertes de production associées ... mais qu'en est-il lorsque, cette phase de démarrage passée, la vitesse d'agitation est ramenée à sa valeur nominale ? Des expériences montrent que la diminution de la vitesse d'agitation provoque une perte d'homogénéité (Figure 26) et que cette stratégie n'est pas pertinente.

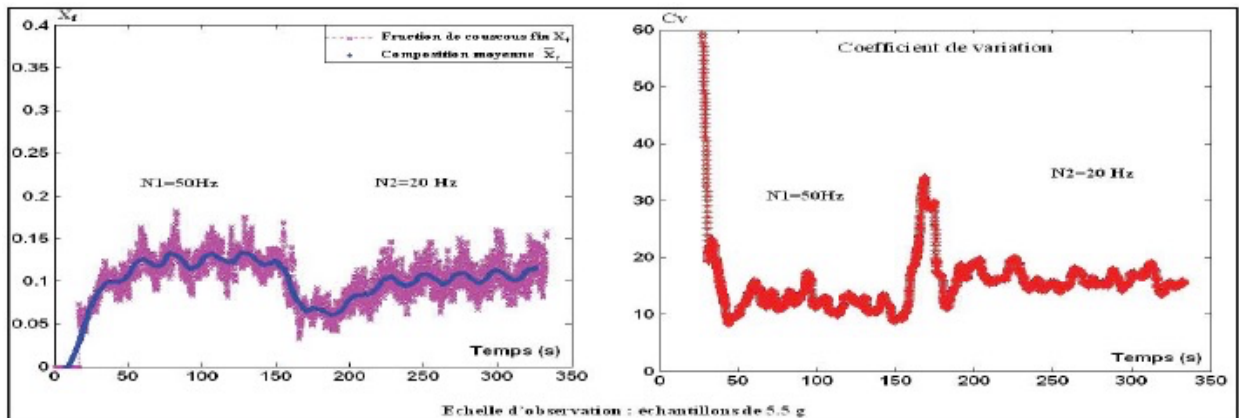


Figure 26 - Résultats d'expériences, effet d'un échelon négatif de vitesse d'agitation de 50 Hz à 20 Hz sur l'homogénéité d'un mélange contenant 12,5% de couscous fin ; débit total 40 kg.h⁻¹, échelle d'observation 5,5g

Établir un modèle d'écoulement et de mélange, couvrant les phases transitoires et le régime permanent est alors, en première instance, un moyen d'explorer ces questions tout en limitant les expérimentations dans le pilote. Un premier modèle basé sur une chaîne de Markov macroscopique à deux cellules (le contenu du mélangeur et la zone de sortie) a permis de simuler la masse retenue et le débit de sortie pour du couscous moyen ($d_{50}=1400 \mu\text{m}$). En régime établi, cela peut se faire par une chaîne homogène, en revanche, dans les phases transitoires, si la masse retenue n'est pas à sa valeur nominale compte-tenu du débit

d'entrée et de la vitesse d'agitation, la matrice de transition est modifiée à chaque pas, le recours à une chaîne non-homogène est nécessaire (Ammarcha et al., 2012). La vitesse d'agitation, ainsi que la géométrie du dispositif d'agitation, sont incluses dans le modèle sous forme de corrélations entre le débit, la masse retenue et la vitesse d'agitation. Les paramètres de ces corrélations ont été identifiés à partir d'expériences indépendantes des situations simulées. Une attention particulière a été portée à la modélisation du régime transitoire en vidange du mélangeur (Ammarcha et al., 2013). Cette situation se retrouve lorsque l'alimentation est coupée momentanément, par exemple lors du remplissage des trémies de dosage pondéral dont le fonctionnement est perturbé pendant cette opération et qu'il est préférable de mettre en arrêt. Le modèle établi permet de simuler le débit de sortie de façon satisfaisante. Sans alimentation, le débit de sortie diminue, un échelon positif de vitesse d'agitation permet de le ramener à une valeur plus élevée (Figure 27, à lire de droite à gauche).

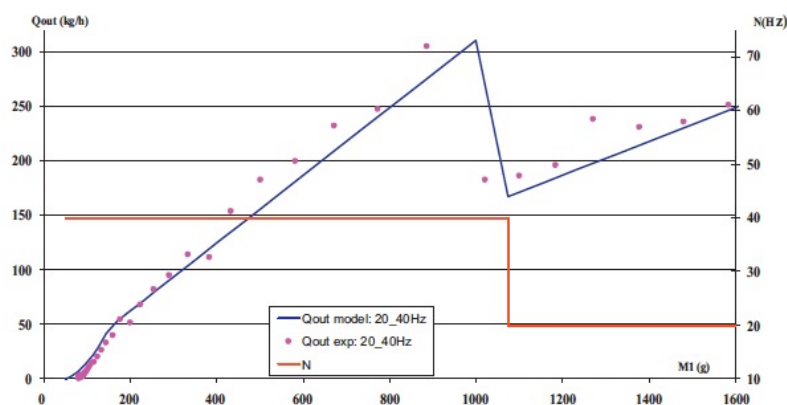


Figure 27 - Débit de sortie en fonction de la masse retenue dans le mélangeur, M_1 , lors d'un échelon positif de vitesse d'agitation (de 20 Hz à 150 Hz)

Comme l'a montré l'étude de l'homogénéité en ligne à la sortie du mélangeur, pour des mélanges de couscous fin et de couscous moyen, l'homogénéité finale résulte de mécanismes de mélange et de ségrégation induits par des écoulements internes. Des observations expérimentales montrent que la composition du mélange n'est pas la même sur toute la longueur du mélangeur, la dynamique de mélange ne peut pas être modélisée par une approche de type « boîte noire ». La conception d'un modèle de mélange à proprement parler requiert ainsi une approche mésoscopique du système. Un modèle basé sur les chaînes de Markov à plusieurs cellules, a été conçu à cet effet. Les cinq premières cellules sont identifiées aux zones délimitées lors de l'étude de la dynamique, auxquelles s'ajoute la sortie en tant qu'état absorbant (Ammarcha et al., 2019). Afin de pouvoir simuler un mélange de couscous fin et de couscous moyen, deux chaînes différentes ont été identifiées indépendamment puis rassemblées dans un modèle pour simuler le mélange. La chaîne ainsi adaptée est non homogène et non linéaire. Les probabilités de transition des différents constituants du mélange sont définies en fonction des masses retenues dans les différentes cellules et de la vitesse d'agitation, à l'aide de corrélations empiriques. C'est ce qui permet d'introduire dans le modèle les caractéristiques intrinsèques des poudres à mélanger ainsi que celles de l'agitateur. La chaîne de Markov ainsi développée, confrontée à des résultats issus d'expériences autres que celles qui ont permis d'établir les corrélations, décrit de façon satisfaisante les variations de composition des mélanges, en phase transitoire de démarrage et en régime permanent, ainsi que lors d'un changement de vitesse d'agitation en cours d'opération (Figure 28). Notons toutefois que ce modèle ne permet pas de retrouver les

fluctuations observées sur la teneur moyenne en couscous, ni de prendre en considération de façon explicite le rétro-mélange induit par le mobile d'agitation.

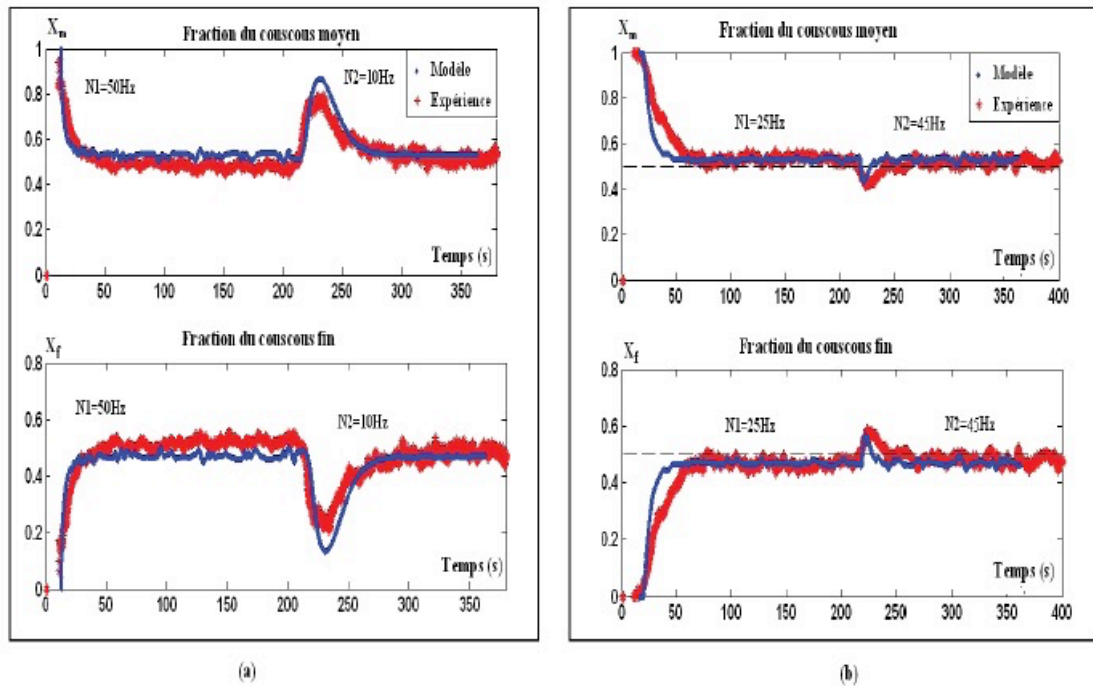


Figure 28 - Fractions moyennes en couscous moyen et en couscous fin mesurées et simulées ; débit d'alimentation 40 kg.h^{-1} , mélange à 50% de couscous fin, pas de temps 0,1s ; (gauche) échelon de 50 Hz à 10 Hz ; (droite) échelon de 25 Hz à 45 Hz ; échelle d'observation 17,8g

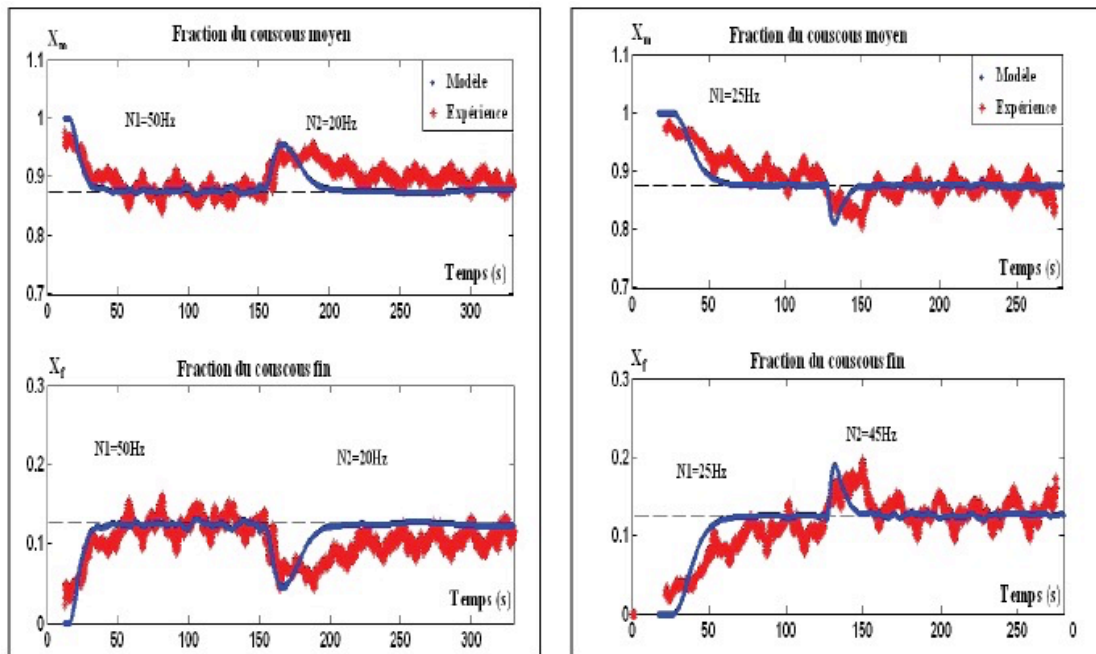


Figure 29 - Fractions moyennes en couscous moyen et en couscous fin mesurées et simulées ; débit d'alimentation 40 kg.h^{-1} , mélange à 12,5% de couscous fin, pas de temps 0,1s ; (gauche) échelon de 50 Hz à 20 Hz ; (droite) échelon de 25 Hz à 45 Hz ; échelle d'observation 17,8g

A ce stade, il devient possible d'anticiper quel serait l'effet de la vitesse d'agitation sur la composition dans différents cas de figure. Par exemple, si la fraction massique observée en sortie de mélangeur ne satisfait pas les critères d'homogénéité imposés, le modèle permet de prédire quels seraient les effets d'un changement de vitesse d'agitation pour ajuster la composition. Ce modèle, prédictif, rend alors envisageable l'exploration plus approfondie de la dynamique de mélange, tout en limitant le recours à l'expérimentation, ainsi que l'implémentation d'une boucle de contrôle-commande du procédé ; ce dernier point est l'objet de la thèse de Xiaojuan Zhao (Zhao, 2013) qui a fait suite à ces travaux.

c. Contrôle-commande en mélangeur continu

Le modèle de mélange conçu dans le cadre des travaux de Chawki Ammarcha a été étendu à une gamme plus vaste de paramètres opératoires, à partir de 3 combinaisons de composition (30%-70%, 50%-50% et 70%-30%) en couscous fin-couscous moyen, débits d'alimentation (cinq débits compris entre 20 kg.h⁻¹ et 40 kg.h⁻¹) pour deux vitesses de rotation (30 Hz et 50 Hz). Les expressions des masses retenues pour chacun des constituants dans les 5 compartiments du mélangeur (Figure 30) en fonction des débits d'alimentation et de la vitesse d'agitation sont obtenues expérimentalement à partir d'expériences de mélange et non séparément comme l'avait fait Chawki Ammarcha. Elles sont intégrées dans les calculs des probabilités pour les matrices de transition des deux chaînes de Markov qui constituent le modèle de mélange. La fraction massique de chaque composant en sortie du mélangeur ainsi que le débit total de sortie sont calculés avec un pas de temps choisi de 0,1 seconde. La teneur moyenne et le coefficient de variation sont calculés sur 10 échantillons consécutifs, ainsi les moyennes des teneurs et les CV sont calculés sur 1 seconde de prélèvements. Les teneurs et CV expérimentaux sont calculées sur la même période d'1s, pour une échelle d'observation de 11,1g.

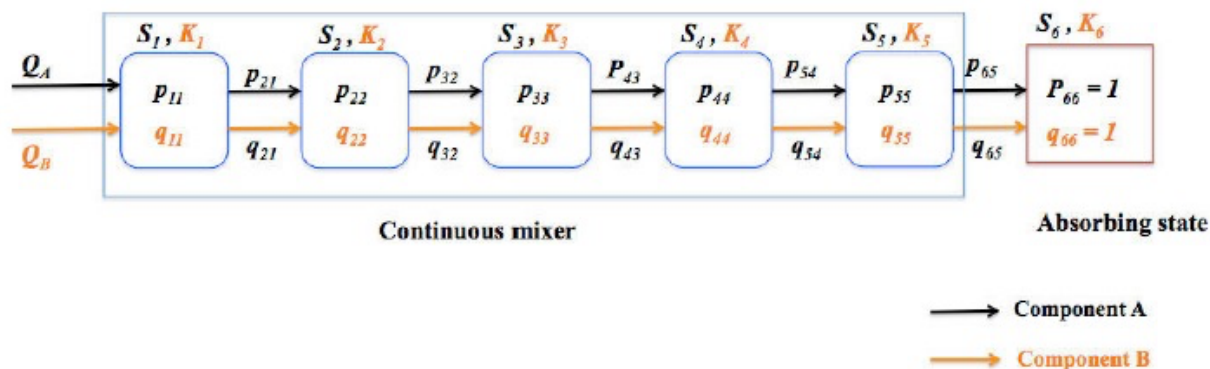


Figure 30 - Représentation des six cellules et des probabilités de transition (p_{ij} pour la poudre A, q_{ij} pour la poudre B) des chaînes de Markov conçue pour simuler le mélangeur continu

Le modèle est testé pour un échelon de vitesse d'agitation (50hz à 30Hz) et un échelon de débit entrant en couscous fin (3,5 à 6 g.s⁻¹ soit 6,5 à 10 kg.h⁻¹). Le débit de sortie et la teneur moyennes sont prédits de façon satisfaisante mais il y a un écart important entre les valeurs de l'écart-type calculé et mesuré lorsque le régime est établi. Ceci s'explique parce que les cellules sont calculées comme des réacteur continus parfaitement agités et que la composition de sortie est celle de la dernière cellule. En régime permanent il n'y a donc pas de fluctuation de concentration, et le modèle calcule un écart-type de 0. Dans la réalité,

il existe une dispersion des teneurs en tout point de la cellule*, il a de la ségrégation entre la sortie du mélangeur et l'étalement sur la bande transporteuse, mais surtout, comme il a été souligné précédemment, le mélangeur n'est jamais tout à fait en régime permanent.

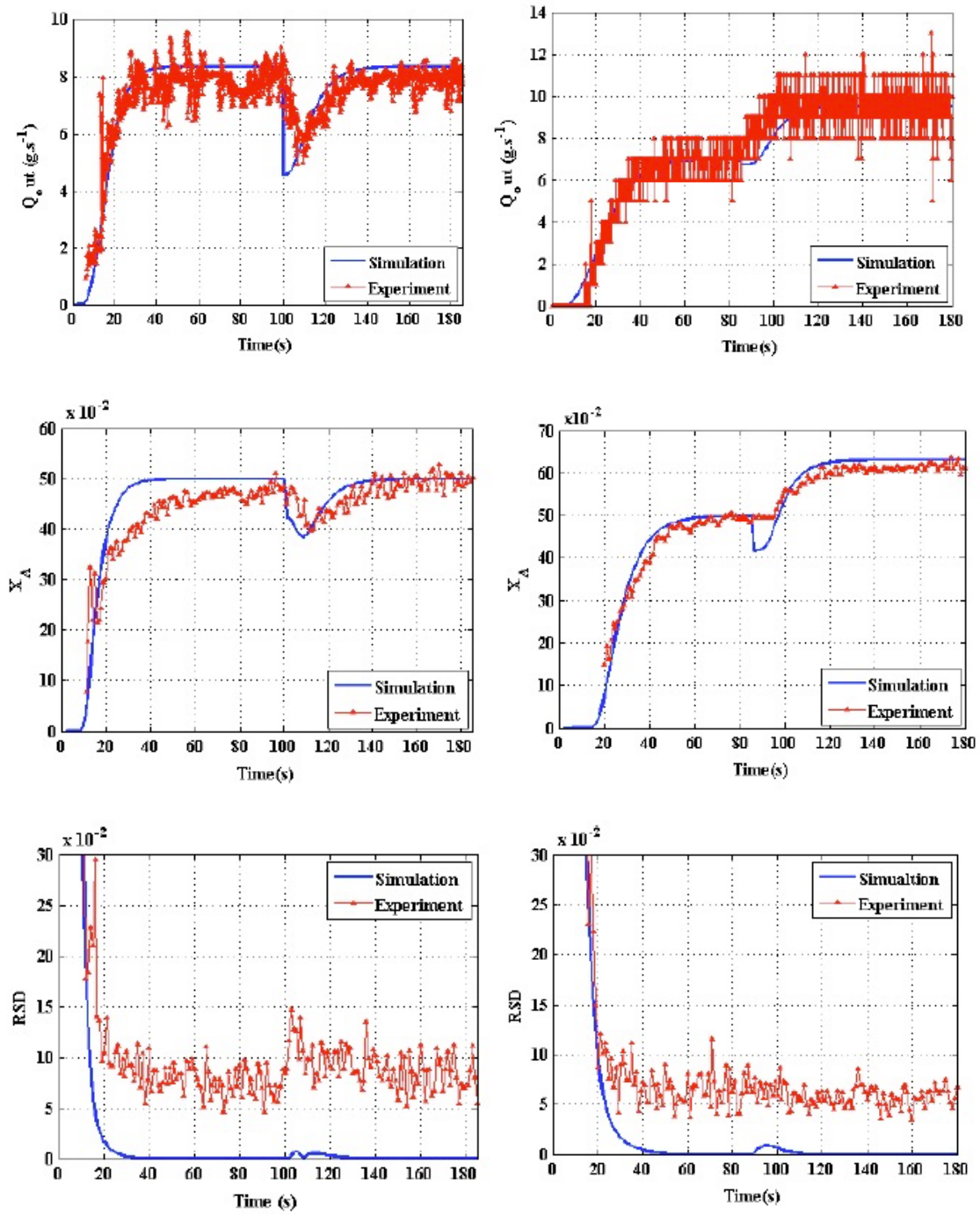


Figure 31 - Débit total, teneur moyenne en couscous fin et écart-types mesurés et simulés pour, colonne de gauche, un mélange a 50% de couscous fin, débit total $8,34 \text{ g.s}^{-1}$, à $t=100\text{s}$ un échelon négatif de vitesse d'agitation (50hz à 30Hz) ; colonne de droite ; $t=80\text{s}$ un échelon positif du débit d'alimentation de couscous fin ($3,5$ à 6 g.s^{-1}), débit de couscous moyen $3,5 \text{ g.s}^{-1}$, vitesse d'agitation 30 Hz

* La notion de « parfaitement agité » dans un mélangeur de poudre est toute relative ... en effet si dans les liquides l'échelle d'observation est largement plus grande que l'échelle de ségrégation, rendant possible une « parfaite homogénéité observée », ce n'est que rarement le cas dans une poudre.

La boucle de contrôle-commande comprend le mélangeur avec son système d'agitation mais aussi son système d'alimentation (Figure 10). Celle-ci est effectuée par deux doseurs pondéraux qui sont eux-mêmes pilotés grâce à une boucle de contrôle fermée afin de corriger les fluctuations de débits massiques. Il est impératif de maîtriser cette alimentation afin de garantir l'homogénéité du mélange produit. L'objectif de l'implémentation de cette boucle est de minimiser l'impact de perturbations courantes, comme le passage d'un mode de dosage pondéral à volumétrique lors du remplissage des trémies d'alimentation des doseurs, sur l'homogénéité du mélange produit. Deux modes de régulation ont été testés, basés sur la teneur moyenne ou le coefficient de variation.

Un contrôleur PID (Control Toolkit, Labview) a été utilisé à cet effet, la boucle fermée est représentée sur la Figure 32. La variable contrôlée peut être la teneur moyenne ou le CV, la variable manipulée est la vitesse d'agitation et les variables perturbées sont les débits d'alimentation des doseurs, le débit total et la composition en entrée peuvent donc être modifiés. La boucle de contrôle, la mesure d'homogénéité et le système de pilotage des doseurs ont été intégrés sur une même interface développée en Labview.

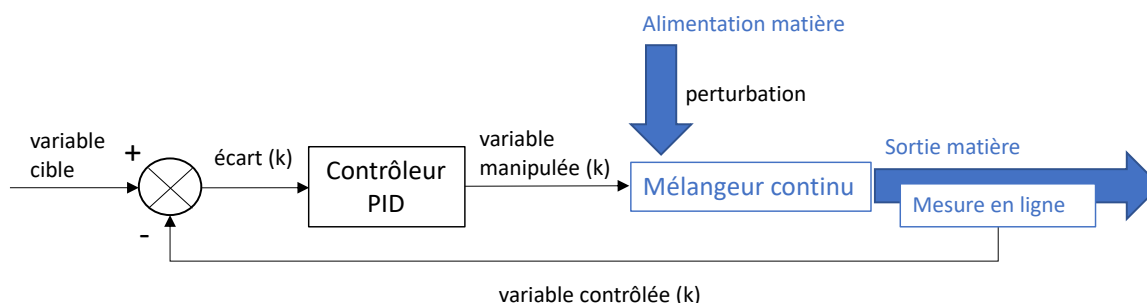


Figure 32 - Contrôle en boucle fermée

L'efficacité du mélangeur ainsi piloté est évaluée pour les deux variables contrôlées. Pour la teneur moyenne, la performance est évaluée au travers des écarts intégraux entre les valeurs cibles et les variables contrôlées : écart absolu ISE, écart quadratique IAE et écart pondéré par le temps ITAE. Dans le cas du coefficient de variation, seules les valeurs inférieures à 6% sont estimées acceptables, l'indicateur de performance choisi est le pourcentage de mesures inférieures à 6%.

Quatre études de cas sont présentées pour évaluer l'impact des modes de régulation sur l'efficacité du dispositif lors de perturbations du débit total entrant (cas 1 et 2, Tableau 4) ou, à débit constant, de sa composition (cas 3 et 4, Tableau 4). Ce sont des situations qu'il est possible de rencontrer sur une chaîne de production. Pour chacune, les performances en boucle fermée et en boucle ouverte ont été comparées (Zhao et al., 2013). Par boucle ouverte nous entendons les résultats expérimentaux obtenus dans les mêmes conditions sans régulation.

Tableau 4 - Présentation des études de cas

Cas	Débit total en entrée, kg.h^{-1}		Teneur massique en couscous fin	
	initial	perturbé	initial	perturbé
1	32,4	32,4	0,5	0,63
2	32,4	32,4	0,5	0,37
3	32,4	41	0,5	0,5
4	32,4	24	0,5	0,5

La dynamique complexe du mélangeur n'a pas permis l'identification des paramètres PID par la méthode de Ziegler-Nichols. Pour la régulation sur la teneur moyenne, l'identification des paramètres PID a été effectuée à partir du modèle, celui-ci a donc été reprogrammé sur Labview afin d'y intégrer le contrôleur. Les doseurs étant intégrés à la boucle, il a été possible de réaliser les simulations en tenant compte des débits d'entrée réels. L'identification des paramètres PID pour la régulation sur le coefficient de variation a été réalisée expérimentalement, notre modèle n'étant pas performant dans ce cas.

Pour les deux modes de régulation, par la teneur moyenne et par le coefficient de variation, la performance de la boucle de contrôle est fortement influencée par les paramètres PID. Ainsi les paramètres ajustés par le modèle pour le contrôle de la teneur moyenne ont dû être modifiés au cas par cas.

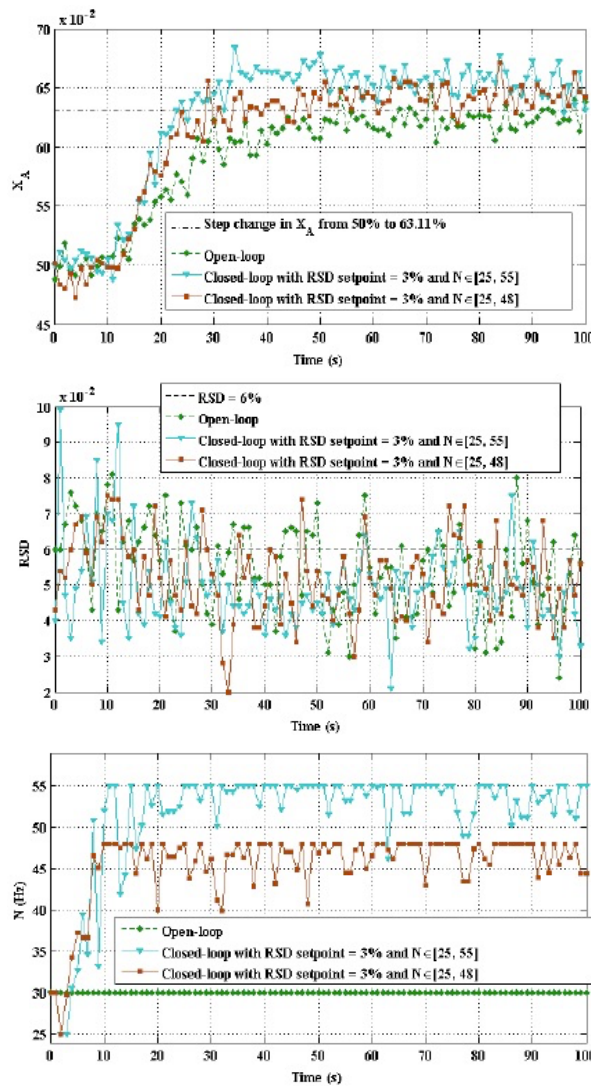


Figure 33 - Comparaison des variables contrôlée en boucle ouverte et avec PID, pour deux plages de valeur de la vitesse d'agitation, cas d'étude 1

Dans le cas d'étude où la proportion de couscous fin est augmentée à débit total constant un jeu de paramètres PID permettant à la fois le contrôle de la teneur moyenne et du coefficient de variation a pu être identifié. Pour le procédé ainsi piloté, le régime transitoire dû au changement des débits est écourté par rapport à l'expérimentation sans

contrôle et le ratio de CV inférieurs à 6% est nettement augmenté, même après que le régime établi soit atteint (

Figure 33). Dans les trois autres cas, les résultats sont plus nuancés. Les jeux de paramètres identifiés ne permettent pas d'effectuer le contrôle sur les deux variables d'observation. Lorsqu'ils sont identifiés sur la boucle de contrôle de la teneur moyenne le coefficient de variation n'est plus maîtrisé et inversement alors que le contrôle de ces deux variables est impératif pour une application industrielle. De plus, nous avons pu voir que la plage de valeurs dans laquelle varie la vitesse d'agitation joue un rôle important. Par exemple, sur le Tableau 5 on peut voir que les meilleurs résultats ont été obtenus en limitant la vitesse d'agitation à 48 Hz au lieu de 55 Hz.

Tableau 5 - Performance de la boucle de contrôle, comparaison de l'expérimentation sans contrôle et avec PID pour deux plages de valeur de la vitesse d'agitation, cas d'étude 1

	ISE	IAE	ITAE	Ratio CV < 6%
Sans contrôle	0,3294	3,7825	87,61	56/101
PID, N[25,55]	0,311	4,272	131,62	86/101
PID, N[25,48]	0,3155	3,3953	82,91	76/101

L'obstacle majeur que nous avons rencontré dans cette étape critique de l'implémentation de la boucle réside dans le fait que les expérimentations sont très lourdes en manutention et que le modèle dont nous disposons ne permet pas de simuler le coefficient de variation de la composition en sortie du mélangeur, ni de prendre en considération les variations aléatoires observées sur les débits d'alimentation. Cette étude constitue pour autant un premier pas vers le développement de systèmes de contrôle en temps réel du mélangeur continu.

d. Discussion

Le développement des procédés industriels continus passe par la conception de stratégies de contrôle-commande. Pour les procédés qui mettent en œuvre des solides divisés, la première limitation est l'établissement de modèles pour relier les données contrôlées et la boucle de régulation. Ces modèles doivent être efficaces en régime transitoire et mis en œuvre en temps raisonnable. Cette dernière condition écarte de prime abord les modèles déterministes DEM.

Bien qu'ayant montré leur efficacité à simuler le débit sortant et sa composition moyenne pour différentes conditions opératoires, les modèles de mélange en continu que nous avons développés présentent certaines limites. D'une part, ils restent empiriques et peu généralisables dans la mesure où les probabilités de transition sont déterminées à partir d'expériences. D'autre part, chaque cellule du modèle étant considérée comme homogène, la taille des cellules représente l'échelle d'observation que nous avons pour déterminer l'homogénéité des mélanges simulés, en calculant par exemple un écart-type. Dans notre cas, celle-ci n'est pas utilisable pour calculer un indice de mélange pertinent.

Vadim Mizonov, dans le cadre de notre collaboration, a développé plusieurs modèles théoriques permettant de prendre en considération le mélange radial (Mizonov et al., 2009b) ou des mécanismes de mélange à plusieurs échelles (Mizonov et al., 2009a). Pour ce dernier, un modèle théorique à deux paramètres permet de coupler un mélange à grande échelle, appelé macromélange et un mécanisme à échelle plus réduite, appelé micromélange bien que le découpage en cellules ne permette pas réellement d'approcher cette échelle. Ce modèle

ouvre des possibilités pour prendre en considération des mécanismes de mélange à des échelles et des temps caractéristiques différents, tels que la convection et la diffusion. Là encore, la limite du modèle réside dans le découpage du mélange en cellules de taille suffisamment petite pour représenter le mélange à l'échelle microscopique afin d'aborder la modélisation du mélange de façon réaliste, de par la complexité de l'identification des probabilités de transition. Les limites des chaînes de Markov et plus largement des modèles compartimentaux, comme par exemple le modèle développé pour un mélangeur en V par Portillo et al. (Portillo et al., 2006) sont ainsi qu'ils nécessitent la connaissance de « schéma d'écoulements » de la poudre au sein du mélangeur et que le nombre important de cellules nécessaires pour modéliser le mélange à une échelle réaliste rend complexe l'identification expérimentale des paramètres d'échange de matière entre les cellules. Les limites de ces méthodes eulériennes sont finalement l'échelle d'observation qu'elles imposent.

Les méthodes DEM (Cundall and Strack, 1979), qui suivent les trajectoires de chaque particule en prenant en considération leurs collisions, permettent de s'affranchir de cette limite d'échelle. Si elles ne sont pas raisonnablement déployables à l'échelle d'un mélangeur industriel à cause de leur temps de calcul important, elles le deviennent en revanche sur des zones bien délimitées dans les mélangeurs (Bertrand et al., 2005), ou sur des simulations à des temps courts.

Le mélange en continu peut être considéré comme la combinaison d'un écoulement et d'un processus de mélange. Ierapetritou, Muzzio et al. (Gao et al., 2012), (Bhalode and Ierapetritou, 2020) proposent de coupler un modèle de DTS et un modèle DEM pour simuler le mélange en continu, dans une cuve horizontale de diamètre 80 mm, agitée par une série de pales réparties le long de l'arbre d'agitation, comme dans le mélangeur Gericke GCM. Les auteurs proposent de réduire le temps de calcul nécessaire à la simulation complète du mélangeur (3 à 7 semaines) en découpant celui-ci en cellules dans la direction axiale, puis en simulant en batch une seule cellule en appliquant des conditions périodiques d'entrée : les particules entrant dans la cellule à la simulation n sont celles qui en sortent à la simulation $n-1$ et ce jusqu'à ce que le nombre de simulations qui correspond au temps de séjour des particules dans le mélangeur soit atteint. De cette façon le temps de calcul est réduit à 8 heures (pour 6000 particules sphériques, monodisperses, sans cohésion, dans une cellule de 40*80*80 mm). Le degré d'homogénéité est alors calculable sur la longueur du mélangeur, à condition que le taux de remplissage soit homogène. Le remplissage n'étant pas uniformément réparti le long de la cuve de notre mélangeur continu, la seconde perspective semble plus indiquée.

Doucet et al. (Doucet et al., 2008) ont développé un modèle hybride pour simuler le mélange de particules sphériques monodisperses dans un tambour cylindrique. Durant une phase d'apprentissage, un nombre limité d'itérations d'un modèle DEM permet d'identifier les probabilités de transition d'une chaîne de Markov stationnaire. Ainsi affranchi de l'identification expérimentale des probabilités de transition il est envisageable de travailler avec un grand nombre de cellules. Dans les travaux présentés, un nombre de 5595 cellules permet d'obtenir des résultats comparables à ceux de la simulation DEM avec un temps d'apprentissage court.

C'est dans cette perspective que s'inscrit la thèse de Brahim Trabelsi (Trabelsi, 2013). Le mélange batch dans un mélangeur à cerceau est simulé à partir d'un même DEM sur un temps d'apprentissage qui permet de calculer les probabilités de transition d'une chaîne de Markov. Nous avons exploré la possibilité de travailler avec des particules non-sphériques au cours de la thèse de Brahim Trabelsi, en collaboration avec Maher Moaker (Laboratoire LAMSIN, université de Tunis). Un algorithme de détection des contacts entre particules ellipsoïdales a été implémenté dans le modèle (Trabelsi et al., 2009). L'application

a été limitée à l'agitation de granulés de polyéthylènes ellipsoïdaux (de grand diamètre 4 mm) agités dans un mélangeur à cerceaux. La principale difficulté a été de prendre en considération un nombre suffisant de particules pour être représentatif de l'expérience. Néanmoins, pour une chaîne proposée en première instance et avec un nombre limité d'expériences, un temps d'apprentissage correspondant à 1 ou 2 tours du mélangeur a donné des résultats prometteurs. Depuis lors, de nombreuses avancées ont été réalisées pour prendre en considération des formes variées de particules dans les modèles DEM (Vivacqua et al., 2019) et réduire les temps de calcul, rendant cette approche plus envisageable. L'hybridation des modèles serait ainsi une possibilité pour simuler l'homogénéisation dans le mélangeur continu et affiner les stratégies de contrôle-commande.

Enfin, approfondir la phénoménologie à échelle mésoscopique voire à l'échelle des grains permettrait de donner des explications physiques aux phénomènes observés. Une maquette de mélangeur continu a été conçue à cet effet, elle sera exploitée lors de futurs travaux (Figure 71).

2.3 Exploration de l'analyse dimensionnelle pour l'étude de l'agitation et le changement d'échelle

L'analyse dimensionnelle permet d'obtenir des relations entre un nombre de variables réduit pour décrire un système, par la formation de groupes adimensionnels ayant une signification physique. Elle permet entre autres de relier une variable cible aux autres mesures internes par une relation de procédé. C'est une alternative à la résolution des équations constitutives, beaucoup utilisée en mécanique des fluides par exemple, qui permet de simplifier l'étude de phénomènes observés expérimentalement tout en leur conservant un sens physique (Mory Mathieu, 2010). Nous l'avons à ce titre mise en œuvre pour analyser l'agitation en mélangeur convectif.

L'adimensionnalisation d'un système, ou l'identification des groupes adimensionnels qui le décrivent peut se faire soit par réduction des variables qui interviennent dans ses équations constitutives, soit par une analyse systématique des dimensions des variables qui décrivent le système, c'est la base des méthodes de Rayleigh ou de Buckingham (Midoux Noël, 1985). En génie chimique la première méthode permet par exemple d'identifier le critère de Hatta en réduisant les variables du système d'équations différentielles qui décrivent le couplage transfert diffusif-réaction chimique pour les réactions polyphasiques fluide-fluide en régime permanent. C'est aussi par cette méthode que sont identifiés les nombres de Reynolds, d'Euler ou de Froude à partir des équations de Navier-Stokes en mécanique des fluides newtoniens, incompressibles, en régime permanent. Le nombre de Reynolds compare les forces d'inertie aux forces de viscosité, le nombre d'Euler compare les forces de pression aux forces d'inertie, Froude intervient dans les situations où les forces de pesanteur sont déterminantes comme les situations de chute, de jet ou de vortex, il compare les forces d'inertie et les forces de pesanteur. Dans ce cas les corrélations entre nombres adimensionnels sont obtenues à partir des équations qui ont permis d'identifier ces groupes. Les méthodes de Rayleigh ou de Buckingham sont plus systématiques, elles ne nécessitent pas la connaissance des équations fondamentales mais demandent la connaissance des variables qui interviennent dans le ou les phénomènes étudiés. Le théorème de Buckingham établit que si les p variables qui déterminent les phénomènes physiques étudiés font intervenir q grandeurs fondamentales (parmi masse, longueur, temps, température) alors les phénomènes peuvent être décrits par une équation homogène reliant $p-q$ groupes adimensionnels indépendants. Les coefficients qui interviennent dans cette relation doivent être identifiés à partir d'expériences. Cette méthode permet d'établir un modèle à partir des expériences, sous la forme d'une corrélation entre

les groupes adimensionnels obtenus. L'agitation des poudres a de particulier, par rapport à l'agitation des liquides, que les équations constitutives de leur écoulement ne sont pas clairement établies. L'analyse dimensionnelle des systèmes d'agitation de poudres est alors tronquée dans la mesure où il est difficile d'énoncer de façon exhaustive toutes les variables qui interviennent dans les phénomènes et seulement celles-ci, ni d'en prévoir les effets. Partant de ce constat, nous avons raisonné par analogie avec l'agitation des liquides, lorsque c'était possible, pour déterminer les groupes adimensionnels d'intérêt et établir des corrélations permettant de décrire nos expériences d'agitation de poudres.

L'étude dimensionnelle de l'agitation d'un liquide newtonien, en conditions isothermes, par un mobile en rotation centré dans une cuve cylindrique à fond plat indique que la puissance dissipée par l'agitateur est une fonction de 9 variables. Le système peut alors être modélisé par une relation entre 10 grandeurs comportant trois dimensions (masse, longueur, temps).

η	viscosité du liquide	Pa.s
ρ	masse volumique du liquide	kg.m ⁻³
D	diamètre de la cuve	m
H	hauteur de liquide dans la cuve	m
D _A	diamètre de l'agitateur	m
h _A	hauteur des pales	m
H _A	distance du mobile au fond de la cuve	m
N	vitesse de rotation de l'agitateur	s ⁻¹
g	accélération de la pesanteur	m.s ⁻²
P	puissance dissipée par l'agitateur	J.s ⁻¹

Cette relation se réduit à 7 groupes adimensionnels et en fixant les rapports géométriques, on aboutit à une corrélation entre le nombre de puissance, le nombre de Reynolds et le nombre de Froude.

Les propriétés du liquide mises en jeu dans les phénomènes sont clairement identifiées comme la viscosité et la masse volumique. En conditions isothermes et pour un fluide Newtonien ces propriétés sont constantes et l'analyse peut être menée de façon classique.

Lorsqu'il s'agit d'agiter des poudres, il faudra considérer le diamètre et la masse volumique des particules, le coefficient de frottement interne de la poudre et les forces d'adhésion. Les grandeurs liées à la poudre (dont la hauteur du lit) dépendent des conditions de confinement et d'agitation du milieu, ce qui rend impossible la transposition directe des résultats précédents.

La solution est généralement de considérer le système pour une poudre donnée, dont toutes ces propriétés seraient fixées, le système peut alors se réduire à une corrélation entre deux groupes adimensionnels qui sont le nombre de puissance et le nombre de Froude. C'est le principe de la rhéologie systémique, directement dans le dispositif étudié, où finalement les grandeurs physiques inconnues comme la viscosité de la poudre sont remplacées par la mesure directe de leur effet, le couple. C'est la démarche que nous avons adoptée pour les travaux de Jean-François Demeyre (Demeyre, 2007).

En génie chimique-génie des procédés, l'analyse dimensionnelle est aussi utilisée comme base à la théorie des similitudes, pour modéliser les systèmes à des échelles différentes. Dans ce cadre, les phénomènes physiques sont étudiés aux différentes échelles au travers des nombres adimensionnels qui les caractérisent. C'est la méthode que nous

avons employée dans le cadre de la thèse de Claire Mayer-Laigle (Mayer-Laigle, 2012) pour étudier le changement d'échelle en mélangeurs Turbula®.

a. Application à la rhéologie systémique pour étudier l'impact des paramètres opératoires sur le mélange

Les travaux ont été réalisés dans le cadre de la thèse de Jean-François Demeyre, en collaboration avec Guillaume Delaplace (Inra CERTIA, Université de Lille).

Chaque moteur est équipé d'un couplemètre. Le couple de chaque moteur est enregistré pour 36 combinaisons de vitesses moteurs allant de 0 à 3000 tr.min⁻¹ pour la giration et pour la rotation. Les valeurs sont relevées toutes les 100 millisecondes et moyennées sur un intervalle de temps de 1 minute. Le couple effectif est obtenu en retranchant le couple à vide et la puissance totale est calculée comme la somme de la puissance développée par le moteur de giration et le moteur de rotation.

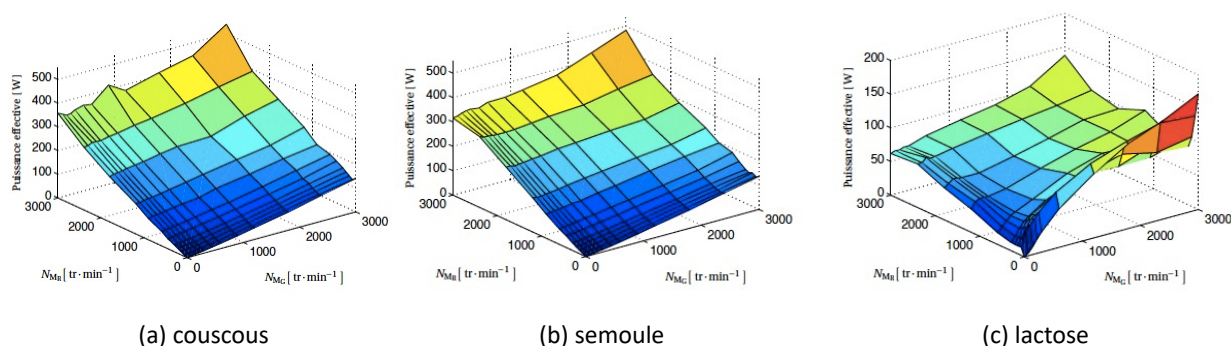


Figure 34 - Puissance effective totale en fonction de la vitesse des moteurs de giration et de rotation pour (a) du couscous (b) de la semoule (c) du lactose à taux de remplissage équivalent.

Les puissances spécifiques maximales obtenues pour chacun des produits agités seuls sont 15,6 W.kg⁻¹ pour le couscous, 13,2 W.kg⁻¹ pour la semoule et 5 W.kg⁻¹ pour le lactose. Pour le couscous et la semoule les puissances maximales sont enregistrées pour les vitesses maximales de deux moteurs, en revanche pour le lactose c'est la vitesse de giration qui prévaut (Figure 34).

Si l'on définit la vitesse caractéristique u_{ch} (équation(8)) comme la vitesse de bout de pale maximale pour une combinaison de vitesses (N_G , N_R) donnée, l'analyse dimensionnelle considérant comme grandeurs de référence u_{ch} , le diamètre du support horizontal du mobile (voir Figure 15) d_S et la masse volumique vrac de la poudre ρ , indique que la puissance dissipée dans le système peut être modélisée par une relation entre deux groupes adimensionnels (équation (9)) : un nombre de puissance (équation (10)) et un nombre de Froude modifiés (équation (11)) (André et al., 2012).

$$u_{ch} = \frac{\max(u(t))}{\pi} \quad (8)$$

$$Np_m = aFr_m^b \quad (9)$$

$$Np_m = \frac{P}{\rho u_{ch}^3 d_s^2} \quad (10)$$

$$Fr_m = \frac{u_{ch}^2}{gd_s} \quad (11)$$

Les mesures de couple réalisées dans le cadre de la thèse de Jean-François Demeyre ont permis d'identifier les coefficients a et b de la corrélation avec une bonne précision (Tableau 6). Les nombres de Froude atteints dans le mélangeur sont toujours inférieurs à 1.

Tableau 6 - Coefficients pour la corrélation $Np_m = aFr_m^b$ pour de la semoule, du couscous et du lactose Granulac® GCM 140 (André et al., 2014)

$Np_m = aFr_m^b$	a	b	coefficient de corrélation
Couscous, semoule	14,96	-0,988	0,9993
Lactose	1,81	-1,467	0,9852

L'exposant -1 du nombre de Froude est en accord avec les corrélations établies par d'autres auteurs pour d'autres types de mélangeurs (mélangeur à tambour horizontal ou en V (Sato et al., 1979), mélangeur à haut cisaillement (Knight et al., 2001)), avec des poudres à écoulement libre.

Un nombre de mélange a également été identifié par l'analyse dimensionnelle ((André et al., 2012). Il correspond à la distance parcourue par le bout d'une pale pour aboutir à l'homogénéisation du milieu, ramenée à une longueur caractéristique du mobile (équation (12)). Il est représenté sur la Figure 35, en fonction du nombre de Froude modifié, pour les 14 combinaisons de vitesses de giration et rotation utilisées pour réaliser les mélanges couscous/semoule. Θ_m est constant, égal à 150, ce qui correspond à ce qui été observé pour des liquides visqueux en régime laminaire par Guillaume Delaplace et al. (Delaplace et al., 2007).

$$\Theta_m = \frac{t_m u_{ch}}{d_s} \quad (12)$$

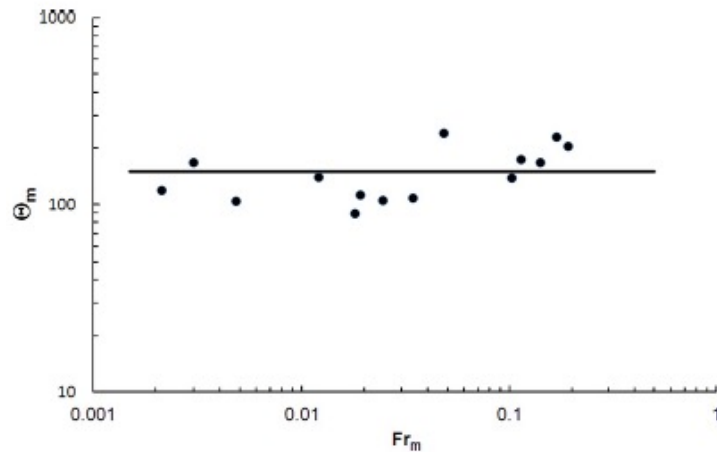


Figure 35 - Temps de mélange adimensionnel en fonction du nombre de Froude modifié

Ainsi, l'analyse dimensionnelle a permis d'identifier une vitesse caractéristique pertinente pour le mélangeur planétaire Triaxe®, grâce à laquelle il a été possible d'établir un modèle pour l'agitation de poudres de différentes caractéristiques physiques (couscous, semoule, lactose) ainsi que pour le mélange de poudres à écoulement libre. Les coefficients du modèle d'agitation dépendent des poudres mises en œuvre, ce qui dérive directement du fait que leurs caractéristiques physiques n'ont pas été prises en considération dans l'analyse. C'est une limite de notre approche systémique, en l'absence de connaissance suffisante des caractéristiques rhéologiques des matériaux employés. La correspondance entre ces coefficients et les propriétés d'écoulement des poudres sera approfondie dans le cadre de la thèse de Léonard Legoux et présentée dans la partie 3.1, paragraphe Rhéologie systémique et propriétés des poudres.

b. Application au changement d'échelle en mélangeur Turbula®

Les étapes de formulation ou d'optimisation des mélanges nécessitent des manipulations fastidieuses et coûteuses en matières premières, elles ont souvent lieu à l'échelle du laboratoire et sont difficiles à transposer à l'échelle industrielle. Comment déterminer les conditions opératoires qui permettent de conserver l'homogénéité d'un mélange lors d'une transposition d'échelle ? Nous avons exploré la théorie des similitudes, basée sur l'analyse dimensionnelle pour répondre à cette question, dans le cas d'une transposition 2l-17l-55l en mélangeur Turbula® (voir Figure 36), les résultats de cette étude sont publiés dans (Mayer-Laigle et al., 2019).



Figure 36 - Modèles de mélangeur Turbula® pour étude du changement d'échelle

L'analyse dimensionnelle conduit à identifier des groupements de variables qui peuvent être utilisés pour assurer la conservation d'un phénomène lors d'un changement d'échelle. Selon la théorie des modèles, deux procédés peuvent être considérés comme similaires si d'une part ils présentent des similitudes géométriques et si d'autre part l'ensemble des nombres adimensionnels utilisés pour décrire le système sont égaux. La similitude complète est en général impossible dans la pratique. On privilégie alors certains nombres adimensionnels, soit parce que l'impact de certains facteurs est faible par rapport aux autres, soit parce que l'on cherche à privilégier un des aspects du système (vitesse d'écoulement, force centrifuge...). On parle alors de similitude restreinte. On distingue trois types de similitude : géométrique, cinématique et dynamique. Les trois mélangeurs étudiés sont géométriquement semblables dans la mesure où il existe un rapport constant entre les dimensions géométriques des trois cuves et de leurs systèmes d'entraînement. Les ratios entraxe, ratios diamètres de cuve et ratios profondeur de cuve entre deux tailles de mélangeur sont identiques : 1,8 entre le 2l et le 17l et 2,8 entre le 17l et le 55l. Parmi les mélangeurs utilisant les forces d'inertie et de gravité pour générer les écoulements de la poudre, le Turbula® présente la particularité de proposer un système d'entraînement spécifique qui génère des écoulements chaotiques, promouvant le mélange à petite échelle mais complexes

à représenter. Les lois de changement d'échelle basées sur des vitesses de particules identiques au sein de la cuve sont impossibles à appliquer. Nous avons donc choisi de définir un critère cinématique basé sur la vitesse d'un point de la cuve, situé au centre de la paroi du fond de la cuve (point A, Figure 21). De la même façon un critère dynamique est défini à partir de l'accélération en ce même point. Les simulations réalisées sous Solidworks nous ont permis de déterminer des points de fonctionnements notés PFC pour les similitudes cinématiques et PFD pour les similitudes dynamiques (Figure 37).

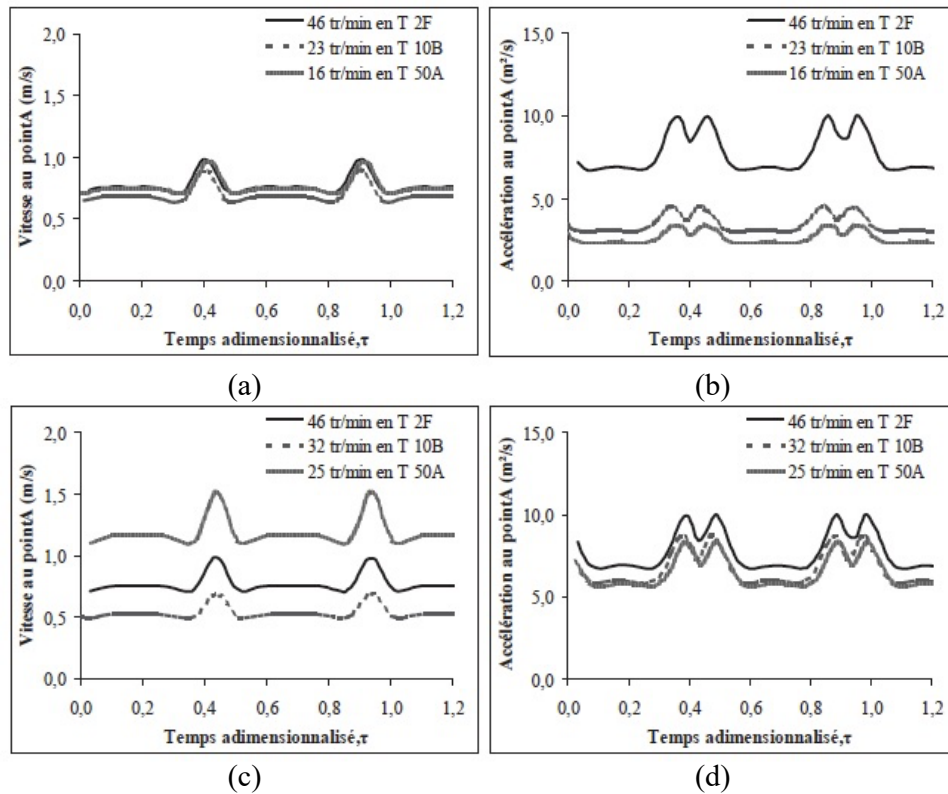


Figure 37 - Profils de vitesse et d'accélération en fond de cuve pour un point de similitude cinématique (a) et (b) et un point de similitude dynamique (c) et (d) ; le temps est adimensionnalisé par la période du mouvement de la cuve

Le mélange de poudres mis en œuvre est le mélange de poudre composite constitué de graphite (85%) et de matrice polymérique thermodurcissable (15%) étudié dans le cadre de la thèse de Claire Mayer (projet ANR MASCOTE). Le graphite a un diamètre médian de 57 μm et un indice de Carr de 25%, le polymère a un diamètre médian de 121 μm et un indice de Carr de 42%, le mélange est considéré comme cohésif et de mauvaise coulabilité. L'homogénéité est estimée en vidange de la cuve du Turbula sur une bande transporteuse, 80 échantillons de 70 mg sont prélevés aléatoirement et leur composition est analysée par décomposition thermique (dégradation de la matrice polymère à 550°C pendant 2 heures). Le coefficient de variation de la composition en graphite dans les échantillons est utilisé comme indicateur de l'homogénéité des mélanges.

Dans un premier temps, les cinétiques de mélange ont été établies dans le T2F et le T10B (voir Figure 38) pour différentes vitesses d'entraînement. Elles montrent que l'homogénéité finale est d'autant plus vite atteinte que la vitesse est grande, mais elle est atteinte entre 6 et 12 tours dans tous les cas, pour les deux tailles de mélangeur. La poudre composite étant cohésive, on n'observe pas les mécanismes de ségrégation mis en évidence

dans le cas du mélange de couscous fin et de lactose, y compris aux temps longs (jusqu'à 500 tours).

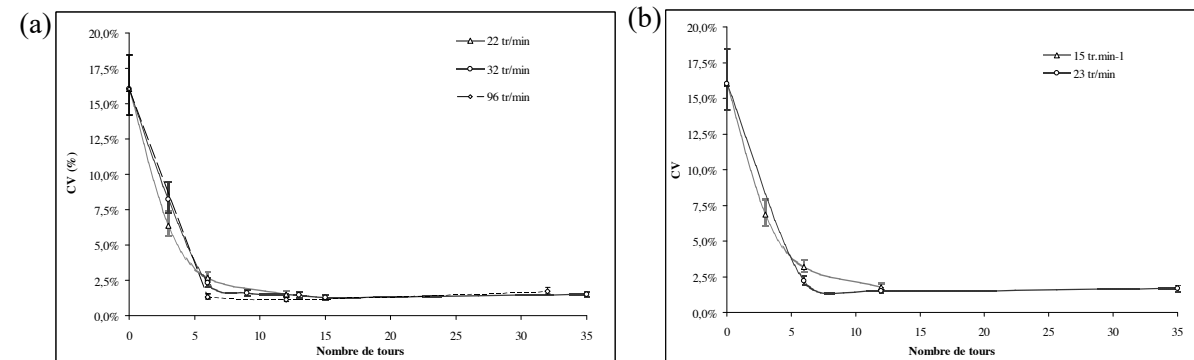


Figure 38 - Cinétique de mélange pour le mélange composite en T2F (a) et en T10B (b), les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance statistique à 90% pour la prise de 80 échantillons

Les résultats du changement d'échelle, pour un remplissage de 50% en volume, sont présentés sur la Figure 39 pour 12 tours. Les correspondances cinématiques ne permettent pas d'obtenir une homogénéité identique dans les différents cas d'extrapolation (T2F-T10B pour PFC1 et T10B-T50A pour PFC2). Les deux points de fonctionnement dynamiques offrent une bonne correspondance entre le mélangeur T2F et le T10B. L'extrapolation T2F - T10B - T50A au point de fonctionnement dynamique testé est satisfaisante, même si l'indice de mélange obtenu dans le cas de l'extrapolation en T50A est un peu inférieur aux valeurs obtenues pour les mélangeurs T2F à T10B. Notons que pour toutes les tailles de mélangeur, aux vitesses d'entraînement mises en œuvre, l'écoulement s'effectue en régime de cascade (voir Tableau 7). Ainsi, au sein d'un même régime d'écoulement, l'extrapolation basée sur le nombre de Froude invariant semble pertinente.

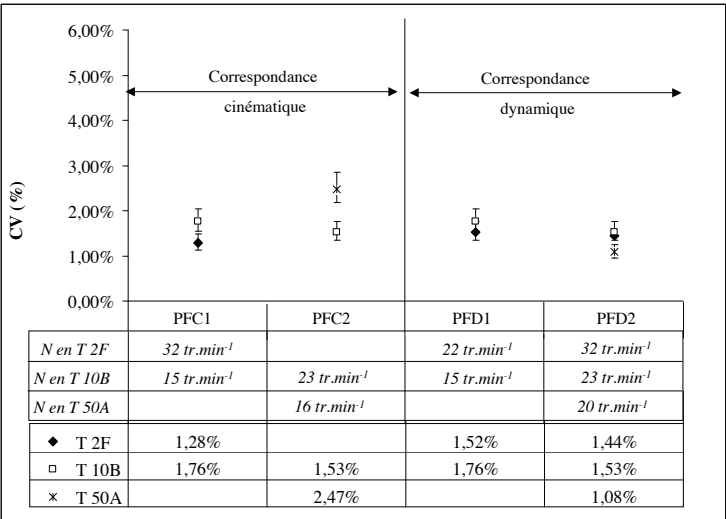


Figure 39 - Homogénéités de mélanges (CV) obtenues à deux points de similitudes cinématiques et dynamiques dans les mélangeurs T2F, T10B et T50A, à 12 tours pour le mélange composite cohésif en régime de cascade

Tableau 7 - Régimes d'écoulement dans les trois modèles de mélangeur, taux de remplissage volumique 50%

Régime d'écoulement	T2F		T10B		T50A	
	Vitesse d'entraînement	Froude	Vitesse d'entraînement	Froude	Vitesse d'entraînement	Froude
cascade	22 tr/min	0,2	15 tr/min	0,2	16 tr/min	0,3
	32 tr/min	0,5	23 tr/min	0,5	20 tr/min	0,5
cataracte	46 tr/min	1	32 tr/min	0,9	25 tr/min	0,8
	67 tr/min	2,2	44 tr/min	1,7	40 tr/min	2,2
centrifuge	96 tr/min	4,5				

L'extrapolation de T2F à T10B a par ailleurs été effectuée avec le mélange ségrégant de couscous fin et de lactose qui présente de meilleures capacités d'écoulement, en régime de cascade et en régime de cataracte. Il apparaît clairement que le régime de cascade mène toujours à de meilleures homogénéités, quelles que soient la vitesse d'entraînement et la taille du mélangeur, ce qui confirme les travaux de Mellmann en tambour simple, pour une poudre à écoulement libre (Mellmann, 2001). En revanche, les écarts entre les coefficients de variations atteints entre les deux tailles de cuves sont de l'ordre de 5% pour les deux types de similitudes. Il est difficile de conclure sur la meilleure efficacité de l'extrapolation dynamique par rapport à l'extrapolation cinématique dans le cas de ce mélange-là. Un point de fonctionnement diffère franchement des autres par un écart important, 17%, entre l'homogénéité obtenue à 46 tr/min en T2F, en régime de cataracte, et à 23 tr/min en T10B, en régime de cascade ; ce qui montre que les régimes d'écoulement sont à respecter impérativement.

Finalement, il ressort de cette étude que pour assurer un changement d'échelle il est important, en première instance, de respecter les régimes d'écoulement. De plus, au sein d'un même régime, la conservation du nombre de Froude est prépondérante pour les poudres cohésives. Pour ces poudres, plus difficiles à mélanger intimement que les poudres à libre écoulement en raison des interactions qui lient les particules entre elles, l'homogénéité que l'on peut atteindre est sensible à l'intensité des forces mises en jeu.

En régime de cascade, l'homogénéité dans le T50A est meilleure que celle attendue pour le critère de similitude dynamique, et nous avons par ailleurs pu observer que sur les cinétiques aux temps longs l'homogénéité finale en T50A est toujours meilleure que dans les deux autres mélangeurs. Ainsi, l'efficacité du mélangeur semble augmenter avec la taille de la cuve. On peut se demander si le taux de remplissage volumique, critère invariant pour les trois mélangeurs, est le meilleur critère de comparaison.

Le suivi de l'homogénéité en nombre de tours est également un choix à discuter. En effet pour un même nombre de Froude, par exemple 0,5, la vitesse d'entraînement est de 20 tr/min en mélangeur T50A alors qu'elle est de 32 tr/min en T2F. 120 tours sont alors effectués en 6 minutes en T50A et en 3,75 minutes en T2F. Les mécanismes à cinétique lente, de type diffusif, peuvent ainsi mieux se « développer » en T50A qu'en T2F pour un même nombre de tours, menant à un mélange plus fin. En régime de cascade, un écoulement continu est établi au sein de la poudre, générant un gradient de cisaillement propice au mélange. L'homogénéisation progresse en continu dans la masse de poudre au cours d'une rotation de la cuve. Le temps caractéristique de mélange est lié au temps caractéristique de l'écoulement généré par la rotation et finalement l'homogénéisation ne dépend pas du fait que la cuve ait effectué une rotation complète. Contrairement à cela, en régime de cataracte dans lequel les forces centrifuges concurrencent les forces inertielles, la poudre est entraînée par la rotation de la cuve avant de chuter sous l'action de la gravité. Il n'y a plus de surface libre en écoulement mais une pluie de particules, la zone de mélange est la zone d'impact

des particules qui chutent, une rotation complète de la cuve est alors nécessaire pour que la totalité de la masse de poudre soit concernée. Il serait alors pertinent d'effectuer l'analyse cinétique sur la base du nombre de rotations effectuées par la cuve en régime de cataracte et sur la base du temps en régime d'avalanches continues (roulement ou cascade).

Par ailleurs, les critères d'extrapolation que nous avons explorés sont liés à la rotation de la cuve et non à l'écoulement des particules. Alexander et al. ont montré par des expérimentations avec des particules de taille 1,6 mm (donc à écoulement libre) que ni la vitesse tangentielle de la cuve, ni le nombre de Froude de la cuve ne permettaient de décrire la forme et l'amplitude du profil de vitesse radiale des particules en surface de l'écoulement dans un tambour cylindrique en régime de roulement ou de cascade. En effet, pour les vitesses angulaires ω de rotation de cuve les plus faibles, le profil de vitesse est symétrique et la vitesse en tous points est proportionnelle à $\omega^{2/3}$. Pour des vitesses angulaires plus importantes, lorsque le profil devient asymétrique, la vitesse est proportionnelle à $\omega^{1/2}$ (Alexander et al., 2002). Ainsi, pour aller plus loin, il serait intéressant de travailler à l'échelle de la poudre, par une approche de type eulérienne, en définissant par exemple un critère d'extrapolation lié à l'écoulement le long de la surface libre.

Afin de prendre en considération ces deux derniers points, considérons l'écoulement de la poudre sur la couche supérieure du lit, proche de la surface libre, dont résulte le mélange en régime de cascade. Dans un mélangeur à tambour cylindrique de rayon R , en rotation à la vitesse angulaire ω , le débit de cette couche, Q (en 2-D, Q est le débit ramené à la longueur du tambour, exprimé en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$) peut être approché par l'équation (13) en négligeant l'épaisseur de la couche en mouvement devant le rayon de la cuve (GDR MiDi, 2004).

$$Q = \frac{1}{2} \omega R^2 \quad (13)$$

Pignatel et al. (Pignatel et al., 2012) ont montré expérimentalement, pour des billes millimétriques, que ce débit caractéristique Q adimensionné par un débit caractéristique du réarrangement des particules sous l'action de la gravité (débit réduit Q^* défini dans l'équation (14)) est un facteur de changement d'échelle pertinent pour décrire l'écoulement de particules, de diamètre d , sans cohésion, dans un tambour cylindrique, dans la mesure où il permet de conserver le rapport entre l'épaisseur de l'écoulement et le diamètre des particules.

$$Q^* = \frac{Q}{d\sqrt{gd}} \quad (14)$$

Il est alors possible, par analogie avec ces études en quasi 2-D, même si nos particules ne sont pas sans cohésion et si l'écoulement de la poudre à l'intérieur du Turbula® est sans doute plus complexe que dans un tambour simple, de définir un temps caractéristique de l'écoulement des particules au niveau de la surface libre t_c par l'équation (15) et de le considérer comme un temps de mélange de référence. Le temps de mélange réduit τ_m défini par l'équation (16) devient alors un paramètre intéressant pour suivre l'homogénéisation de la poudre à différentes échelles et pourrait constituer un invariant à considérer pour conserver l'homogénéité de mélange lors du transfert d'échelle.

$$t_c = \frac{d^2}{Q} \quad (15)$$

$$\tau_m = \frac{t_{\text{mélange}}}{t_c} \quad (16)$$

c. Application au changement d'échelle en broyeur à boulets

Cette analyse est actuellement exploitée pour l'étude du changement d'échelle en broyeur à boulets menée dans le cadre de la thèse de Martin Giraud (à soutenir fin 2020). Une alumine est broyée dans des jarres cylindriques de 1l, 2l et 7l ; l'objectif est de mettre en évidence des facteurs de similitudes permettant de conserver les propriétés d'écoulement de la poudre broyée à différentes échelles. L'étude dimensionnelle déployée à cet effet a montré que les propriétés d'écoulement des poudres broyées, représentées par un nombre de Bond granulaire (Giraud et al., 2020) pouvaient être liées à 11 nombres adimensionnels, dont le nombre de Froude et un temps de broyage réduit. Le temps de broyage réduit que nous avons utilisé est celui mis en évidence par Orozco et al. (Orozco et al., 2020), rapport du temps de broyage à un temps caractéristique défini à partir de simulations numériques de fractionnement de particules. Notre étude expérimentale montre que le nombre de Froude associé à ce temps de broyage réduit peut constituer un ensemble d'invariants pertinent lors du transfert d'échelle du broyage de l'alumine en régime de roulement.

d. Discussion

L'analyse dimensionnelle est ainsi un outil puissant pour déterminer quels sont les paramètres opératoires qui gouvernent les processus observés expérimentalement et constitue une aide précieuse pour modéliser les procédés granulaires.

Néanmoins, la difficulté de cette approche réside dans le fait qu'une bonne connaissance du système étudié est nécessaire pour l'aboutissement de l'analyse et qu'elle nécessite finalement un travail expérimental important.

Les simulations numériques basées sur des algorithmes DEM ouvrent la possibilité de réaliser des expériences numériques permettant de réduire cette étape. On trouve ainsi dans la littérature de nombreuses recherches effectuées pour trouver des invariants pertinents. La plupart portent sur les écoulements de particules sans cohésion. Les conclusions sont difficiles à extrapoler aux procédés industriels qui mettent en œuvre des poudres souvent cohésives dont les grains ont des formes et des tailles non-uniformes, mais elles apportent un corpus de connaissances intéressant pour la compréhension des mécanismes physiques mis en jeu.

Muzzio et Alexander soulignaient dans un article de la revue *Pharmaceutical Technology* à destination de l'industrie (Muzzio and Alexander, 2005) que pour les poudres cohésives, la masse volumique apparente et par conséquent les effets cohésifs dépendent fortement de la taille des équipements et des vitesses mises en jeu. Les écoulements de billes de verre sèches et de cellulose microcristalline observés dans un tambour sont sensiblement différents pour une même vitesse angulaire ; par exemple l'écoulement peut avoir lieu sous une forme continue, en régime de cascade, pour les billes de verre alors qu'il peut prendre la forme d'avalanches discrètes pour la poudre cohésive, de tailles variables, sans périodicité apparente. En outre l'écoulement des poudres cohésives dépend de leur degré de compacité et s'accompagne d'une dilatation significative (Alexander et al., 2006). Le nombre

adimensionnel de cohésion $\Pi_c = \sigma / \rho g R$ peut être employé pour tenir compte de ces effets. R est une longueur caractéristique de l'équipement, σ est la contrainte cohésive apparente (dans les conditions de l'écoulement, à savoir non confiné), ρ est la masse volumique de la poudre ; Π_c représente alors le ratio contrainte cohésive apparente / contrainte inertielle mais aussi un rapport d'échelles de tailles caractéristique : R liée à la cuve et $\sigma / \rho g$ liée à l'écoulement des grains dans les conditions du procédé. La principale difficulté de cette approche pour l'expérimentateur réside dans la rhéologie. La méthode la plus robuste pour effectuer des mesures de cohésion est encore aujourd'hui la cellule de cisaillement, mais elle est effectuée sous des contraintes de consolidations trop fortes pour pouvoir être extrapolées à des écoulements non confinés. Des indicateurs d'écoulement sont identifiables à partir d'autres dispositifs comme le FT4 (Freeman Technology) mais restent difficiles à interpréter physiquement, de surcroît pour les poudres cohésives.

Ce nombre de cohésion adimensionnel est à rapprocher du nombre de Bond granulaire, calculé à partir des forces cohésives qui s'exercent entre les particules. Capece et al. (Capece et al., 2015) l'ont mis en relation avec la fonction d'écoulement telle qu'elle peut être mesurée en cellule de cisaillement. Une exploration de ce modèle a été réalisée dans la suite de travaux, elle est présentée dans la partie 3.3 en page 104.

Les différents nombres adimensionnels mentionnés dans nos études ou dans les discussions qui s'y rapportent sont regroupés dans le Tableau 8. Par soucis de clarté, les notations y sont uniformisées et certaines expressions ont été développées afin de pouvoir comparer les deux temps de mélanges adimensionnés (Θ_m défini par l'équation (12) et τ_m défini par l'équation (16)) ainsi que le nombre de cohésion et le nombre de Bond granulaire. Les situations décrites correspondent soit à une cuve fixe agitée par un système mécanique, soit à une cuve tournante (tambour), soit concernent tout simplement la poudre sans situation particulière. Le dernier cas est celui du nombre de Bond granulaire qui compare les forces interparticulaires au poids pour deux particules sphériques de même diamètre. Les notations uniformisées sont les suivantes :

R_a	longueur caractéristique de l'agitateur	m
R_T	longueur caractéristique de la cuve	m
ω	vitesse angulaire du dispositif	rad.s ⁻¹
$v = \omega R_a$ ou $v = \omega R_T$	vitesse linéaire du dispositif	m.s ⁻¹
P	puissance dissipée dans le milieu par d'agitateur	W
ρ_{app}	masse volumique apparente	kg.m ⁻³
ρ	masse volumique des particules	kg.m ⁻³
d	diamètre des particules	m
t_m	temps de mélange	s
σ_c	contrainte cohésive apparente	Pa
F_c	forces interparticulaires de cohésion	N

Tableau 8 - Récapitulatif des nombres adimensionnels manipulés dans nos études ou mis en avant dans les discussions

Nombre	Signification	Situation		
		agitateur	cuve tournante	poudre
Nombre de puissance	Puissance dissipée par l'agitateur/puissance mécanique	$Np = \frac{P}{\rho_{app} \omega^3 R_a^5}$		
	Coefficient de traînée	$Np = \frac{P}{\rho_{app} v^3 R_a^2}$		
Nombre de Froude	Forces centrifuges/forces de pesanteur	$Fr = \frac{R_a \omega^2}{g}$	$Fr = \frac{R_T \omega^2}{g}$	
		$Fr = \frac{v^2}{g R_a}$	$Fr = \frac{v^2}{g R_T}$	
Temps de mélange réduit	Temps de mélange/temps caractéristique imposé par le dispositif	$\Theta_m = \frac{t_m v}{R_a}$	$\tau_m = \frac{t_m v R_T}{2d^2}$	
Nombre de cohésion	Contrainte cohésive apparente/contrainte inertielle	$\Pi_c = \frac{\sigma_c}{\rho_{app} g R_a}$		
Nombre de Bond	Forces interparticulaires cohésives/poids			$Bo_{g,AB} = \frac{F_c}{\rho g \frac{\pi}{6} d^3}$

Par nos approches, nous avons dû considérer que les propriétés de notre matériau sont uniformes et constantes, alors que nous avons clairement établi dans les discussions que cela ne pouvait pas être le cas de la cohésion d'une poudre qui dépend fortement des champs de contraintes au sein du dispositif étudié. En réalité, il est possible d'appliquer l'analyse dimensionnelle au cas des procédés mettant en œuvre un matériau dont une propriété physique n'est pas uniforme ou constante au cours d'une opération de transformation (Delaplace et al., 2014). Une fonction matériau dimensionnelle s qui décrit l'évolution de la propriété physique considérée en fonction d'une variable p est définie. Cette fonction est réduite par sa valeur $s(p_0)$ à une abscisse de référence p_0 . La fonction $H(v) = s(p)/s(p_0)$ dont l'argument v est le rapport sans dimension p/p_0 est la fonction matériau adimensionnelle. La variable cible de l'analyse dimensionnelle sera alors exprimée par une relation de procédé qui dépend de la fonction matériau adimensionnelle et donc de l'abscisse de référence. C'est une fonctionnelle de H . C'est une piste d'approfondissement pour les études décrites dans ce chapitre, elle méritera d'être explorée dans de futurs travaux.

Deux matériaux sont similaires s'ils sont représentés par la même fonction matériau adimensionnelle. La similitude matériau est une condition nécessaire à l'application d'une relation procédé à différents matériaux. Cela est bien illustré par le fait que nous ayons obtenu deux relations procédé différentes dans le mélangeur Triaxe® pour la semoule et le lactose. L'extrapolation de l'opération suivant la théorie des similitudes nécessite alors d'avoir conjointement une similitude géométrique, une similitude procédé (cinématique ou dynamique, par exemple) et une similitude matériau. Nous avons en effet pu vérifier que les règles d'extrapolation étaient différentes entre le mélange de couscous fin et de lactose et le mélange plus cohésif de graphite et de résine thermodurcissable.

Enfin, la détermination de cette fonction matériau nécessite de connaître, sous la forme d'une relation mathématique, la loi qui décrit la propriété physique qui varie en fonction d'une des mesures du système, comme peut l'être une loi rhéologique. La mise en œuvre de ces principes pour les poudres nécessite encore des développements scientifiques, mais reste une perspective intéressante.

2.4 Conclusion

Déterminer la dynamique d'un mélange nécessite d'avoir à disposition des outils méthodologiques de détermination de l'homogénéité des mélanges. Si l'échelle d'usage du produit fini est souvent considérée comme l'échelle d'observation à adopter pour examiner les mélanges, celle-ci peut s'avérer insuffisante pour expliquer certains comportements secondaires pour l'utilisateur, mais déterminants pour la manipulation des produits tout au long de la chaîne de production et de conditionnement. Cela ouvre un vaste champ d'investigation qu'on ne peut ignorer si l'on souhaite concevoir des dispositifs de mélange efficaces et conduire rationnellement les opérations de mélange.

Les approches systémiques de l'opération d'agitation ou de mélange de poudres que nous avons menées ont montré qu'il est possible de les modéliser par des approches classiques du génie des procédés. Néanmoins les modèles établis dépendent fortement des situations mises en œuvre et ne sont pas transposables à d'autres poudres que celles employées, ni sans doute à des conditions expérimentales éloignées de celles des expériences. Ils ne peuvent, en ce sens, pas être réellement prédictifs et, par exemple, la question de l'effet d'un changement de propriétés des matières premières (distribution granulométriques et/ou forme) sur les écoulements et sur les mélanges reste à approfondir ; sans compter que, par exemple, toutes les études que nous avons menées sur le contrôle-commande du mélangeur continu ne concernent que des mélanges de poudres à écoulement libre. Dans l'objectif de développer des modèles complets, prenant en considération le caractère mésoscopique des poudres, nos recherches ont évolué vers des études multi-échelles orientées processus et produits, au sens des produits mis en jeu dans ces procédés, de la prise en considération de leurs caractéristiques physico-chimiques.

3 Agitation, comportement collectif et caractéristiques de particules : études multi-échelles

Les approches systémiques du mélange que nous avons développées montrent clairement que décrire et modéliser cette opération nécessite la connaissance des mécanismes mis en jeu, qui sont indissociables des écoulements de la poudre et de l'organisation des particules au sein du milieu pulvérulent (Figure 40). Les travaux de recherche consacrés à ces aspects-là sont regroupés dans cette partie, qui concerne un champ d'opérations plus vaste que le mélange des poudres. Ce chapitre concerne en effet toutes les opérations de mises en œuvre ou de mise en forme dans lesquelles les poudres sont en écoulement, comme le broyage, les remplissages-vidanges, épandage ainsi que le transport.

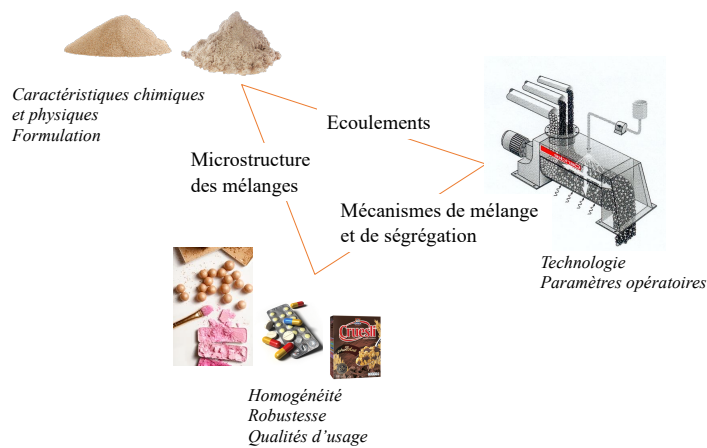


Figure 40 – Interactions propriétés des matières premières, qualité de mélange et propriétés d'usage, procédé

Collaborations

Doctorants	Jérôme Revel, Léonard Legoix, Nur Kusumanindiyah, Martin Giraud
Collègues du laboratoire RAPSODEE	Henri Berthiaux, Mathieu Milhé, Denis Marty, Pierre Bertorelle, Laurent Devriendt
Programmes de recherches et contrats	Contrat Arkema Collaborations CEA Cadarache et Marcoule Collaborations CIFRE Valitec, Tetra Pak Powder Handling

Valorisation

Citation par numéro correspondant aux publications personnelles, page 148

<i>Thèses soutenues</i>	
Jérôme REVEL (2003)	[2]
Léonard LEGOIX (2016)	[23], [25], [26], [28]
Nur KUSUMANINDYAH (2016)	[31]
Martin GIRAUD (à soutenir - 2020)	[29], [33], [34] et 3 en préparation
Contrat Arkema	[17]

Dans une première partie, nous verrons comment nous avons exploré la relation de procédé établie sous forme de corrélation entre nombre adimensionnels par les travaux de thèse de Jean-François Demeyre. Les paramètres de la relation sont reliés aux caractéristiques des poudres et aux conditions opératoires telles que le taux de remplissage et le régime d'écoulement. La relation de procédé est établie dans deux dispositifs différents. Nous verrons qu'à condition de réunir certains points de similitude géométrique, on retrouve des paramètres similaires pour un même matériau et un même régime d'écoulement.

Ensuite, par des expériences de traçage et un modèle de mélange nous explorerons les différents mécanismes de mélange qui prennent place lors de l'agitation d'une poudre par un agitateur muni de quatre pales en rotation autour d'un axe horizontal.

Puis nous discuterons de l'influence des paramètres environnementaux sur les propriétés collectives des particules : forces électrostatiques et effet du vieillissement.

Enfin, nous aborderons l'impact de la formulation sur les propriétés des poudres. Peut-on prévoir les propriétés d'écoulement d'un mélange à partir des propriétés d'écoulement de ses ingrédients ?

3.1 Phénoménologie d'agitation, au-delà des échelles et de la géométrie

“ Remember, for many of us there is no business without flow business ! “

*Grant Wellwood, General manager of Jenike and Johanson's Australian office
The Chemical Engineer, December 2009/January 2020, issue 942:3, pp 25-31*

Tout naturellement, les études systémiques de mélange ont ouvert des perspectives d'étude des écoulements de poudre dans les dispositifs industriels. La question de l'agitation des poudres se pose alors, en termes de dépense énergétique et de versatilité des installations. Quel dispositif induit quel écoulement pour quelle poudre ? Figure 41.

Les caractéristiques des poudres déterminent leur processabilité (Shah et al., 2017) sans qu'aucun lien direct entre celles-ci et le comportement d'une poudre en situation industrielle ne soit indiscutablement établi. Par exemple, bien que la cohésion d'une poudre soit en première instance le paramètre auquel on cherche à relier l'écoulement et la dynamique des opérations, Vanarase et al. (Vanarase et al., 2013) ont observé dans un mélangeur continu que le temps de séjour de la poudre agitée était lié à sa masse volumique plus qu'à sa cohésion, pour une agitation à faible vitesse, régime dans lequel la poudre n'est pas mise en suspension. Les poudres en question sont des excipients d'intérêt pharmaceutique, leurs masses volumiques apparentes varient entre 0,33 et 0,77 g.cm⁻³ et leurs indices de Carr de 9 à 22, sans relation particulière avec la masse volumique des poudres. L'article conclut sur le fait que si les poudres étudiées avaient des masses volumiques plus proches l'influence de la cohésion aurait sans doute été plus marquée. La complexité des interactions entre les caractéristiques des particules et le comportement des poudres est ainsi toujours au centre des investigations et invite l'expérimentateur à modérer les conclusions de ses observations.

Le coefficient de friction interne et la cohésion, que l'on peut mesurer en cellule de cisaillement, sont souvent utilisés pour représenter la coulabilité des poudres. Pour autant, ces mesures réalisées en régime quasi-statique sont difficiles à transposer aux écoulements tels qu'on peut les rencontrer dans les opérations unitaires (Leturia et al., 2014). Un coefficient de friction apparent ou une viscosité apparente peuvent être mesurés dans des rhéomètres à poudre de type plan ou couette (GDR MiDi, 2004), donnant alors la perspective

d'établir des corrélations liant ces caractéristiques rhéologiques et les paramètres procédés pour prédire une puissance consommée pour agiter une poudre, ou l'efficacité de l'agitation en termes d'homogénéisation, par exemple. Dans cet objectif, notre démarche a été d'exploiter la méthodologie de rhéologie systémique implémentée par Jean-François Demeyre et l'analyse dimensionnelle. Les études présentées dans cette partie concernent l'agitation de poudres de différentes caractéristiques physiques en mélangeur Triaxe® et dans une maquette conçue à cet effet, ainsi que l'influence de paramètres opératoires tels le taux de remplissage du mélangeur et la vitesse d'agitation.

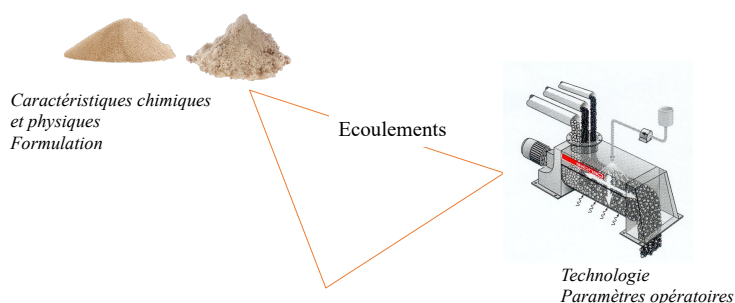


Figure 41 - Les écoulements au sein de la poudre en relation avec les propriétés des matières premières et les paramètres procédés

a. Rhéologie systémique et propriétés des poudres

Des corrélations entre le nombre de puissance et le nombre de Froude calculés avec la vitesse caractéristique u_{ch} dans le mélangeur Triaxe, pour de la semoule (équation (17)) et du lactose (équation (18)), ont été obtenues à partir des résultats de la thèse de Jean-François Demeyre ((André et al., 2014)).

$$Np_m = 14,96Fr_m^{-0,99} \quad (17)$$

$$Np_m = 1,81Fr_m^{-1,5} \quad (18)$$

Les paramètres de la corrélation sont différents pour les deux poudres, nous avons cherché à étendre ces résultats à d'autres poudres de coulabilité variées (Tableau 9), seule la semoule peut être qualifiée de poudre à écoulement libre par la classification de Carr ($IC < 15\%$). Ceci a été réalisé dans la thèse de Léonard Legoix (Legoix, 2016) et publié dans (Legoix et al., 2017a).

Tableau 9 - Caractéristiques et indices d'écoulement : diamètre médian, masse volumique des particules mesurée par pycnométrie hélium, masse volumique ρ_{vac} , Indice de Carr, cohésion à 4 kPa mesurée dans la cellule de cisaillement du FT4.

Poudre	d_{50} (μm)	$\rho_{particules}$ (kg.m ⁻³)	ρ_{vac} (kg.m ⁻³)	Carr (%)	Cohésion (kPa)
Semoule	312	1463	679	5,8	$0,244 \pm 0,098$
Lactose	61	1533	661	16,9	$0,745 \pm 0,116$
Lactose fin	26	1539	495	22,5	$1,115 \pm 0,133$
Talc	16	2772	501	40,9	$0,535 \pm 0,070$
Sable	33	2643	887	27,4	$0,593 \pm 0,039$

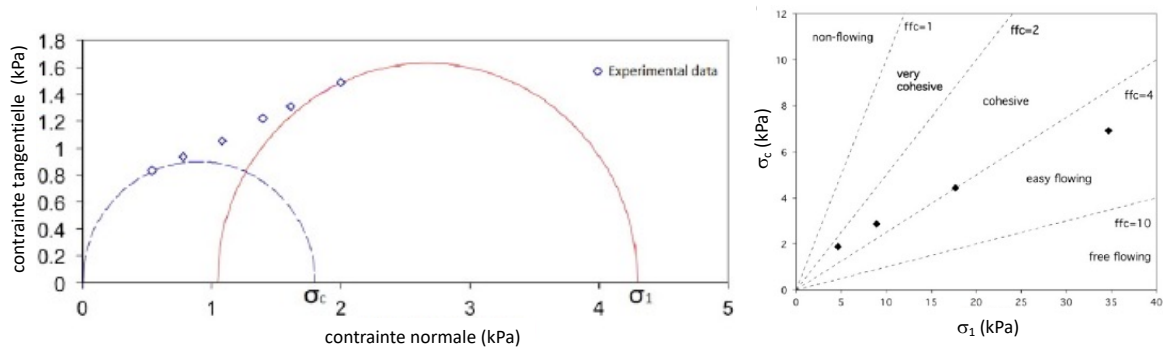


Figure 42 - Lieux cinématiques de rupture (gauche) et fonction d'écoulement (droite) du lactose

La coulabilité est représentée par la cohésion mesurée à partir de la courbe des lieux de rupture pour une pré-consolidation de 4 kPa (interception avec l'axe des ordonnées) dans la cellule de cisaillement du FT4. Les mesures sont exploitées selon la méthode de Jenike (Figure 42). C'est un choix arbitraire, nous avons simplement choisi cette faible consolidation pour représenter l'état de la poudre dans la cuve. 30 kg de chaque poudre sont agités, les puissances obtenues à partir des mesures de couple sont tracées en fonction de la vitesse caractéristique d'agitation sur la Figure 43.

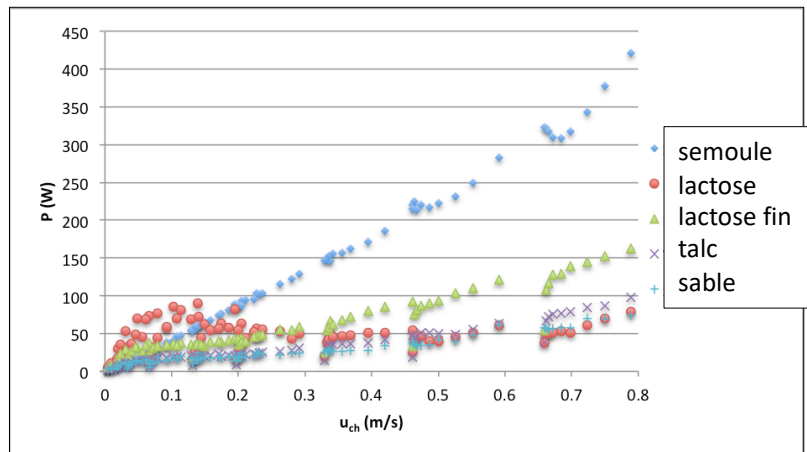


Figure 43 – Puissance en fonction de la vitesse d'agitation, mélangeur Triaxe, 30 kg de poudre

Pour la semoule, la puissance varie linéairement avec la vitesse caractéristique alors que pour les poudres cohésives la puissance est moins sensible à u_{ch} . En réalité les points forment un ensemble de courbes croissantes, chaque ensemble correspond à une vitesse de rotation fixée et une augmentation de la vitesse de giration. La puissance varie en fonction de la vitesse de giration. Les deux tendances sont ainsi bien distinctes. Le lactose fin, bien que cohésif a un comportement intermédiaire que l'on peut expliquer par un phénomène d'auto-granulation durant l'agitation. Le milieu contient rapidement des agglomérats et non plus des particules individuelles. Le tracé du nombre de puissance et du nombre de Froude calculés sur la base de la vitesse u_{ch} montre des corrélations satisfaisantes (Figure 44), les résultats seront exploités sous cette forme.

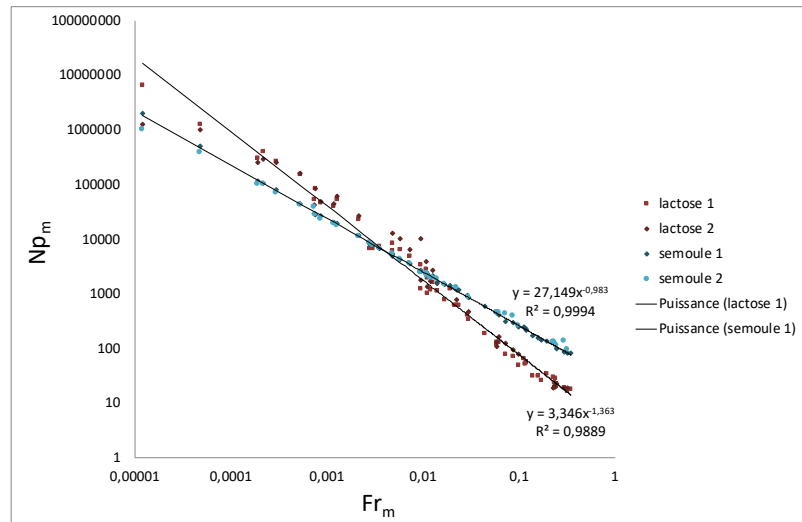


Figure 44 - Nombre de puissance en fonction de nombre de Froude pour la semoule et le lactose, pour établissement des corrélations

On retrouve ainsi la tendance observée par Jean-François Demeyre, à savoir que les poudres cohésives et celles à libre écoulement ont des signatures sensiblement différentes et afin de consolider cette étude nous avons voulu exprimer les paramètres de la corrélation $Np_m = a Fr_m^b$ en fonction de la cohésion. Pour cela il a été choisi de d'ajouter aux produits seuls neuf mélanges de semoule et de lactose de composition 10% à 90% de lactose ainsi que 9 mélanges de semoule et de lactose fin (10 à 90%), soit finalement 23 poudres. Les paramètres identifiés sont tracés sur la Figure 45 (a) et (b) sur laquelle on distingue les poudres à libre écoulement (indice de Carr < 15% et $c < 0,3$ kPa) des poudres cohésives (indice de Carr > 15% et $c > 0,6$ kPa) Figure 45 (c).

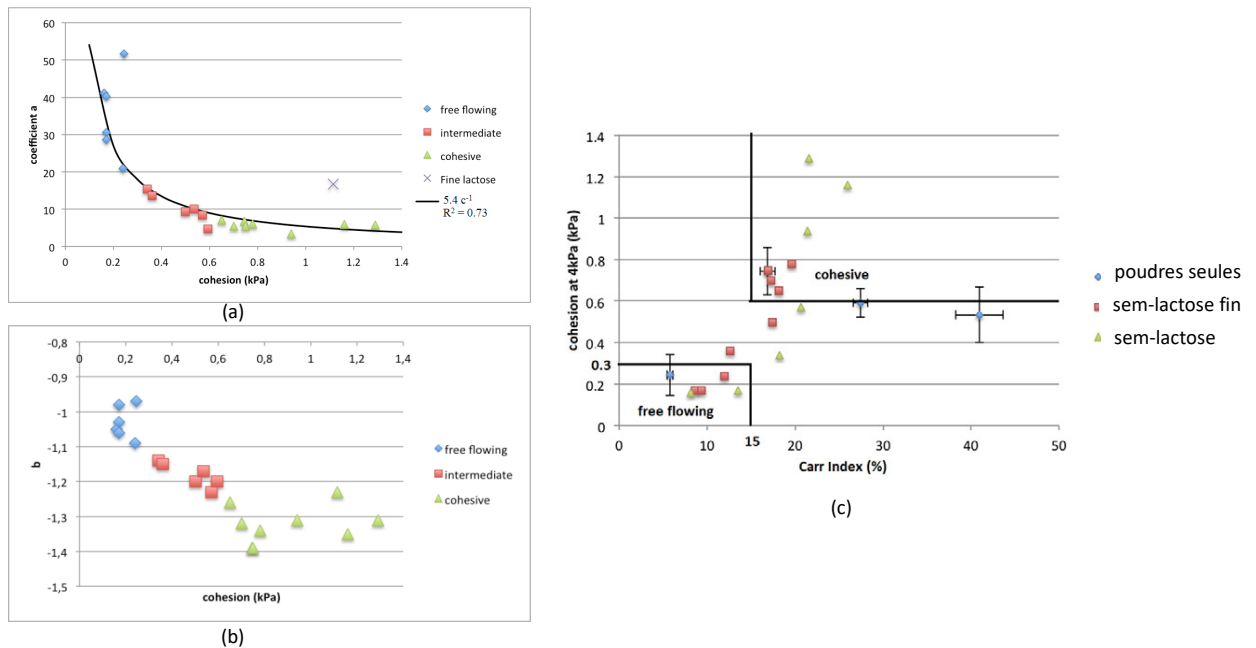


Figure 45 – (a) (b) Paramètres de la corrélation $Np_m = a Fr_m^b$ en fonction de la cohésion mesurée pour une pré-consolidation de 4 kPa, (c) distinction entre poudres à libre écoulement et poudres cohésives

Les paramètres, a et b varient en fonction du taux de remplissage f du mélangeur, le Tableau 10 synthétise les résultats obtenus. Le taux de remplissage est défini comme le rapport du volume occupé par la poudre (calculé à partir de la masse introduite et de la masse volumique vrac). Nos résultats ne sont pas interprétés en termes de puissance massique comme il est courant de le faire avec les liquides, parce que la masse de poudre réellement agitée pendant la rotation n'est pas connue. En revanche le taux de remplissage est un paramètre important pour l'agitation des solides divisés, puisqu'il définit l'espace libre pour la dilatance de la poudre, nécessaire à sa mise en mouvement. Les taux de remplissages varient entre 0,42 et 0,94%, ce sont des valeurs élevées par rapport à l'usage en mélangeur convectif mais ce sont les valeurs préconisées par le constructeur, en lien avec la géométrie du mélangeur.

Tableau 10 – paramètres de la relation de procédé en fonction de la cohésion de la poudre c et du taux de remplissage f du mélangeur

Poudre		$Np_m = aFr_m^b$	
	Cohésion (kPa)	a	b
Libre écoulement	$c < 0,3$	$62f - 14$	-1
Cohésif	$c > 0,6$	6	$-0,52f - 0,92$

Discussion

Les résultats ont été exprimés en fonction de la cohésion c à 4kPa en première instance, pour faire apparaître des effets de cohésion. Mais finalement c est tellement difficile à déterminer précisément et dépendant de la contrainte appliquée que l'on peut se demander, en perspective, s'il ne serait pas judicieux d'introduire différemment les propriétés des poudres.

La vitesse caractéristique introduite par l'analyse dimensionnelle lors des études systémiques, u_{ch} , est pertinente pour décrire les phénomènes avec les poudres à écoulement libre, c'est le cisaillement imposé à la poudre qui génère l'écoulement et probablement, une circulation de la poudre dans une zone élargie autour des pales. En revanche l'agitation des poudres cohésives dépend de la vitesse de giration. Dans ce cas le cisaillement imposé par les pales n'engendre pas de circulation, la poudre est tassée et « découpée ». C'est la giration qui en quelque sorte distribue l'agitation autour de l'axe vertical. Pour explorer les écoulements engendrés par le mobile il a été décidé de réaliser une maquette de mélangeur convectif pour d'une part travailler sur de plus petites quantités de poudre et d'autre part simplifier le mouvement du dispositif d'agitation en travaillant autour d'un seul axe. La maquette est conçue dans un matériau transparent afin d'y réaliser des observations (Figure 46).

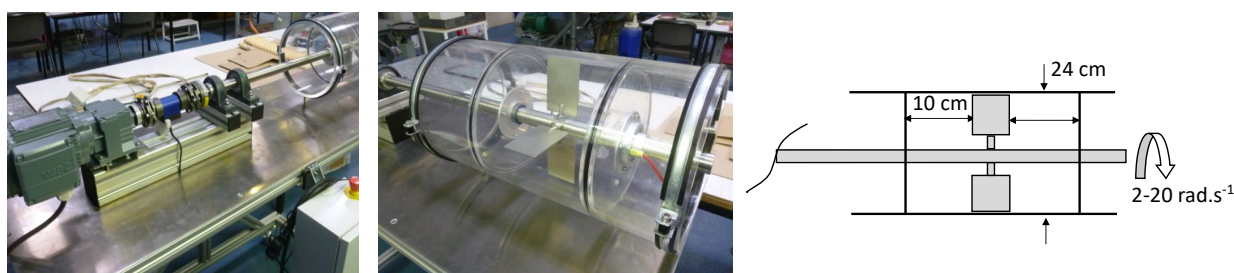


Figure 46 – Maquette de mélangeur convectif batch : moteur et couplemètre, cuve cylindrique avec parois latérales mobiles, dimensions et conditions opératoires nominales

b. Une phénoménologie au-delà des échelles

Les pales de l'agitateur de la maquette ont les mêmes dimensions que celles du Triaxe (10*6 cm) et l'entrefer de 0,3 mm a été respecté. En revanche, il est impossible d'avoir une similitude géométrique complète car les cuves ont des formes différentes et le dispositif d'agitation est fixé différemment sur les deux arbres. L'envergure des pales du Triaxe est de 45 cm pour 24 cm dans la maquette. Il est ainsi impossible de conserver un ratio identique entre les dimensions de pales et l'envergure des agitateurs. Les dimensions et les vitesses caractéristiques qui sont utilisées dans le calcul du nombre de Froude et du nombre de puissance pour établir les corrélations sont données dans le Tableau 11. Dans l'objectif d'établir une correspondance entre les deux dispositifs, seule la rotation autour de l'axe horizontal (incliné de 15 degrés) est considérée pour le Triaxe.

Tableau 11 – Calcul du nombre de Froude et du nombre de puissance dans la maquette (gauche) et dans le Triaxe (droite) pour comparaison des corrélations ; P est la puissance calculée à partir des mesures de couple

$Fr = R_1 \omega^2 / g$	$Fr = R_2 \omega_r^2 / g$
$Np = P / (\rho \omega^3 R_1^5)$	$Np = P / (\rho \omega_r^3 R_2^5)$
$Np = a Fr^b$	

Le nombre de puissance a été tracé en fonction du nombre de Froude pour la semoule et le lactose, à deux taux de remplissage différents ($f=0,42$ qui est un taux de remplissage classique en mélangeur convectif et $f=0,83$ qui est le taux de remplissage conseillé pour le Triaxe) sur la Figure 47. Seuls quatre points de fonctionnement sont comparables dans les deux géométries, mais on peut y voir que les corrélations sont proches. Ainsi, la phénoménologie liée à l'agitation dans ces deux dispositifs est transposable de l'un à l'autre. Au-delà, la maquette ainsi conçue, polyvalente dans le sens où la distance entre les parois latérales est modifiable et où il est possible de l'incliner par rapport à l'horizontale, peut être exploitée comme un outil pour la conception et le changement d'échelle des mélangeurs convectifs.

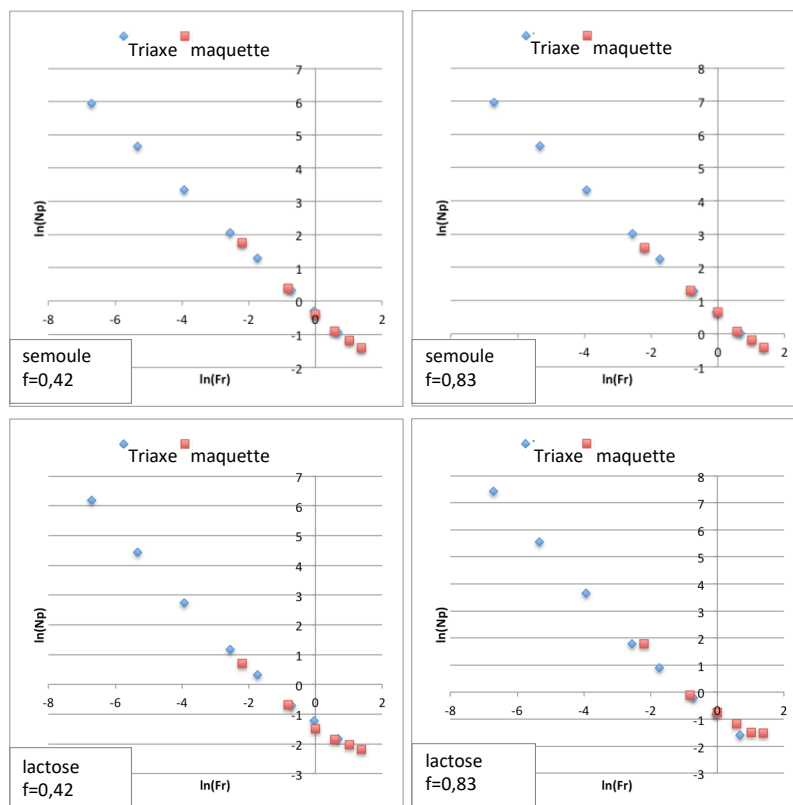


Figure 47 – Comparaison des corrélations nombre de Froude-nombre de puissance pour la semoule et le lactose à différents taux de remplissage f

c. Dynamique d'agitation

Dans la maquette, pour des vitesses angulaires de 3 rad.s^{-1} à 18 rad.s^{-1} le nombre de Froude varie de 0,1 à 4 (voir Tableau 12). Ces valeurs, associées à l'observation de l'écoulement (Figure 48) de la poudre agitée au niveau de la surface des pales pour de la semoule et pour du lactose, nous ont conduit à identifier deux régimes d'écoulement, par analogie avec les travaux de Mellmann ((Mellmann, 2001)).

Tableau 12 - Vitesses angulaires ω et nombre de Froude pour identification des paramètres de la corrélation $Np=aFr^b$ dans la maquette

$\omega \text{ (rad.s}^{-1}\text{)}$	3	6	9	12	15	18
Fr	0,1	0,4	1	1,8	2,8	4

Lorsque le nombre de Froude est inférieur à 1, les pales convoient de la poudre à leur sortie du lit et on peut observer un écoulement de celle-ci à leur surface tout au long de la rotation, c'est un régime de roulement. Pour la semoule cet écoulement est régulier alors que pour le lactose il se déroule en avalanches intermittentes. A Froude supérieur à 1 la poudre est éjectée des pales et retombe en cataracte en avant de celles-ci, c'est un régime de cataracte. L'agitation de la poudre en dehors du lit résulte d'une compétition entre forces centrifuges et gravité, tout comme dans un mélangeur à tambour. Ces écoulements « de surface » permettent à la poudre de rejoindre la zone d'agitation principale, ils seront le siège de mécanismes de mélange.

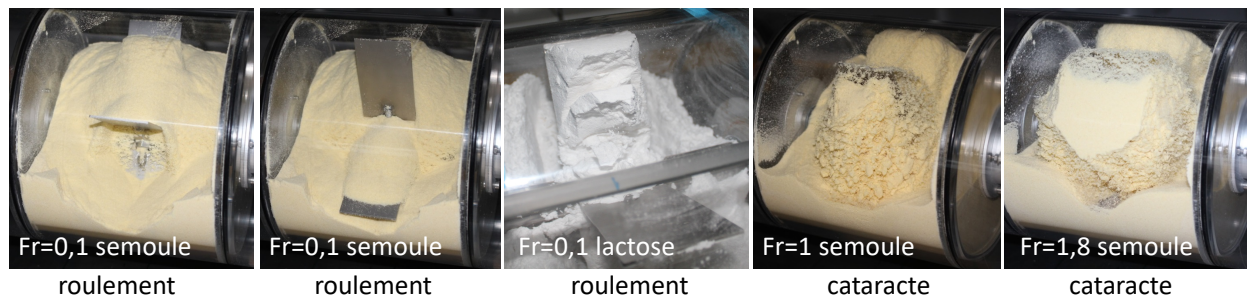


Figure 48 – Écoulements de poudre à la surface du lit en fonction du nombre de Froude ; régimes de roulement et de cataracte

Les paramètres a et b identifiés diffèrent en fonction du régime d'écoulement, de la poudre agitée, de l'inclinaison des pales et du taux de remplissage volumique de la cuve (Tableau 13) :

- a dépend de la poudre et du taux de remplissage, indépendamment du régime et de l'inclinaison des pales ;
- b dépend principalement du régime, pour la semoule il ne varie pas en fonction du taux de remplissage et de l'angle d'inclinaison des pales, pour le lactose il est plus sensible à ces conditions opératoires.

Tableau 13 - Corrélations identifiées pour de la semoule et du lactose dans la maquette de mélangeur convectif, en fonction de l'orientation des pales, du taux de remplissage volumique f et du régime d'agitation

$Np = aFr^b$			a		b		r^2	
poudre	pales	f	roulement	cataracte	roulement	cataracte	roulement	cascade
semoule	droites	0,42	0,65	0,63	-0,98	-0,71	0,999	0,991
		0,63	1,15	1,18	-0,95	-0,67	0,999	0,999
		0,83	1,84	1,79	-0,89	-0,75	0,999	0,978
	30°	0,42	0,64	0,67	-0,92	-0,84	0,991	0,992
		0,63	1,30	1,32	-0,93	-0,79	0,998	0,998
		0,83	2,12	1,99	-0,86	-0,81	0,997	0,942
lactose	droites	0,42	0,22	0,22	-0,99	-0,51	0,999	0,986
		0,63	0,50	0,51	-0,96	-0,72	0,998	0,991
		0,83	0,41	0,44	-1,18	-0,58	0,985	0,952
	30°	0,42	0,24	0,24	-1,08	-0,69	0,999	0,995
		0,63	0,47	0,49	-1,07	-0,84	0,998	0,999
		0,83	0,33	0,33	-1,40	-0,49	0,999	0,935

Dans le même dispositif rempli de liquide, le nombre de puissance serait exprimé en fonction du nombre de Reynolds qui rend compte du rapport entre les forces d'inertie et les forces visqueuses dans la zone immergée. Il qualifie le type d'écoulement qui s'établit au sein du liquide, et le nombre de Froude traduit le rapport entre les forces centrifuges et la gravité, à savoir la déformation en surface. Par analogie, le nombre de Froude traduit la déformation du milieu imposée par les pales, celle-ci est visible en surface et c'est l'exposant b qui traduit les phénomènes observés. Il est alors différent en régime de roulement ou de cataracte et peut dépendre du niveau de consolidation de la poudre. En régime de roulement des valeurs identiques sont observées dans nos deux dispositifs. Pour le lactose il est différent pour un remplissage de 83%, la poudre est compressible et sa consolidation plus importante qu'à 42% ou 63%. La valeur -1,4 observée dans ce cas pour les pales inclinées en régime de roulement est par ailleurs identique à celle que l'on avait pour le lactose dans le Triaxe, au même taux de remplissage. Le paramètre a est en lien avec l'écoulement au

sein de la poudre. Il dépend de ses propriétés rhéologiques et ainsi de la nature de la poudre et de la répartition des contraintes internes. La masse volumique de la poudre et d'éventuels effets de parois sont susceptibles d'intervenir également. Les valeurs de a obtenues dans les deux dispositifs sont sensiblement différentes bien que toujours plus importantes pour la semoule que pour le lactose ou les poudres cohésives.

d. Discussion

Les observations réalisées et les mesures de couple associées à une première analyse dimensionnelle nous ont permis de dégager des tendances et de cerner les phénomènes physiques impliqués.

Introduire le nombre d'inertie (Ghadiri et al., 2020) dans l'analyse, permettrait de prendre en considération les propriétés de la poudre, son état de consolidation ainsi que des ratios entre distances caractéristiques du dispositif (Radl et al., 2012). Dans sa forme générale (équation (19)) le nombre d'inertie représente le rapport entre la déformation de la poudre imposée par un cisaillement ($\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement appliqué à la poudre, en s^{-1}) et le réarrangement des grains sous la pression de confinement (σ est la contrainte normale de confinement, en Pa). Pour des grains de taille caractéristique d (m) et de masse volumique ρ ($kg.m^{-3}$) :

$$I = \frac{\dot{\gamma}d}{\sqrt{\sigma/\rho}} \quad (19)$$

Il représente la vitesse de déformation imposée par le cisaillement exercée sur la poudre, divisée par la vitesse de réarrangement des particules. On le décrit également comme un rapport de temps caractéristiques. Lorsque la poudre se relaxe plus vite qu'elle n'est sollicitée, la poudre est déformée en régime quasi-statique, c'est le cas pour $I < 10^{-3}$. Un régime d'écoulement dense est défini pour $10^{-3} < I < 10^{-2}$, au-delà l'écoulement est collisionnel.

Makishima et Shirai ont proposé en 1968 (Makishima and Shirai, 1968) une corrélation entre le nombre de puissance et un nombre de Froude modifié N_m dans lequel intervient un angle de friction interne pour une cuve agitée par un dispositif en rotation autour d'un axe vertical (équation (20)).

$$N_p = 20N_m^{-1} + 50 \quad (20)$$

N_m est le ratio entre les forces d'inertie et les forces de cisaillement qui s'exercent sur la poudre, il peut être vu comme la combinaison d'un nombre de Froude ou d'inertie avec un coefficient de friction.

Les avancées de cette dernière décennie en rhéologie des poudres et description des écoulements denses (Chevoir et al., 2009) ouvrent la possibilité de décrire l'écoulement des poudres à partir d'un coefficient de friction effectif, μ_{eff} , pour les poudres à écoulement libre. Ce dernier rend compte des frottements entre les grains à l'état quasi-statique mais également des effets de la vitesse de cisaillement imposée par l'agitation. Il est possible de l'étendre au cas des poudres cohésives (Gu et al., 2014), (Berger et al., 2015). A cet effet, l'équivalent d'un nombre de Bond est introduit pour traduire le rapport entre les forces interparticulaires et les forces de gravité (Capece et al., 2015).

Aux nombres adimensionnels discutés dans la partie précédente ont été ajoutés le nombre d'inertie et le coefficient de friction apparent, l'ensemble est présenté dans le tableau (14). Les notations uniformisées sont les suivantes :

R_a	longueur caractéristique de l'agitateur	m
R_T	longueur caractéristique de la cuve	m
ω	vitesse angulaire du dispositif	rad.s ⁻¹
$v=\omega R_a$ ou $v=\omega R_T$	vitesse linéaire du dispositif	m.s ⁻¹
P	puissance dissipée dans le milieu par d'agitateur	W
ρ_{app}	masse volumique apparente	kg.m ⁻³
ρ	masse volumique des particules	kg.m ⁻³
d	diamètre des particules	m
t_m	temps de mélange	s
σ_c	contrainte cohésive apparente	Pa
F_c	forces interparticulaires de cohésion	N
$\dot{\gamma}$	taux de cisaillement	s ⁻¹
τ	contrainte tangentielle de cisaillement	Pa
σ	contrainte normale de confinement	Pa

Le nombre de Froude est un indicateur de l'écoulement en surface libre (forme de la surface dans un liquide, par exemple), les caractéristiques du milieu n'y interviennent pas. Le nombre d'inertie, I , concerne les situations de cisaillement de la poudre en général, les caractéristiques de la poudre y interviennent. On peut voir que le nombre d'inertie, pour une poudre cisailée par un mobile d'agitation à une vitesse linéaire v et dont les particules se ré-organisent sous l'effet de la gravité est, au ratio d/R_a près, la racine carrée du nombre de Froude.

Le coefficient de friction effectif, μ_{eff} , pour des poudres non cohésives, est le rapport de la contrainte tangentielle appliquée à la poudre pour la maintenir en écoulement à la contrainte normale. Il est habituellement défini dans les situations que l'on retrouve en rhéologie. Si dans nos dispositif d'agitation on peut considérer que τ est proportionnel au couple mesuré, alors μ_{eff} peut être corrélé au nombre de puissance à l'échelle de la poudre et donc à I . C'est ce qui est observé pour les écoulements denses, en régime inertiel (GDR MiDi, 2004).

Les bases d'une analyse dimensionnelle complète, faisant intervenir les caractéristiques des poudres sont maintenant posées et feront partie du projet pour les recherches à venir.

Tableau 14 - Récapitulatif des nombres adimensionnels manipulés dans nos études ou mis en avant dans les discussions

Nombre	Signification	Situation		
		agitateur	cuve tournante	poudre
Nombre de puissance	Puissance dissipée par l'agitateur/puissance mécanique	$Np = \frac{P}{\rho_{app} \omega^3 R_a^5}$		
	Coefficient de trainée	$Np = \frac{P}{\rho_{app} v^3 R_a^2}$		
Coefficient de friction effectif				$\mu_{eff} = \frac{\tau}{\sigma}$
Nombre de Froude	Forces centrifuges/forces de pesanteur	$Fr = \frac{R_a \omega^2}{g}$	$Fr = \frac{R_T \omega^2}{g}$	
		$Fr = \frac{v^2}{g R_a}$	$Fr = \frac{v^2}{g R_T}$	
Nombre d'inertie	Temps de relaxation des particules / temps de déformation imposé par le système	$I = \frac{v}{\sqrt{gd}}$ si réarrangement des particules sous leur propre poids		$I = \frac{\dot{\gamma} d}{\sqrt{\sigma/\rho}}$
Temps de mélange réduit	Temps de mélange/temps caractéristique imposé par le dispositif	$\Theta_m = \frac{t_m v}{R_a}$	$\tau_m = \frac{t_m v R_T}{2d^2}$	
Nombre de cohésion	Contrainte cohésive apparente/contrainte inertielle		$\Pi_c = \frac{\sigma_c}{\rho_{app} g R_a}$	
Nombre de Bond	Forces interparticulaires cohésives/poids			$Bo_{g,AB} = \frac{F_c}{\rho g \frac{\pi}{6} d^3}$

Pour revenir au mélange, la diversité des phénomènes de déformation du milieu et des types d'écoulement qui sont mis en jeu lors de l'agitation de la poudre suggère l'établissement de mécanismes de mélange associés aux différentes poudres dans les différents régimes. Ce point a également été traité par Léonard Legoix, il est présenté dans la partie suivante.

3.2 Expériences de traçage et modèle de Markov pour identifier des mécanismes de mélange à l'échelle mésoscopique

Quels mécanismes mènent à quels mélanges (Figure 49) ? Faisant référence à la conclusion de « *De l'estimation de l'homogénéité à la dynamique de mélange* » p. 47, cette partie est consacrée à l'exploration des mécanismes de mélange et de ségrégation à une échelle intermédiaire.

La méthode d'analyse en ligne de l'homogénéité des mélanges qui a été développée est basée sur l'acquisition et l'analyse d'images, elle n'a pas une résolution suffisante pour travailler sur des mélanges de poudres fines, ni sur des mélanges faiblement dosés, qui sont pourtant répandus dans l'industrie. Les techniques spectroscopiques proche infrarouge pourraient répondre à ce besoin ((Berntsson et al., 2002)), soit à partir de sondes implantées sur les parois des installations, soit utilisées pour scanner des échantillons et y déterminer la distribution spatiale des constituants. En réalité, l'étendue des méthodes non-invasives est grande mais finalement peu offrent la possibilité d'une analyse en ligne, rapide et donc ne nécessitant pas trop de post-traitements ((Nadeem and Heindel, 2018)).

Lorsque l'analyse en ligne n'est pas possible, des prélèvements peuvent être effectués en sortie des dispositifs et doivent être analysés par d'autres méthodes, qui sont adaptées aux constituants du mélange. Par exemple, nous avons dans certaines études eu recours à des dosages chimiques, après dissolution, ainsi que des méthodes par dégradation thermique.

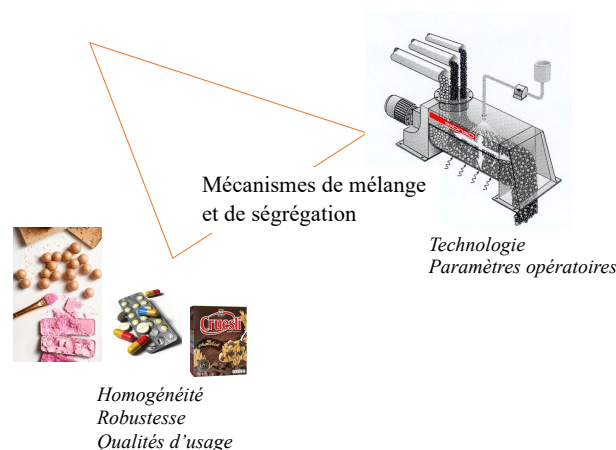


Figure 49 – Les mécanismes de mélange en relation avec les paramètres procédés

a. Expériences de traçage et identification de mécanismes de mélange

Les mécanismes de mélange, convectifs ou diffusifs, résultent directement des écoulements induits par l'agitation des poudres à homogénéiser. La détermination de régimes d'agitation dans la maquette de mélangeur convectif a été mise à profit pour l'étude des mécanismes de mélange en régime de roulement ($Fr < 1$), dans le cas de poudres à écoulement libre et de poudres cohésives. Pour simplifier les expérimentations, comme le montre la Figure 50, les parois latérales ont été placées de telle sorte que le dispositif puisse être fictivement divisé en deux zones verticales : la zone qui comprend les pales et une zone libre située latéralement. Le taux volumique de remplissage du dispositif est de 0,83.

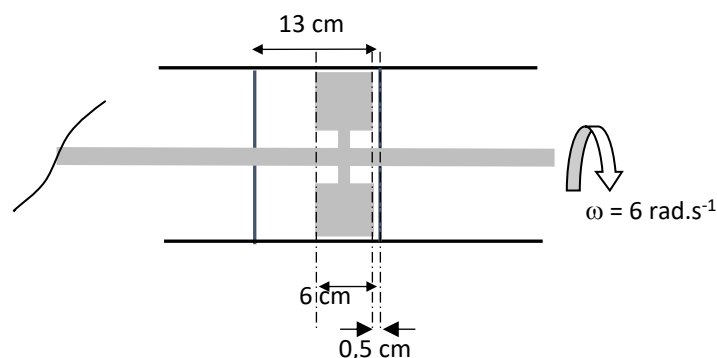


Figure 50 - Configuration du dispositif d'étude des mécanismes de mélange

Exploitant l'avantage de la transparence de l'équipement, une première étude a été réalisée avec de la semoule dont une partie a été colorée par absorption d'iode. La semoule colorée constitue 16,5% en masse du mélange et constitue un traceur pour les observations. Les deux zones verticales sont divisées horizontalement en trois parties de hauteurs égales. Le traceur est initialement disposé dans une cellule, sa répartition dans les six cellules du mélangeur est observée. On peut voir sur la Figure 51 la répartition du traceur selon trois mécanismes identifiés : la convection dans les trois cellules de la zone de rotation de l'agitateur, de la diffusion induite par le cisaillement entre la cellule basse de la zone libre et la zone de l'agitateur ainsi qu'un mécanisme lié à des avalanches qui se déroulent entre le haut de la surface libre et la zone de rotation des pales. Aux temps longs, on observe dans tous les cas une zone stagnante en bas de la zone libre.

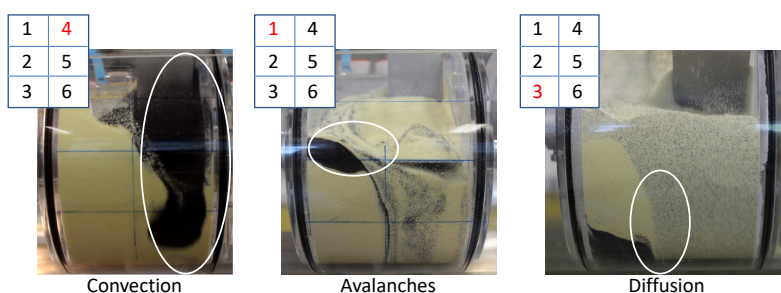


Figure 51 - Mise en évidence de trois mécanismes de mélange par les expériences de traçage

Des cinétiques de mélange sont effectuées par arrêt et prélèvement de la totalité de la poudre cellule par cellule, la composition de chaque cellule est déterminée par analyse d'image. Un second système, de poudres cohésives, a été mis en œuvre. Il s'agit de lactose fin et de talc (16,5 % en masse), la composition des prélèvements est dans ce cas réalisée par thermogravimétrie. L'homogénéité de la composition des six cellules, représentée par le coefficient de variation, est tracée en fonction du temps pour les deux mélanges étudiés. La Figure 52 permet de comparer les cinétiques en fonction de la cellule d'introduction de la poudre minoritaire. Comme prévu, les poudres cohésives se comportent très différemment des poudres à écoulement libre, notamment dans les échanges entre la zone agitée et une zone stagnante. L'introduction en cellule 1 permet d'atteindre le plus rapidement le degré d'homogénéisation final, les avalanches distribuant dès les premiers tours la poudre de la zone libre vers la zone de l'agitateur, la convection permet ensuite d'homogénéiser les trois cellules de cette zone. C'est en revanche l'introduction en cellule 4 qui mène au meilleur niveau d'homogénéité, pour les deux types de poudres, permettant à la diffusion au travers du plan de cisaillement de prendre place de façon plus intense dès les premiers tours.

L'introduction dans la cellule basse de la zone libre, dont une partie est stagnante, mène à un mélange de plus faible homogénéité globale en raison d'une partie stagnante.

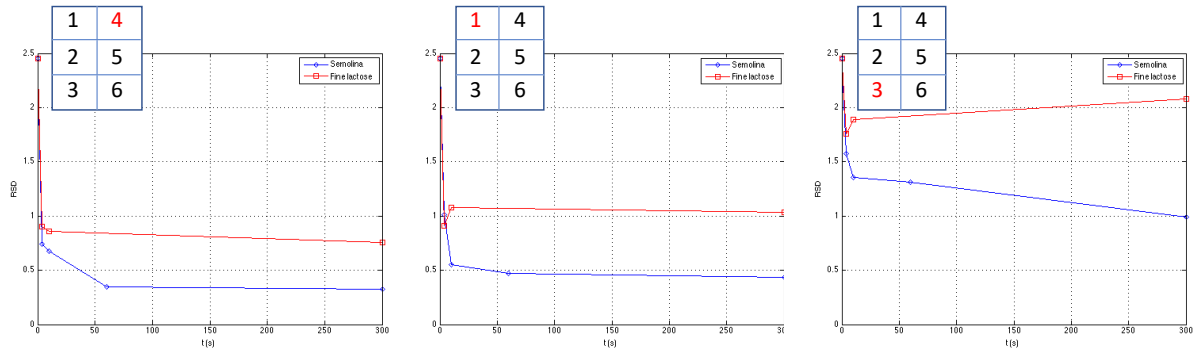


Figure 52 - Cinétiques de mélange selon la cellule d'introduction de l'ingrédient minoritaire pour les systèmes semoule/semoule colorée et lactose fin/talc

b. Mise en œuvre d'un modèle pour identifier les paramètres

Une approche systémique basée sur la modélisation par une chaîne de Markov a été développée afin de déterminer des paramètres expliquant au mieux ces résultats expérimentaux. La chaîne, linéaire et homogène, contient six états qui correspondent aux six cellules du mélangeur. La matrice de transition est construite à partir des trois mécanismes observés, pour les échanges de matière verticaux et horizontaux. Quatre probabilités de transition sont identifiées : c représente la convection verticale entre les cellules de la zone agitée, a représente les avalanches de surface, la diffusion est décomposée en un terme vertical d_v pour la zone libre et un terme horizontal d_h qui rend compte des échanges entre les deux cellules du bas de la zone libre et la zone agitée (Figure 53). Le temps de transition a été défini comme un quart de rotation car il permet de ne considérer que les transitions entre cellules adjacentes.

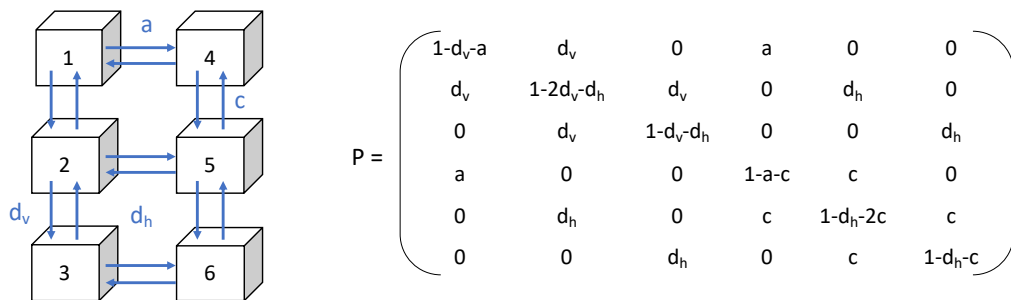


Figure 53 – Définition des probabilités de transition entre les six cellules du mélangeur et matrice de transition du modèle

Enfin, pour un modèle donné basé sur des observations expérimentales, la meilleure matrice de probabilités de transition a été déterminée par optimisation en comparant les résultats de simulation et les données expérimentales, les probabilités de transition obtenues sont présentées dans le Tableau 15 .

Tableau 15 - Probabilités de transition du modèle de mélange identifiées selon les trois mécanismes de mélange par convection, avalanches et diffusion verticale et horizontale

	c	a	d _v	d _h
semoule – semoule colorée	0,4999	0,0347	0,0071	0
lactose fin - talc	0,4511	0,0279	0	0,0001

Les résultats de cette étude sont publiés dans (Legoix et al., 2017c). Pour la semoule et le mélange cohésif, les paramètres de convection identifiés sont proches et les cinétiques de mélange simulées avec ces paramètres permettent de retrouver les résultats expérimentaux dans le cas où le composant minoritaire est introduit dans la cellule 4. Le mélange par convection dans la zone agitée n'est ainsi pas fortement dépendant des propriétés de la poudre.

Les paramètres identifiés pour le mécanisme d'avalanche permettent également de simuler l'homogénéisation de la semoule dans le cas où le traceur est introduit dans la cellule 1, mais les résultats ne sont pas satisfaisants pour l'homogénéisation du mélange lactose fin - talc. Dans le cas des poudres cohésives, dont le niveau de consolidation n'est pas homogène et varie dans le temps, l'emploi d'une chaîne homogène est sans doute limitant.

Enfin, le transfert de masse par processus de cisaillement / diffusion se produit dans les cellules les plus basses du mélangeur, entre la zone agitée et la zone stagnante limitrophe, mais aucun des paramètres verticaux et horizontaux ne permet de simuler les données expérimentales, notamment pour la semoule, le schéma de diffusion proposé est à améliorer.

c. Discussion

Cette étude a permis d'identifier et découpler des typologies d'écoulement et donc des mécanismes de mélange mis en jeu dans différentes conditions opératoires :

- convection par les pales,
- avalanches de surface
- diffusion au niveau du plan de cisaillement créé entre la partie de la poudre convoyée par les pales et les zones immobiles sur les côtés.

Elle nécessite néanmoins d'être complétée pour tenir compte d'une gamme plus large de conditions expérimentales mais surtout, le découpage actuel ne permet pas de rendre compte des échanges de matière observés d'arrière en avant du mélangeur :

- dans la zone de l'agitateur, la poudre est en rotation dans le sens des pales c'est un mouvement de type « rotationnel » ;
- dans la zone libre un mouvement de convection de surface (Figure 54), induit par les avalanches qui prennent place à la surface libre du fait de la rotation des pales.

Afin d'affiner le modèle, le découpage actuel en 2-D devrait être revu en 3-D pour tenir compte de ces éléments.

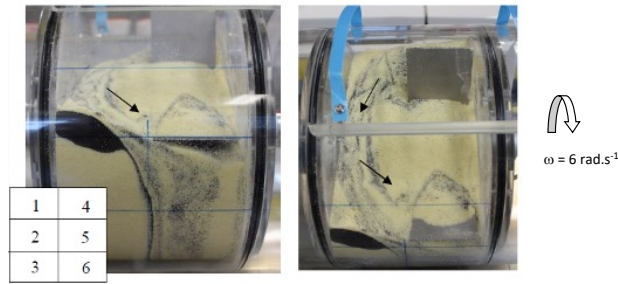


Figure 54 - Convection générée par les avalanches de surface

Ces premiers résultats confirment l'intérêt, notamment pour les poudres cohésives, de générer des courants de circulation dans les mélangeurs, soit par des pales inclinées, soit en travaillant dans des mélangeurs continus, ou d'utiliser des mélangeurs convectifs planétaires afin de distribuer au mieux la zone agitée dans le volume du dispositif. Ils ouvrent la voie d'une méthodologie de modélisation de tels équipements. Ils devraient être complétés pour inclure l'influence des paramètres du processus (taux de remplissage, vitesse de rotation, cohésion de la poudre) sur les paramètres du modèle de Markov avec l'objectif d'implémenter un tel modèle mésoscopique dans un modèle élargi, décrivant un mélangeur complet.

3.3 Caractéristiques des particules, forces mises en jeu et paramètres environnementaux

En contexte industriel, la maîtrise totale des caractéristiques des matières premières n'est pas toujours assurée par les fournisseurs et l'on observe parfois une variabilité de la forme ou de la distribution des tailles des particules, de produits pulvérulents alors que ces caractéristiques influent considérablement sur les propriétés d'écoulement de la poudre (Liu et al., 2008), cruciales dans les opérations de transformation et la manutention des produits.

La coulabilité des poudres est par ailleurs affectée par les conditions ambiantes. Tomasetta et al. (Tomasetta et al., 2014) ont mis en évidence la modification des paramètres rhéologiques à haute température, en lien avec la modification des contacts entre les particules. Même si les poudres ne sont pas soumises à des températures extrêmes, des cycles de température jour/nuit dans un stockage en extérieur pour lequel l'humidité n'est pas régulée peut suffire à modifier ces contacts, par condensation capillaire. De la même façon, la production dans des conditions ambiantes non régulées mènent parfois aux rejets de certains lots.

Trois études sont présentées dans cette partie (Figure 55). Dans un premier exemple, un modèle semi-empirique permettant d'estimer les caractéristiques d'écoulement d'une poudre à partir de ses caractéristiques physiques sera introduit. Un second exemple, une étude de tribo-électrification de poudres de polyéthylène en lit fluidisé, permettra d'aborder la problématique de l'électrostatique ainsi qu'un moyen de s'en prémunir. Pour finir une étude de l'impact du vieillissement d'une poudre extinctrice sur ses propriétés d'usage sera présentée.

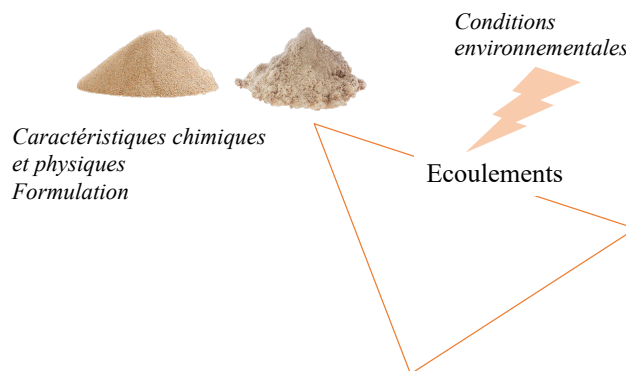


Figure 55 - Focus sur les propriétés des poudres en relation avec leurs caractéristiques microscopiques et les conditions environnementales

a. Établissement d'une relation entre les caractéristiques microscopiques des poudres et leurs propriétés d'écoulement

Pour deux particules A et B en contact ou proches l'une de l'autre, le nombre de Bond granulaire $Bo_{g,AB}$ représente le rapport entre les forces attractives interparticulaires et les forces de gravité (équation (21) formulée pour des forces de Van der Waals, $F_{vdw,AB}$, W_{AB} représentant la moyenne algébrique du poids des deux particules).

$$Bo_{g,AB} = \frac{F_{vdw,AB}}{W_{AB}} \quad (21)$$

Les forces adhésives de contact telles que définies par Hamaker (Hamaker, 1937) sont uniquement valables pour des particules dont la surface est lisse. Des modèles ont été

proposés pour tenir compte d'irrégularités de surface, dont le modèle de Rumpf modifié qui est décrit par Chen et al. (Chen et al., 2008).

Le terme W_{AB} (équation (22)) est la moyenne géométrique du poids des particules A et B, de diamètres d_A et d_B (m) et de masses volumiques $\rho_{s,A}$ et $\rho_{s,B}$ (kg.m⁻³) respectivement, g étant l'accélération de la pesanteur (m.s⁻²).

$$W_{AB} = \frac{\pi}{6} g \sqrt{\rho_{s,A} \rho_{s,B} d_A^3 d_B^3} \quad (22)$$

Le modèle de représentation pour le nombre de Bond granulaire ainsi défini est schématisé sur la Figure 56. En supposant que les constantes de Hamaker (A), le diamètre des aspérités des deux particules (d_{asp}) et leurs masses volumiques (ρ) soient identiques, $Bo_{g,AB}$ peut être calculé par l'équation (23) où $\hat{d}$ est la moyenne harmonique des diamètres d_A et d_B .

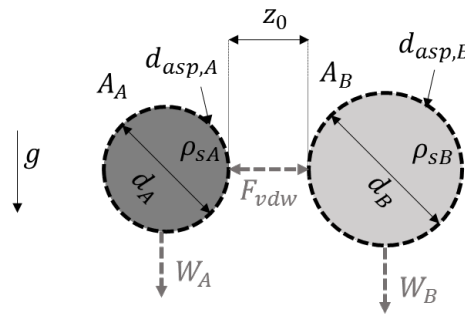


Figure 56 - Modèle de représentation pour le calcul du nombre de Bond granulaire entre deux particules A et B éloignées d'une distance z_0 dont les aspérités de surface sont représentées par leur diamètre $d_{asp,A}$ et $d_{asp,B}$ et dont les constantes de Hamaker sont notées A_A et A_B

$$Bo_{g,AB} = \frac{A}{6\pi g z_0^2 g \rho_s} \times \frac{\hat{d}}{\sqrt{d_A^3 d_B^3}} \left(\frac{1}{2 \left(1 + \frac{d_{asp}}{2z_0} \right)^2} + \frac{3d_{asp}}{d_{asp} + \hat{d}} \right) \quad (23)$$

Ainsi défini, le nombre de Bond granulaire est lié à la cohésion interparticulaire et ne représente pas forcément le comportement d'une poudre dont le niveau de consolidation peut être variable. Pour autant, Castellanos et al. (Castellanos, 2005) ont reporté qu'il pouvait rendre compte de l'écoulement de poudres cohésives et plusieurs auteurs (Huang et al., 2015) (Capece et al., 2015) l'ont corrélé avec la fonction d'écoulement de poudres, mesurée en cellule de cisaillement (équation (24)).

$$ff_c = \alpha \cdot Bo_g^{-\beta} \quad (24)$$

Ceci constitue une véritable avancée pour l'application des modèles aux poudres manipulées dans l'industrie. On peut dès lors prévoir l'effet d'un changement de granulométrie ou d'une modification de surface sur la fonction d'écoulement de la poudre avec un simple modèle. Établie pour des poudres d'intérêt pharmaceutique, nous avons cherché à savoir si cette corrélation pouvait être étendue à des poudres ayant des masses volumiques très différentes : oxydes d'alumine et de zircone. D'autre part la fonction d'écoulement ff_c a été établie avec une cellule de Schulze et nous avons voulu vérifier que le modèle était transposable à d'autres mesures, par exemple avec la cellule de cisaillement

du rhéomètre FT4 (Freeman technology), plus ergonomique et de plus en plus utilisée, notamment dans l'industrie. Au-delà, notre intention était d'explorer la sensibilité du calcul du nombre de Bond aux différents paramètres et de donner une signification physique aux paramètres de la corrélation pour étudier sa robustesse. Ces travaux, réalisés dans le cadre de la thèse de Martin Giraud (en cours, démarrée en janvier 2018), sont publiés dans (Giraud et al., 2020).

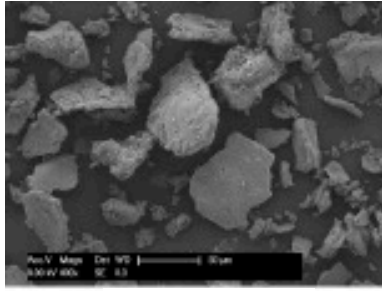
Les cinq poudres utilisées dans cette étude sont une alumine Al_2O_3 C, une alumine granulée Al_2O_3 G, un oxyde de zircon ZrO_2 C, un oxyde de zircon granulé ZrO_2 G et un oxyde d'Yttrium Y_2O_3 C. Leurs masses volumiques vraies ont été mesurées au pycnomètre à hélium AccuPyc II 1340® (Micromeritics), les granulométries ont été effectuées au granulomètre laser Mastersizer 3000® (Malvern) en dispersion liquide afin d'assurer une bonne dispersion des agglomérats et les constantes de Hamaker sont calculées par l'équation de Frenkel (la composante dispersive de l'énergie de surface des grains est estimée à partir de mesures DVS – SMS, London, UK). La taille des aspérités a été estimée à 200 nm pour toutes les poudres suite à des mesures au microscope à force atomique (microscope Raman confocal Alpha300 R WITec®). Les poudres sont mises à l'étuve avant manipulation (24 heures à 110°C) afin d'éliminer d'éventuelles forces capillaires, les forces cohésives prises en considération dans le calcul du nombre de Bond granulaire seront donc limitées aux forces Van der Waals. Les distributions de tailles étant étendues, il nous a semblé plus précis de ne pas utiliser le diamètre de Sauter pour calculer le nombre de Bond mais de travailler à partir des distributions de tailles, comme l'a proposé Capece en 2016 (Capece et al., 2016). Dans l'équation (équation (25)) la distribution surfacique de tailles f_s est exprimée sur M classes de taille, $Bo_{g,kl}$ est le nombre de Bond granulaire qui correspond aux interactions entre les particules de taille x_k et x_l .

$$Bo_G = \left(\sum_{k=1}^M \sum_{l=1}^M \frac{f_s(x_k) \cdot f_s(x_l)}{Bo_{g,kl}} \right)^{-1} \quad (25)$$

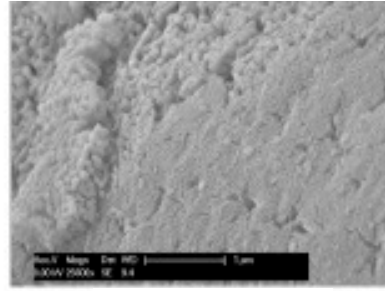
Les résultats des caractérisations ainsi que le nombre de Bond granulaire calculé pour chacune des poudres sont rassemblés dans le tableau Tableau 16, des images des poudres sont présentées sur la Figure 57

Tableau 16 - Caractéristiques des poudres et nombre de Bond granulaire calculé

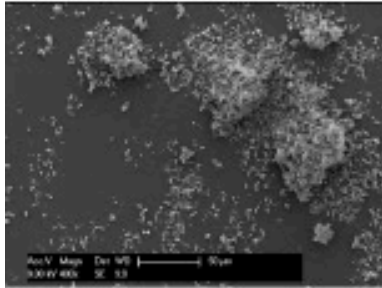
Poudre	Masse volumique du solide $\rho_s (g \cdot cm^{-3})$	Constante de Hamaker $A (10^{-19}J)$	Diamètre de Sauter $D_s (\mu m)$	Span de la distribution Span (–)	Taille de aspérités $d_{asp} (nm)$	Nombre de Bond granulaire (25) $Bo_G (–)$
Al_2O_3 G	4.017 ± 0.070	1.57 ± 0.03	23.1 ± 1.3	2.07 ± 0.10	200	$(1.16 \pm 0.05) \times 10^2$
Al_2O_3 C	4.080 ± 0.005	1.56	4.4 ± 0.8	4.28 ± 1.20	200	$(1.09 \pm 0.23) \times 10^4$
ZrO_2 G	5.408 ± 0.010	1.13 ± 0.08	52.6	2.08	200	7.40×10^0
ZrO_2 C	5.874 ± 0.012	1.50	34.7 ± 11.1	1.04 ± 0.06	200	$(3.39 \pm 0.66) \times 10^1$
Y_2O_3 C	4.986 ± 0.093	1.42	5.4 ± 3.5	13.6 ± 5.88	200	$(2.57 \pm 1.32) \times 10^3$



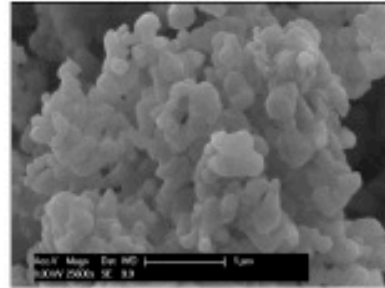
Al_2O_3 G x400



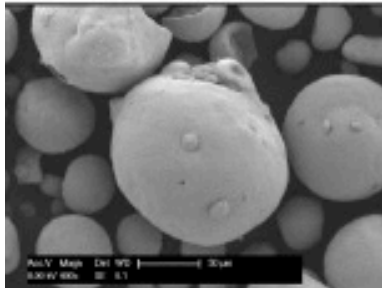
Al_2O_3 G x25600



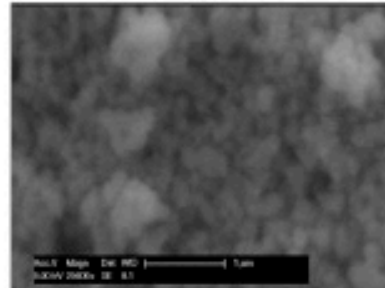
Al_2O_3 C x400



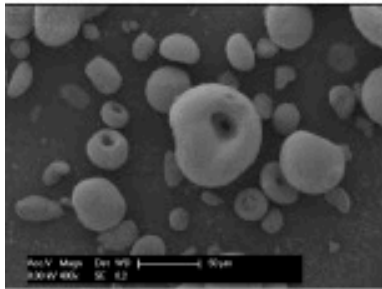
Al_2O_3 C x25600



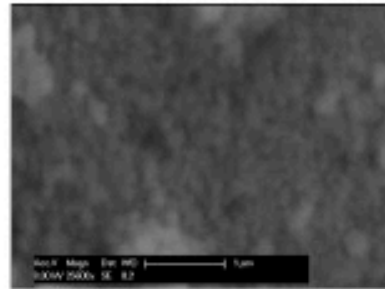
ZrO_2 G x400



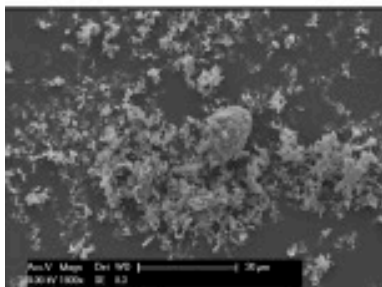
ZrO_2 G x25600



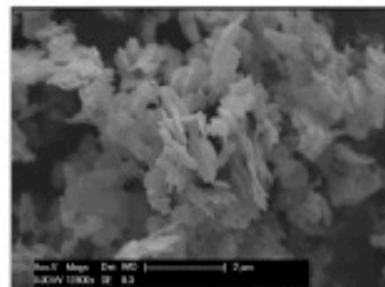
ZrO_2 C x400



ZrO_2 C x25600



Y_2O_3 C x600



Y_2O_3 C x12800

Figure 57 – Images MEB des oxydes utilisés pour établir de modèle $\dot{f}f_c = f(B_{OG})$ et grossissements

Analyse de sensibilité du nombre de Bond granulaire aux caractéristiques des poudres

L'analyse de sensibilité du nombre de Bond granulaire aux quatre caractéristiques physiques des poudres mises en jeu (masse volumique, taille des aspérités, distribution de tailles des particules et constante de Hamaker) a été réalisée par une méthode simplifiée de perturbation « one-at-a-time » sans prendre en considération d'éventuelles interactions entre les variables (Norton, 2015). Une première étude prenant en considération l'expression du nombre de Bond granulaire où la taille des particules est représentée par son diamètre de Sauter (équation (23)) montre que les quatre caractéristiques physiques ont une influence significative sur le calcul du nombre de Bond et que le diamètre des particules est le paramètre le plus critique. Des distributions de taille simulées sont alors introduites pour explorer cet aspect. La loi de Rosin-Rammler a été employée pour générer des distributions volumiques. C'est une loi à deux paramètres : x_0 est le mode de la distribution et n son étendue. Une grande valeur de n correspond à une distribution étroite. Neuf distributions monomodales dont les paramètres ont été choisis pour obtenir des distributions proches de celles des poudres étudiées, ont ainsi été simulées, ainsi que deux distributions bimodales constituées à partir de combinaisons des précédentes.

Le nombre de Bond granulaire calculé à partir de l'équation (25) est d'autant plus petit que les distributions sont étroites pour un même mode et que, pour une même étendue, le mode est grand. Dans ces deux cas de figure les forces cohésives sont ainsi moindres. Les mêmes tendances sont observées pour les distributions multimodales, dont l'étendue est représentée par le span et la taille représentative est le diamètre médian. Il vient de ces constatations que les fines particules ont sans doute une influence considérable sur le nombre de Bond, de la même façon que pour des interactions entre particules de différentes tailles : c'est le diamètre des plus fines qui prévaut dans le calcul des forces de Van der Waals (Hamaker, 1937). En effet, nous avons corréler par une loi puissance le nombre de Bond et le premier décile des distributions, d_{10} (m) : $Bo_G = 9,5 \times 10^4 \times d_{10}^{-2,7}$ ($r^2=0,95$). Dans la mesure où le nombre de Bond peut être corrélé avec la coulabilité des poudres, la teneur en fines particules est ainsi un paramètre à maîtriser pour contrôler cette propriété.

Notons qu'une bonne corrélation entre le nombre de Bond granulaire et le diamètre de Sauter, d_{50} (m) a également été obtenue (équation (26) avec $r^2=0,96$). Ce diamètre étant représentatif du volume et de la surface des particules, il est plus influencé par la présence de fines que le diamètre médian de la distribution en volume. Il constitue ainsi une bonne approximation de la taille des particules pour le calcul simplifié du nombre de Bond.

$$Bo_G = 3,9 \times 10^5 \times D_5^{-5} \quad (26)$$

Relation avec la théorie de Rumpf

Les propriétés d'écoulement des poudres ont été mesurées pour une pré-consolidation de 9 kPa (Tableau 17). La cohésion de la zircone granulée n'a pu être mesurée car sa coulabilité est trop importante pour notre dispositif, dans les conditions de la mesure. Les poudres granulées ont une très bonne coulabilité, tout comme l'oxyde de zircone ($ffc > 10$). En revanche l'alumine C et l'oxyde d'Yttrium ont une mauvaise coulabilité ($1 < ffc < 2$). Une corrélation entre ces deux paramètres a été établie (équation (27)) avec un coefficient de détermination satisfaisant ($r^2=0,9993$) :

$$ffc = 4,66 \times c^{-0,9} \quad (27)$$

Tableau 17 - Fonction d'écoulement et cohésion des poudres mesurées dans la cellule de cisaillement du rhéomètre FT4 pour une pré-consolidation de 9 kPa, après 24 heures de séchage à 110°

	ffc	c (kPa)
Al ₂ O ₃ G	8.42 ± 0.11	0.54 ± 0.01
Al ₂ O ₃ C	1.19 ± 0.04	4.57 ± 0.31
ZrO ₂ G	---	0
ZrO ₂ C	12.5 ± 1.43	0.34 ± 0.04
Y ₂ O ₃ C	1.58 ± 0.05	3.32 ± 0.14

L'équation de Rumpf (Molerus, 1975) est généralement employée pour représenter la résistance à la traction σ (Pa) d'un assemblage de particules de diamètre caractéristique d (m), de porosité ε et de coordination κ (équation (28)), donné ici pour des interactions de type Van der Waals (F_{vdw} , N). La contrainte σ est souvent représentée par la cohésion c , négligeant les effets de frottement entre les particules.

$$\sigma = \frac{\kappa}{\pi} (1 - \varepsilon) \frac{F_{vdw}}{d^2} \quad (28)$$

Si d est interprété comme le diamètre de Sauter D_s et si l'on suppose que W est proportionnel à D_s^3 , en combinant les équations (28), (21), (26), (27) il vient (équation (29)) :

$$ffc = \alpha(\varepsilon, \kappa, \rho_s) \times Bo_G^{-0,54} \quad (29)$$

où le facteur de proportionnalité α dépend de la masse volumique des particules ρ_s et de la structure de l'assemblage représentée par la porosité ε et le coefficient de coordination κ .

Résultats

La fonction d'écoulement mesurée est représentée sur la Figure 58 en fonction du nombre de Bond granulaire calculé à partir des caractérisation des poudres (Tableau 16). Dans la mesure où les poudres ont des masses volumiques proches et sont toutes pré-consolidées de la même façon pour les mesures, on s'attend à ce que le facteur de proportionnalité α soit le même pour toutes et donc à identifier une loi puissance suivant le modèle (équation (27)). La loi identifiée par la méthode des moindres carrés est représentée en pointillés sur le graphe, la somme des erreurs est $s^2=3,5670$.

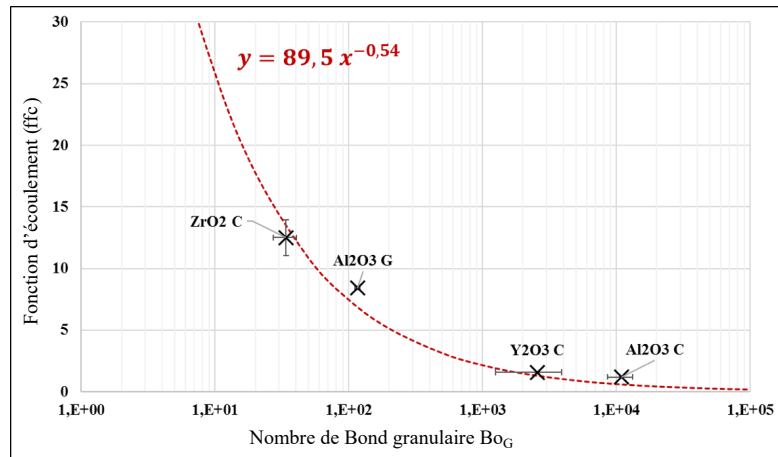


Figure 58 - Fonction d'écoulement (pré-consolidation 9 kPa) en fonction du nombre de Bond granulaire calculé à partir de l'équation (25).

L'établissement de ce modèle semi-empirique nécessite d'avoir préalablement déterminé une relation entre la fonction d'écoulement et la cohésion des poudres considérées, ainsi que la relation entre le nombre de Bond granulaire et le diamètre de Sauter. La dépendance du paramètre de proportionnalité à la masse volumique et à l'arrangement des particules limite son application à des poudres dont les caractéristiques sont proches de celles des poudres qui ont permis de l'établir. Ce sont d'ailleurs les raisons qui expliquent les différents paramètres de corrélations obtenus par différents auteurs (Capece et al., 2015) (Bernard-Granger et al., 2019).

Néanmoins, le modèle ainsi obtenu est d'un grand intérêt pour prédire les propriétés mésoscopiques d'écoulement d'une poudre à partir de sa constante de Hamaker et des caractéristiques des particules : distribution de tailles, masse volumique, tailles des aspérités de surface. Pour une poudre donnée, il autorise aussi à simuler l'impact que pourrait avoir la modification de l'une de ses caractéristiques sur sa coulabilité : tamisage pour éliminer les fines particules, granulation, broyage, enrobage. Or, la coulabilité des poudres, si elles n'est pas forcément évoquée dans les qualités du produit fini, qui sont couramment relatives à un goût, une couleur, une efficacité, reste une propriété à maîtriser d'étape en étape du procédé. Le modèle constitue alors un outil intéressant pour la conduite des procédés, voire pour réaliser des transferts d'échelle. Ce dernier point, la détermination d'un critère de changement d'échelle dans un broyeur à boulet, est également abordé dans la thèse de Martin Giraud, prenant pour objectif du transfert la conservation du nombre de Bond aux différentes échelles.

La portée de modèle pourrait être étendue en prenant en considération un facteur de forme dans le calcul des forces interparticulaires (Thomas et al., 2009). De la même façon, ces forces sont actuellement limitées aux forces de Van der Waals alors que les forces capillaires sont souvent présentes dans les poudres manipulées en conditions industrielles. Ce point a déjà fait l'objet d'investigations, nous avons proposé une formulation du nombre de Bond pour la prise en compte des forces capillaires, (Bernard-Granger et al., 2019). La question délicate, dans ce cas est la maîtrise des conditions expérimentales pour la détermination de ffc en fonction de l'humidité des poudres. Une attention particulière doit également être portée au choix des poudres testées, pour lesquelles la coulabilité doit être suffisamment affectée par la teneur en eau.

b. Forces électrostatiques

L'électricité statique est un sujet peu abordé dans le domaine de la technologie des poudres alors que cela représente un enjeu important dans l'industrie, en particulier dans l'industrie des polymères et dans la fabrication de produits effervescents qui doit être conduite en atmosphère sèche. En effet, la présence des charges électrostatiques, lorsqu'elles ne sont pas souhaitées, peut poser des problèmes importants comme l'adhésion des particules aux parois des installations ou des décharges pouvant entraîner un risque d'inflammation ou d'explosion.

Les difficultés éprouvées lors des études portant sur ces phénomènes résident dans la maîtrise des conditions opératoires et la caractérisation des surfaces des poudres industrielles. L'élimination des charges électrostatiques dans les procédés est un sujet sensible. En effet les mesures généralement adoptées sont soit d'employer des additifs antistatiques soit d'augmenter l'humidité ambiante : ces deux solutions mènent souvent à une dégradation du produit et ne sont pas toujours envisageables.

Le sujet a été abordé dans la thèse de Jérôme Revel (Revel, 2003) avec deux objectifs :

- dans un premier temps, étudier la charge par tribo-électrification d'un polymère en lit fluidisé,
- puis, étudier l'élimination des charges électrostatiques générées par un système d'injection d'ions développé par la société Valitec et des études réalisées à l'ONERA.

Le lit fluidisé a été retenu car d'une part, ce procédé largement utilisé dans l'industrie est connu pour générer beaucoup de charges et d'autre part, il permet un contrôle direct de l'atmosphère de travail par le gaz de fluidisation. L'étude porte sur une poudre et des granulés de polyéthylène dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau 18. Les temps de décroissance de charge mesurés indiquent que le polyéthylène est suffisamment isolant pour le bon déroulement des expériences.

Tableau 18 – Taille et temps de décroissance de charge mesuré dans le JCI 149 (John Chubb Instruments®) pour la poudre et les granulés de polyéthylène

	Diamètre (µm)				Temps de décroissance de charge (jour)
	d ₁₀	d ₅₀	d ₉₀	d _{Sauter}	
Poudre A	184	470	1119	570	> 13
Poudre B	465	801	1381	869	> 70
Granulés			3500		> 6

Un lit fluidisé a été conçu pour cette étude et adapté afin de prendre en compte les spécificités de l'éliminateur Valitec® (Figure 59). Pour réaliser les mesures de charge, les poudres sont prélevées dans le lit fluidisé et transférées dans une cage de Faraday reliée à un électromètre. Ce dispositif permet de mesurer une charge brute, c'est-à-dire la somme des charges positives et négatives contenues dans la poudre analysée. Ainsi, il est possible d'étudier l'élimination des charges au cours de la fluidisation des particules. Les vitesses minimales de fluidisation sont déterminées en présence de l'éliminateur de charge. Le régime de fluidisation observé pour les granulés et la poudre B est de type piston, alors que la poudre A peut être fluidisée en régime de bullage. Une partie des résultats de cette étude a été publiée dans (Revel et al., 2003). Dans tous les cas, les évolutions de la charge massique au cours du temps de fluidisation ont la même allure. Dans un premier temps, la charge massique des produits devient de plus en plus négative avec le temps de fluidisation, puis atteint ensuite un palier. Trois phénomènes de limitation de charge ont été décrits. Il s'agit :

- du collage des particules aux parois de l'installation qui a pour effet de diminuer la surface d'échange,
- de la limitation des mouvements due à l'augmentation de la « cohésion » du lit quand les particules sont chargées (attraction des particules par la paroi en Altuglas),
- de l'apparition de décharges électriques lorsque le champ disruptif de l'air est localement dépassé.

La charge des produits est généralement exprimée en charge massique mais dans la mesure où nos deux produits ont des différences de taille importantes et où la tribo-électrification est un phénomène de surface, nous avons préféré l'exprimer en charge surfacique. Il apparaît alors que les granulés atteignent une charge surfacique bien plus grande que celles des poudres : $-0,92 \mu\text{C}/\text{m}^2$ pour les granulés, $0,22 \mu\text{C}/\text{m}^2$ pour la poudre A et $-0,14 \mu\text{C}/\text{m}^2$ pour la poudre B. Ceci est confirmé par les observations que nous avons pu faire : la paroi du lit fluidisé se couvre rapidement de poudre, ce qui limite alors les échanges de charge. Les grains de poudre ayant une masse plus faible que les granulés, ils adhèrent plus facilement à la paroi et sont, de façon générale, moins mobiles.

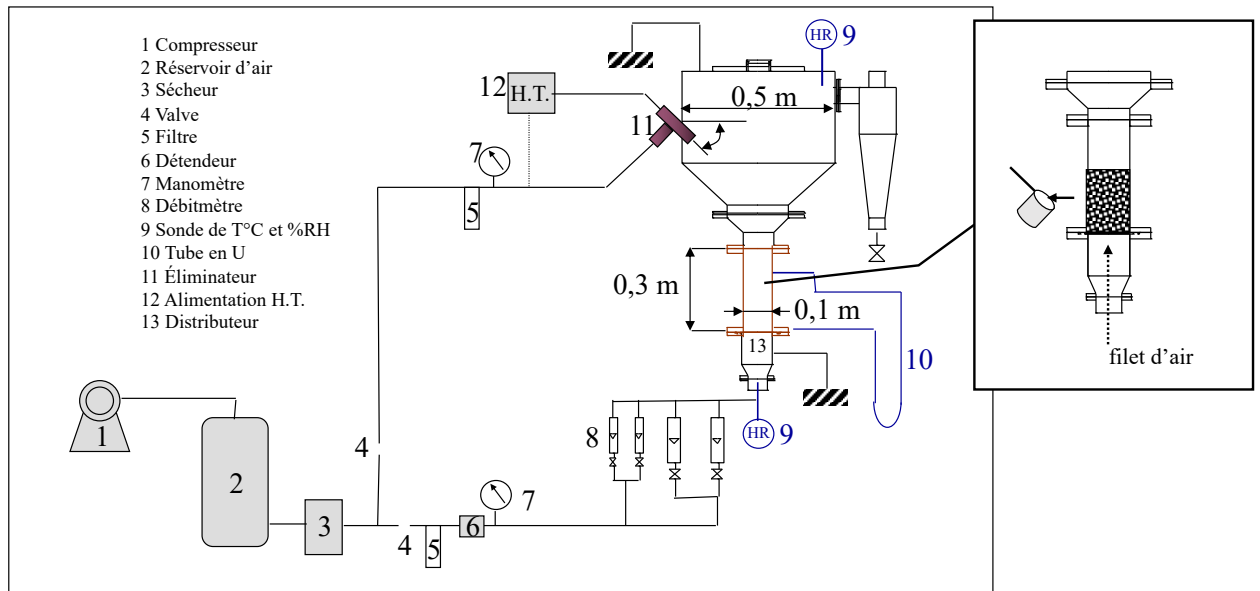


Figure 59 - Schéma d'ensemble de l'installation et configuration de l'échantillonnage

Lors des essais d'élimination des charges sur les granulés, il est apparu que :

- les charges sont principalement éliminées pour les granulés situés dans la partie haute du lit
- la neutralisation des charges est d'autant plus efficace que l'éliminateur est orienté directement vers la poudre, ce qui provoque une agitation supplémentaire dans la partie haute
- la neutralisation des charges est d'autant plus rapide que la vitesse de fluidisation est élevée, mais aboutit à la même charge finale.

Les ions injectés par l'éliminateur ne pénètrent pas en profondeur dans le lit fluidisé. Son efficacité est donc liée à la circulation des particules dans la partie haute à leur renouvellement par la circulation verticale qui prend place dans le lit : on peut observer une ascension dans la zone centrale puis descente le long des parois. Le temps caractéristique de décharge a été estimé à 36 ms alors que le temps de retournement du lit pour les granulés est de 248 s à $1,7 U_{mf}$ (U_{mf} étant la vitesse de fluidisation), de 148 s à $2,1 U_{mf}$ et 115 s à $2,5 U_{mf}$.

Le temps de retournement du lit est alors limitant et finalement, la vitesse et l'efficacité de la neutralisation dépendent des mouvements des particules dans le lit fluidisé.

Ces résultats sont confortés par des expériences avec les poudres :

- l'efficacité de neutralisation des charges dans la poudre B, fluidisée en régime de piston, dont les particules sont moins mobiles que les granules est moins bonne que celle des granules ;
- la poudre A, fluidisée en régime de bullage est neutralisée plus efficacement que la poudre B et que les granules.

Ces travaux nous ont menés à établir des conditions optimales pour l'utilisation d'un éliminateur de charges électrostatiques par injection d'ions, il s'agit d'augmenter l'accessibilité des ions aux particules : augmenter le libre parcours moyen des ions dans le lit de particules et le renouvellement des particules à la surface du lit.

Les phénomènes de tribo-électrification sont complexes car si fondamentalement l'échange de charges est lié à un transfert d'électrons durant les contacts et séparations de deux matériaux différents, lors de chocs entre particules ou de frottement il peut y avoir échange de matière entre particules impliquées, ce qui, en soit, peut constituer un autre mécanisme de charge. Le manque de maîtrise de ces processus, ajouté souvent à la difficulté de maîtrise des conditions environnementales et au peu de méthodes de mesure des charges (ou de distribution des charges) existant, fait que l'électricité statique est souvent citée parmi les problématiques industrielles sans pour autant que l'on puisse estimer précisément leur impact. Un des enseignements de cette étude est que pour qu'il y ait tribo-électrification il faut de la mobilité, donc finalement les risques sont peut-être moindres pour les poudres fines et cohésives qui sont largement mises en œuvre dans l'industrie.

c. Vieillessement des poudres, impact sur les propriétés d'usage

Cette problématique a été traitée dans la thèse de Nur Kusumanindyah (Kusumanindyah, 2016) portant sur les stocks de Marcalina disponibles suite au démantèlement de plusieurs anciennes installations nucléaires contenant du sodium. Cette poudre extinctrice particulièrement efficace pour les feux de sodium a été formulée et brevetée par le CEA en 1978 puis produite par la société CACI jusque dans les années 1990. Aujourd'hui, le CEA envisage de réutiliser les stocks dans le cadre du programme de développement des réacteurs de quatrième génération, pour sécuriser les réacteurs refroidis au sodium (Sodium Fast cooled Reactor), voire de lancer à nouveau la production de cette poudre. La Marcalina est connue pour être sensible aux conditions ambiantes de température et d'humidité, il s'agissait pour nous de déterminer les transformations physico-chimiques intervenant dans le vieillissement de cette poudre ainsi que les effets potentiels de celui-ci sur les propriétés d'usage. Au-delà, il convenait de dresser des préconisations pour une reprise de la production.

La poudre de Marcalina est un mélange de carbonate de lithium (Li_2CO_3) et de carbonate de sodium mono-hydraté ($\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$), dans des proportions proches de l'eutectique, associés à du graphite. La température de fusion de l'eutectique est de 500°C . Trois poudres provenant de stockages dans des conditions différentes ont été analysées et comparées à la poudre de référence dont les spécifications ont été données par Marceline Reuillon, dans sa thèse, en 1976. Les différents composants ont été identifiés par des analyses semi-quantitatives en Diffraction de Rayons X. Des analyses Thermo

Gravimétrie – micro Chromatographie Gazeuse ont permis de quantifier la teneur en eau et les teneurs en graphite, sodium et lithium ont été mesurées par filtration du graphite dissout dans de l'acide sulfurique (1M) et Spectroscopie en Absorption Atomique. Pour les analyses physiques, la distribution granulométrique a été mesurée par granulométrie laser et la fonction d'écoulement des poudres a été obtenue avec la cellule de cisaillement du rhéomètre FT4, les résultats sont présentés sur la Figure 60. Le constat initial est que dans les poudres vieilles on mesure une teneur en eau plus importante que celle indiquée dans les spécifications, ainsi que deux composés qui ne sont pas dans la formule de départ, le LiNaCO_3 et le Trona ($\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot \text{NaHCO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$). Les résultats des caractérisations figurent dans le Tableau 19.

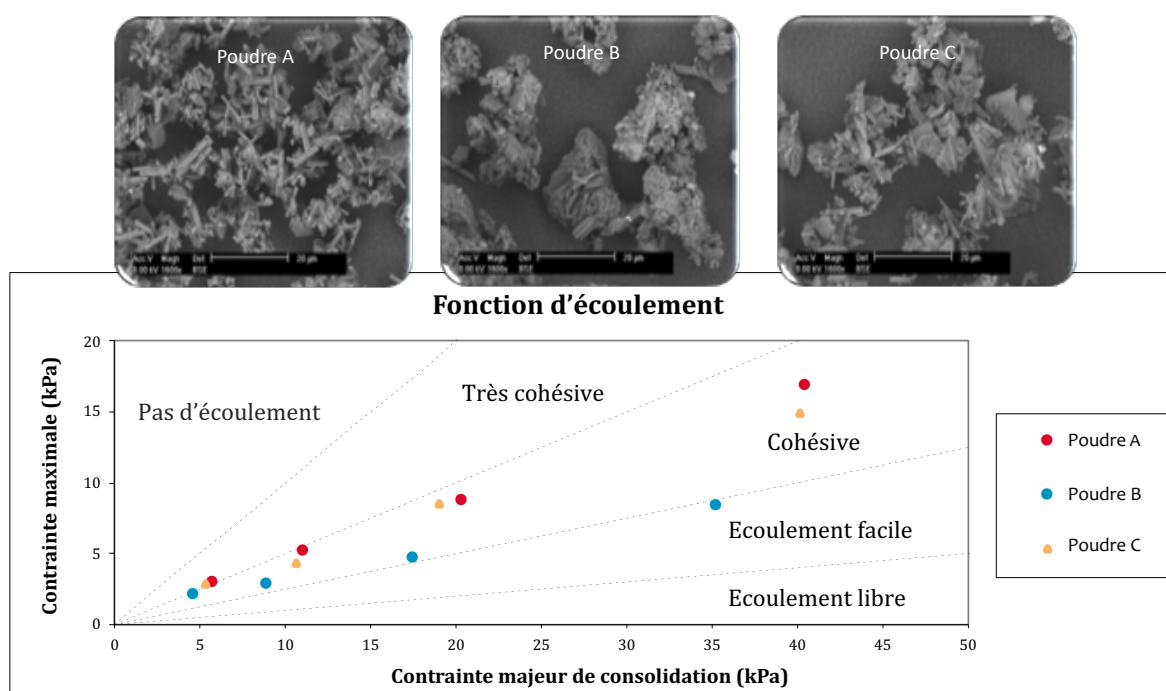
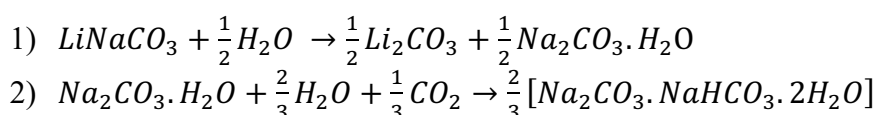


Figure 60 – Images MEB et fonction d'écoulement des trois poudres de Marcalina stockées dans des conditions différentes

Tableau 19 – Résumé caractéristiques physico-chimiques mesurées des trois poudres vieilles et spécifications

	Poudre A	Poudre B	Poudre C	spécifications
d ₅₀ (m)	5,6	30,3	7,4	< 160
Fonction d'écoulement	cohésive +	cohésive -	cohésive +	
Forme des particules	Aiguilles agglomérées	Agglomérats d'aiguilles érodés, formes irrégulières	Aiguilles agglomérées	
Composition (% masse)	Na ₂ CO ₃ .H ₂ O : 31 Li ₂ CO ₃ : 33 LiNaCO ₃ : 26 Trona : 1 Graphite : 9 Eau de cristallisation : 4,7	Na ₂ CO ₃ .H ₂ O : 29 Li ₂ CO ₃ : 38 Trona : 20 Graphite : 8 Eau libre : 4 Eau de cristallisation : 8,4	Na ₂ CO ₃ .H ₂ O : 16 Li ₂ CO ₃ : 35 LiNaCO ₃ : 18 Trona : 26 Graphite : 5 Eau de cristallisation : 7,5	Na ₂ CO ₃ : 42,3 Li ₂ CO ₃ : 43 Graphite : 9 Eau de cristallisation : 3,5-7
Température de fusion (DSC)	498,9°C	499,4°C	498,5°C	500°C

Des essais de fabrication de poudre de Marcalina au laboratoire ont montré la formation du carbonate de Lithium-sodium par mécano-synthèse pendant le broyage des matières premières. Des essais de vieillissement ont été menés sur 8 mois dans différentes conditions d'humidité relative (8% et 32%), en présence ou non d'air. Le Trona a été identifié comme un produit du vieillissement. La poudre A, qui est proche des spécifications, sera ainsi considérée comme non vieillie. Deux mécanismes de vieillissement ont été proposés pour expliquer la transformation des poudres B et C :



Les réactions sont influencées par les conditions de stockage, nos études ont montré que le Trona se forme plus facilement en présence de CO₂ en atmosphère humide et que LiNaCO₃ se décompose plus facilement en l'absence de CO₂.

Dans le cas de la poudre B, les deux réactions ont lieu simultanément. La seconde réaction est prédominante pour la poudre C, sûrement vieillie lors d'un stockage non hermétique (présence de CO₂ et d'humidité).

Finalement, les préconisations données par le brevet initial sur le stockage (contenants étanches et humidité relative inférieure à 50%) sont insuffisantes pour limiter la décomposition du carbonate de lithium-sodium et empêcher la formation du Trona.

Quels sont les effets du vieillissement de la poudre sur ses qualités d'usage ?

Un dispositif expérimental a été conçu pour réaliser des essais d'extinction, avec ces trois poudres et des poudres reconstituées par nos soins afin d'y faire varier la teneur en certains éléments. Il est important de souligner que le sodium est un réducteur puissant, sa très forte réactivité avec l'eau et l'air en font un milieu extrêmement difficile à manipuler.

Cela a été un point délicat de l'étude pour laquelle nous avons besoin de procéder à l'extinction de feux de sodium de taille suffisamment importante pour être instrumentés (10g de sodium).

Les résultats sont publiés dans (Kusumanindhyah et al., 2019). L'extinction peut être synthétisée par les étapes suivantes :

- Étalement de la poudre à la surface du sodium en feu, formation d'une couche poreuse au travers de laquelle diffusent l'oxygène de l'air et la vapeur d'eau formée à l'interface avec le sodium en feu ;
- Formation d'une couche de NaOH entre le sodium et la couche de Marcalina : par réaction entre $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ et le sodium (Na gazeux, ou Na_2O , précipité) ou par une réaction de décomposition du Trona suivie d'une réaction avec le sodium. La présence d'eau de cristallisation est un paramètre déterminant pour la formation de cette couche, le temps d'extinction est significativement allongé si sa teneur est inférieure à 5,6% (il est cependant apparu qu'au-delà de 13% un dégagement d'hydrogène et une re-inflammation peuvent intervenir) ;
- Fusion de l'eutectique de carbonates (Na_2CO_3 et Li_2CO_3) à 500°C, abaissant la température localement, suivi de la formation d'une couche liquide très visqueuse de LiNaCO_3 lors du refroidissement. La viscosité élevée de cette couche l'empêche parfois de s'étaler correctement à la surface et on peut observer une reprise du feu suite à la diffusion du sodium gazeux au travers des zones non couvertes.

Cette étude nous a permis d'identifier les qualités d'usage de la Marcalina, qui sont : le bon écoulement de la poudre pour sa dispersion et la formation de la couche poreuse à la surface du feu puis son efficacité d'extinction liée à sa composition chimique, principalement sa teneur en eau. Finalement, le produit de vieillissement Trona n'a pas été identifié comme pénalisant pour l'extinction, la présence de LiNaCO_3 dans la poudre d'origine ne semble non plus jouer de rôle particulier. La taille des particules n'a pas non plus été identifiée comme étant un paramètre déterminant, si ce n'est que la poudre ayant le meilleur écoulement a permis de former une couche plus régulière à la surface du feu.

Discussion

Nous n'avons pas observé d'effet notable de la modification morphologique de la poudre sur son efficacité, si ce n'est un écoulement facilité pour sa dispersion sur le feu. Ceci est lié au fait qu'elle est appliquée en vrac, ce n'est donc pas généralisable à d'autres poudres extinctrices, en fonction des dispositifs de pulvérisation employés.

Notons que les poudres extinctrices sont souvent protégées du vieillissement par un enrobage, de stéarates par exemple. Leur formulation parfois complexe requiert des étapes d'études procédés pour être transposable en production industrielle, comme nous avons pu le faire dans le cadre d'une étude pour la société AI-group (2015, stage de Zhe Li). Le domaine des poudres extinctrices pose ainsi de riches problématiques scientifiques pour le génie des procédés des solides divisés.

3.4 Propriétés des poudres – propriétés des mélanges ?

Les poudres manipulées dans l'industrie sont rarement constituées d'un seul composant. Soit parce que le produit final est un mélange de plusieurs ingrédients, soit parce qu'il est courant d'incorporer aux poudres certains additifs pour assurer leur « processabilité », c'est le cas par exemple des lubrifiants et additifs employés pour

améliorer la compressibilité des poudres pour remplir des gélules ou former des comprimés pharmaceutiques. Dans ces derniers cas, la modification de la structure intime du mélange des particules permet d'améliorer les propriétés d'usage (Yoshida et al., 2017). Force est alors de constater que les propriétés des poudres composites ne sont pas forcément prévisibles à partir des propriétés de leurs ingrédients et que non seulement les propriétés d'un mélange en cours de progression sont susceptibles d'évoluer au cours de l'opération mais qu'il est possible que cette évolution dépende du mode d'introduction des ingrédients dans le mélangeur ou d'éventuels pré-mélanges. Deux études sont présentées dans cette partie (Figure 61). Par la première, nous avons cherché à mettre en évidence une relation entre l'organisation des particules et les propriétés de la poudre dans un mélange binaire de particules de tailles différentes, ceci a été réalisé par la caractérisation de mélanges de semoule et de lactose de différentes compositions. Ensuite, le modèle semi-empirique reliant les caractéristiques physiques des particules à la fonction d'écoulement de poudres développé dans la partie 3.3 sera appliqué à la détermination des propriétés d'un mélange ou d'une poudre composite à partir des propriétés des poudres qui le ou la composent.

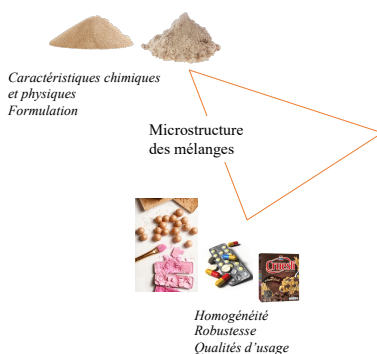


Figure 61 - Propriétés des poudres composites, ou mélanges, en relation avec les propriétés des poudres mères ou ingrédients

a. Observations

Les travaux présentés dans ce paragraphe sont publiés dans (Legoix et al., 2017b) qui figure en annexe du manuscrit. Des rhéologies sensiblement différentes entre poudres cohésives et poudres à écoulement libre ont été décrites dans nos précédentes études. Dans le cas d'un mélange d'un produit à écoulement libre et d'une poudre cohésive, quel est l'impact de la composition sur la puissance consommée ? Existe-t-il des comportements rhéologiques intermédiaires ? Sont-ils prédictibles par des caractérisations de laboratoire à l'échelle mésoscopique ?

De la semoule, du lactose et du lactose fin sont utilisés dans cette étude et préalablement caractérisés (voir Figure 62). Les trois produits seuls ainsi que 9 mélanges de semoule et de chacun des lactoses (composition de 10% à 90% de lactoses), soit 21 poudres, ont été caractérisés au laboratoire. Les résultats des caractérisations des produits seuls sont rassemblés dans le Tableau 20. Les poudres seront considérées comme étant de tailles monodisperses, représentées par leur diamètre médian en volume d_{50} mesuré au granulomètre laser Mastersizer 3000 (Malvern Instruments), bien que les deux lactoses soient nettement polydisperses. L'indice de Carr (Carr, 1965) mesuré par volumétrie (Erweka® SVM 222) est un indice de coulabilité, inférieur à 15 il est associé aux poudres à écoulement libre, supérieur à 22 il reflète le comportement des poudres cohésives. Le Flow Rate Index (FRI) et l'Aerated Index (AE) sont mesurés à l'aide du rhéomètre à poudre FT4

de Freemann Technolgy (Freeman, 2007). L'indice FRI est mesuré par agitation de la poudre en milieu ensilé mais non confiné, situation que l'on retrouve dans un mélangeur convectif, inférieur à 1 il qualifie les poudres à libre écoulement. L'indice AE reflète quant à lui le comportement des poudres en situation d'aération. Les poudres aéables, typiquement appartenant au groupe A du diagramme de Geldart, présentent un indice plus faible que les autres, c'est le cas des deux lactoses étudiés. Des mesures de cohésion ont été réalisées avec la cellule de cisaillement de 85 ml du rhéomètre FT4 sous une pré-consolidation de 4 kPa. Toutes les mesures ont été effectuées en trois répétitions. De toutes ces mesures il ressort que la semoule peut clairement être qualifiée de poudre à écoulement libre et le lactose fin de poudre cohésive. Le lactose présente un comportement intermédiaire.

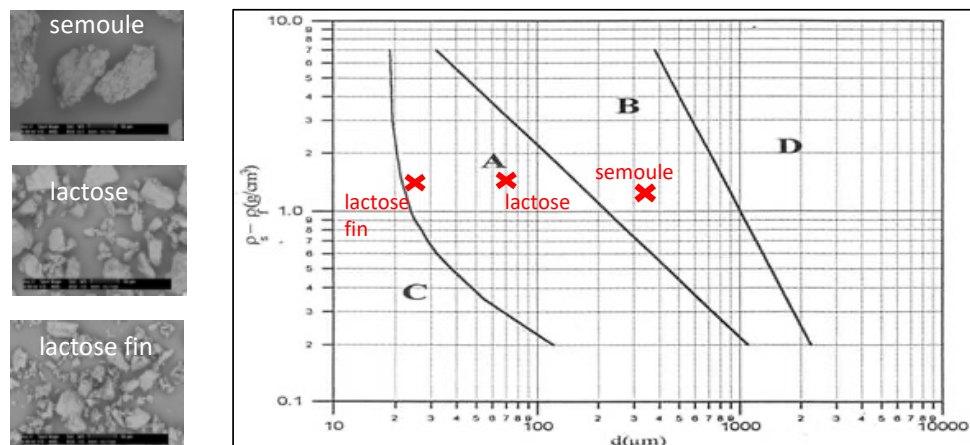


Figure 62 - Images MEB (x400) et positionnement sur le diagramme de Geldart de la semoule, du lactose et du lactose fin

Tableau 20 - Caractéristiques et indices d'écoulement de la semoule, du lactose et du lactose fin ; diamètre médian, masse volumique des particules mesurée par pycnométrie hélium, Indice de Carr, FRI et AE mesurés à l'aide d'un rhéomètre FT4, cohésion à 4 kPa mesurée dans la cellule de cisaillement du FT4.

Caractéristiques	semoule	lactose	lactose fin
d_{50} (μm)	312	61	26
$\rho_{\text{particules}}$ (kg.m^{-3})	1463	1533	1539
Indice de Carr (%)	$5,8 \pm 0,3$	$16,9 \pm 0,9$	$22,4 \pm 2,7$
FRI	$0,89 \pm 0,07$	$1,25 \pm 0,16$	$2,09 \pm 0,09$
AE	558 ± 48	317 ± 38	172 ± 19
Cohésion (kPa)	$0,24 \pm 0,10$	$0,75 \pm 0,12$	$1,12 \pm 0,13$

La porosité des poudres et de leurs mélanges en situation de tassement a été calculée à partir des mesures au volumétre, elles sont reportées sur la Figure 64 (points bleu). Pour chaque mélange, le modèle simple, modèle 1, prend uniquement en considération de remplissage de la porosité inter grains de semoule par les fines particules de lactose. Le modèle 2 est basé sur des observations microscopiques montrant que les particules de semoule étaient enrobées de particules de lactoses, dans les deux types de mélange. Les hypothèses qui sous-tendent l'élaboration de ces deux modèles sont illustrées sur la Figure 63. Les calculs de porosités théoriques des différents mélanges effectués avec ces deux modèles sont présentés sur la figure, avec les mesures expérimentales. Un minimum de porosité est observé pour chacun des deux mélanges, pour une teneur de 0,5 en lactose et 0,4 en lactose fin. Des minima sont également obtenus pour les deux modèles, mais pour des teneurs en lactoses différentes. Dans chaque cas, les points expérimentaux sont encadrés par les deux modèles. La valeur de la porosité minimale est mieux représentée par le modèle

« mélange ordonné » et dans tous les cas, les deux modèles représentent bien la dernière partie de la courbe, lorsque les teneurs en lactoses sont suffisantes pour supposer que le milieu est constitué majoritairement de particules de lactoses avec des inclusions de particules de semoule.

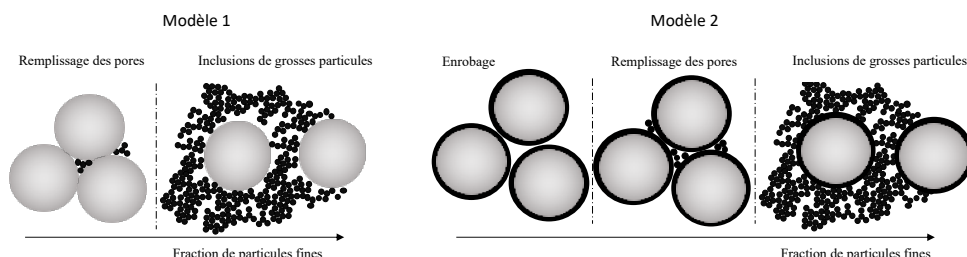


Figure 63 - Illustration des hypothèses des modèles de calcul d'empilement, modèle simple (modèle1, gauche) ou avec enrobage des particules de semoule par le lactose (modèle 2, droite)

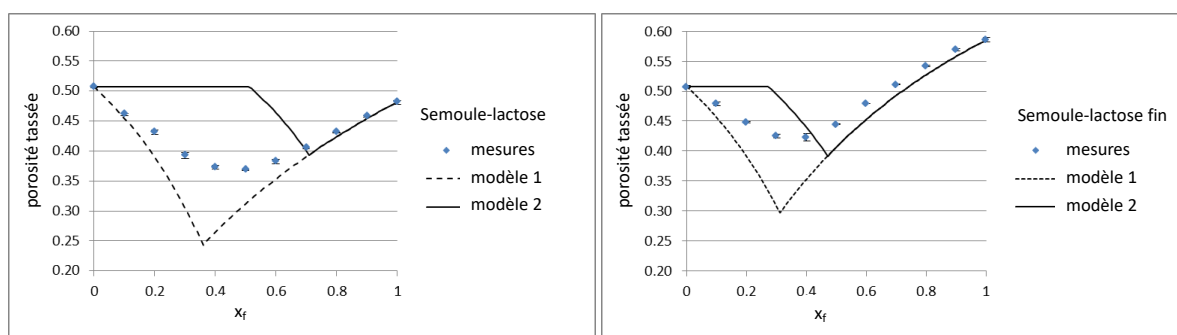


Figure 64 - Porosité tassée calculée à partir des mesures dans les volumétries pour les mélanges semoule-lactose (gauche) et semoule-lactose fin (droite)

Les différents mélanges ont été caractérisés, les indices sont tracés sur la Figure 65 en fonction de la teneur en lactose. Ils ne varient pas de façon monotone avec la composition du mélange. La cohésion, mesurée sous consolidation, diminue légèrement avec l'introduction de particules de lactose entre les grains de semoule, le mélange est en quelque sorte lubrifié, à partir d'une teneur en lactose de 0,3 les contacts entre grains de lactoses prennent peu à peu le pas sur les contacts entre les grains de semoule et à partir de $x_f=0,7$ pour le lactose et $x_f=0,6$ pour le lactose fin la cohésion mesurée pour les mélanges est celle des lactoses. L'indice d'aération des mélanges diminue avec l'introduction des lactoses et présente un minimum pour des teneurs de 0,5 à 0,8 pour le lactose et de 0,5 pour le lactose fin. L'assemblage de grains le plus compact est ainsi celui qui s'aère le plus, les courbes suivent les courbes de porosité tassée. L'interprétation classique, plus l'indice est faible, plus la poudre est cohésive, n'est pas applicable dans le cas de nos mélanges, peut-être en raison d'un effet de ségrégation, mais qui n'a pas été observé visuellement pendant les mesures. Les résultats des mesures d'indice de Carr et de FRI réalisées en situation non consolidée et non aérée, sont cohérents entre eux. L'ajout de quelques pourcents de lactoses dans la semoule modifie ces indices, qui croissent jusqu'à des teneurs de 0,6-0,7 pour se stabiliser autour des indices des deux lactoses. Pour les mélanges contenant du lactose, l'indice de Carr, le FRI et la cohésion semblent passer par un maximum pour une teneur de 0,7-0,8 qui correspond au minimum de porosité tassée du modèle d'empilement pour le mélange ordonné. Les mesures réalisées sur le lactose fin ou les mélange à forte teneur en lactose fin sont difficile à réaliser. Cette poudre présente une forte porosité en vrac et elle est très sensible aux conditions de remplissage des dispositifs.

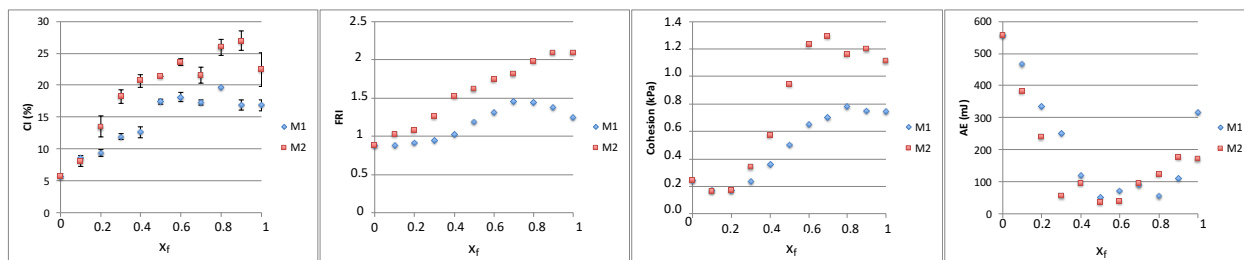


Figure 65 - Caractérisations des mélanges semoule - lactose (M1) et semoule – lactose fin (M2)

Les mesures de puissance en mélangeur Triaxe, sur 30 kg de poudres confirment ces observations (voir Figure 66). La puissance varie linéairement avec la vitesse d'agitation caractéristique u_{ch} pour la semoule et les mélanges à faible teneur en lactoses. La pente de la droite diminue quand la teneur en lactose augmente. Pour le lactose seul, ou les mélanges semoule-lactose à plus de $x_f=0,8$ la puissance augmente peu avec la vitesse caractéristique et des effets liés aux rapports des vitesses de giration/rotation apparaissent. En réalité, pour une même vitesse de rotation, la puissance varie en fonction de la vitesse de giration alors que celle-ci n'a que peu d'influence sur l'agitation des poudres à écoulement libre. Pour des compositions de $x_f=0,3$ à $x_f=0,8$ le comportement est intermédiaire. Notons que le cas du lactose fin est particulier, en effet, à forte vitesse on observe la formation d'agglomérats dans le lactose fin seul et le mélange à $x_f=0,9$, par « auto-granulation » dont le comportement se rapproche finalement de celui des mélanges moins cohésifs. Plus la vitesse d'agitation est grande, plus la puissance est sensible à la composition des mélanges.

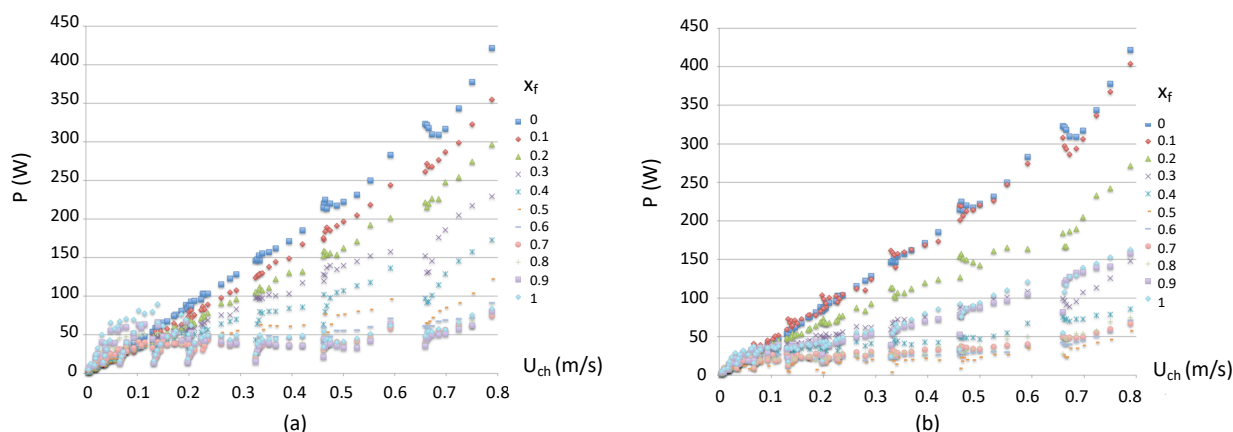


Figure 66 : Puissance totale mesurée pour 30 kg de poudre en fonction de la vitesse caractéristique u_{ch} , et de la teneur en lactose (a) ou en lactose fin (b)

De ces résultats, il ressort que :

- l'organisation des mélanges à l'échelle des particules est un facteur déterminant pour leurs propriétés d'écoulement,
- les phénomènes observés à l'échelle de la caractérisation prennent place à l'échelle de la microstructure des assemblages de grains et se transposent sur le comportement à grande échelle,
- mesurer les propriétés de mélanges de poudres « réelles » est complexe car il est impossible de maîtriser les effets locaux de ségrégation ou les effets liés à la polydispersité des tailles et des formes de grains, travailler sur des milieux modèles permettrait d'affiner les hypothèses.

Remarque

Ces observations confirment les conclusions d'une étude de ségrégation de poudres menée pour la société Arkema en 2009, dont certains résultats sont publiés dans (Devriendt et al., 2013). Nous y avons mis en avant le fait que les risques de ségrégation étaient liés à la distribution de taille des particules au sein de la poudre, le risque étant plus important lorsque la distribution est étroite. En effet dans ce cas les possibilités d'arrangement des particules sont réduites, le nombre de coordination de la poudre est plus faible et finalement les particules sont plus mobiles les unes par rapport aux autres. Nous avons en outre pu observer un effet de seuil pour la quantité de grosses particules qui structureraient un empilement et réduiraient de fait les risques de ségrégation de la poudre.

b. Prévoir les propriétés d'écoulement des mélanges à partir des propriétés des poudres

La détermination de la cohésion d'une poudre à partir des propriétés de ses composants n'est pas forcément intuitive. C'est pourtant un prérequis indispensable pour les formulateurs, ainsi que pour le contrôle qualité en sortie d'une opération unitaire, la coulabilité pouvant être vue non seulement comme une propriété d'usage mais aussi comme indicateur d'homogénéité ou d'intégrité de la poudre. Des travaux effectués au cours du stage de Timo Larsson (2016) avec le CEA nous ont permis d'établir, dans le cas de mélanges de deux types d'Alumines (CR6 et GE15) ayant des coulabilités très différentes que ni la cohésion, ni la fonction d'écoulement du mélange ne varient linéairement avec la composition du mélange. On observe en réalité un seuil, par exemple il est nécessaire d'ajouter plus de 40% en masse d'Alumine GE15, de bonne coulabilité, à l'alumine CR6, de mauvaise coulabilité, pour mesurer un effet sur la fonction d'écoulement du mélange (Bernard-Granger et al., 2019).

Le modèle développé en 3.3 impliquant le nombre de Bond granulaire calculé à partir de la distribution granulométrique d'une poudre et la mesure de la fonction d'écoulement mesurée au rhéomètre FT4 pour une pré-consolidation à 9 kPa a été appliqué à des mélanges binaires et ternaires.

Le nombre de Bond granulaire peut être élargi aux mélanges multicomposants, on parle alors de nombre de Bond granulaire multi-composants (Capece et al., 2016). Si N poudres dont les distributions granulométriques sont représentées par M classes de tailles sont mélangées, alors le nombre de Bond granulaire du mélange peut s'exprimer par (équation (30)) :

$$Bo_{G,mix} = \left(\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \sum_{k=1}^M \sum_{l=1}^M \frac{\omega_{ik} \cdot \omega_{jl}}{Bo_{g,ijkl}} \right)^{-1} \quad (30)$$

dans laquelle ω_{ik} (équation (31)) est la fraction de pondération surfacique des particules de diamètre d_k de la poudre i et $Bo_{g,ijkl}$ est le nombre de Bond granulaire qui représente les interactions entre la fraction de poudre i de taille d_k (pondération ω_{ik}) et la fraction de poudre j de taille d_l (pondération ω_{jl}). Si la fraction de surface d'une particule de taille d_k dans la poudre i est $f_{s,i}(d_k)$ et si la teneur surfacique de la poudre i dans le mélange est z_i , alors :

$$\omega_{ik} = z_i \cdot f_{s,i}(d_k) \quad (31)$$

Le nombre de Bond du mélange $Bo_{G,mix}$ est ainsi calculé à partir de la composition du mélange et des caractéristiques des poudres, dont leur distribution granulométrique. Pour établir ce modèle on suppose que la répartition des particules est aléatoire, c'est-à-dire que les contacts entre particules de taille et de natures différentes sont équiprobables.

Les poudres mises en œuvre sont des mélanges des cinq oxydes qui ont permis d'établir le modèle (Figure 57). 21 mélanges binaires et 2 mélanges ternaires sont étudiés. Les mélanges sont préparés dans un mélangeur Turbula® et mis en étuve à 110° pendant 24 heures pour s'affranchir des forces capillaires dans le calcul des interactions. Les caractéristiques des poudres utilisées ainsi que leurs caractéristiques d'écoulement sont présentées dans le Tableau 16 et le Tableau 17, la fonction d'écoulement et la cohésion des mélanges sont rassemblées dans le Tableau 21.

Tableau 21 - Fonction d'écoulement et cohésion des mélanges d'oxydes, mesurées dans la cellule de cisaillement du FT4 pour une pré-consolidation à 9 kPa

	Composition	Fonction d'écoulement ff_c (-)	Cohésion c (kPa)
ZrO ₂ G / Al ₂ O ₃ G	0,90 / 0,10	22,1	0,19
	0,80 / 0,20	16,7	0,25
	0,70 / 0,30	14,4	0,30
	0,40 / 0,60	11,3	0,38
	0,25 / 0,75	9,27	0,49
ZrO ₂ C / Al ₂ O ₃ G	0,90 / 0,10	10,97 ± 0,58	0,39 ± 0,02
	0,80 / 0,20	11,43 ± 0,61	0,38 ± 0,02
	0,70 / 0,30	10,93 ± 1,44	0,41 ± 0,06
	0,60 / 0,40	10,67 ± 0,59	0,41 ± 0,03
	0,25 / 0,75	10,36 ± 0,14	0,44 ± 0,01
ZrO ₂ G / Al ₂ O ₃ C	0,90 / 0,10	7,30 ± 3,01	0,65 ± 0,23
	0,70 / 0,30	2,60 ± 0,64	1,87 ± 0,54
	0,50 / 0,50	1,53 ± 0,05	3,36 ± 0,17
	0,30 / 0,70	1,28 ± 0,09	4,04 ± 0,43
	0,10 / 0,90	1,19 ± 0,04	4,46 ± 0,31
ZrO ₂ C / Al ₂ O ₂ C	0,90 / 0,10	6,31 ± 1,29	0,70 ± 0,16
	0,80 / 0,20	2,84 ± 0,33	1,71 ± 0,26
	0,70 / 0,30	2,88 ± 0,35	1,58 ± 0,23
	0,60 / 0,40	1,89 ± 0,17	2,58 ± 0,31
	0,50 / 0,50	1,50 ± 0,17	3,43 ± 0,56
ZrO ₂ G / Y ₂ O ₃ C	0,70 / 0,30	3,00 ± 0,02	1,52 ± 0,03
ZrO ₂ C / Al ₂ O ₃ G / Y ₂ O ₃ C	0,34 / 0,33 / 0,33	5,11 ± 0,08	0,91 ± 0,01
	0,45 / 0,45 / 0,10	2,31 ± 0,06	2,15 ± 0,08

La corrélation obtenue en ajustant le modèle aux données expérimentales est proche de celle qui a été identifiée pour les poudres seules Figure 67. L'erreur ($s^2=41,9$) est plus importante dans ce cas (elle était de 3,6 pour les poudres seules) mais nous estimerons cette corrélation comme pertinente. Les résultats obtenus pour les mélanges d'alumine et de zircone sont reportés sur la Figure 68. Le mélange pour lequel le modèle est le moins pertinent est le mélange de zircone C et d'alumine granulée dont les deux constituants ont une bonne coulabilité et des fonctions d'écoulement proches, mais l'écart de masses volumiques le plus important (Tableau 16). La différence de masses volumiques des particules peut entraîner des phénomènes de ségrégation et créer des arrangements non aléatoires au sein de la poudre. Par ailleurs, le facteur de proportionnalité du modèle dépend de la masse volumique de la poudre et de la structure du lit, sans que l'on ait exactement déterminé sous quelle forme. Le modèle est identifié sur la base d'un coefficient de proportionnalité identique pour toutes les poudres, or, dans le cas des mélanges, des arrangements particuliers donnent des masses volumiques de mélange qui diffèrent de celles

des ingrédients (comme vu dans la partie précédente) et que n'avons pas mesurées, c'est une piste à considérer pour expliquer l'erreur associée à l'estimation de la corrélation. Une meilleure compréhension du rôle de la masse volumique dans le modèle reste à établir. En revanche, le modèle prédit bien le fait que l'ajout d'une faible fraction massique d'un élément cohésif dans un mélange suffit à modifier notablement sa fonction d'écoulement.

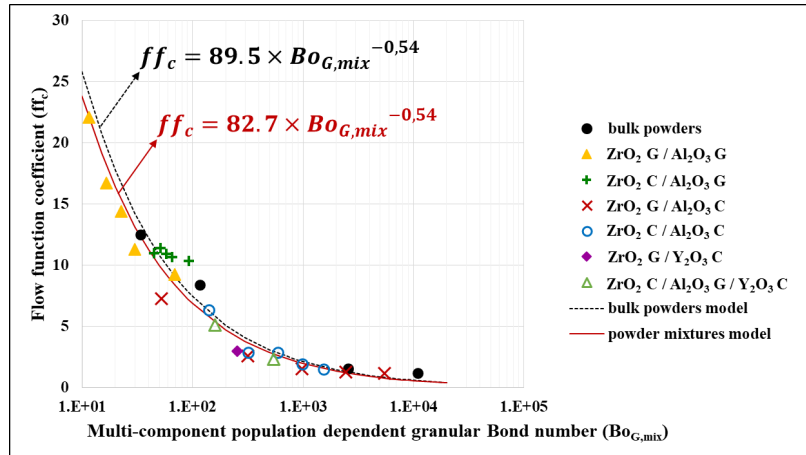


Figure 67 - Fonction d'écoulement mesurée au FT4 à 9 kPa en fonction du nombre de Bond granulaire pour les poudres seules (points noirs) et pour les mélanges (symboles en couleur).

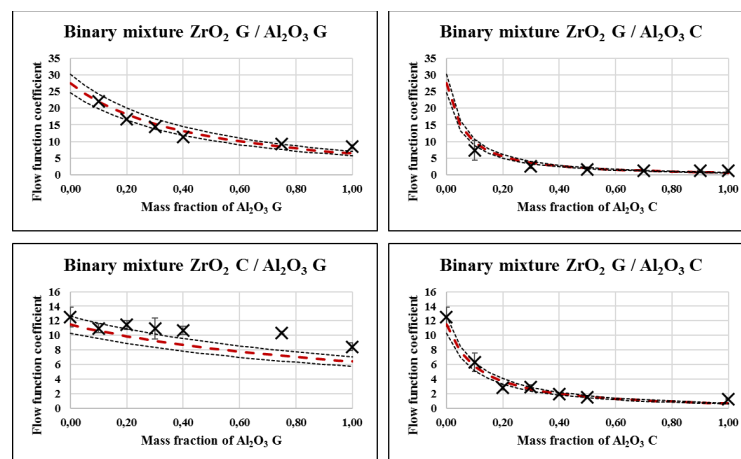


Figure 68 – Fonction d'écoulement des mélanges en fonction de la fraction massique de la poudre la plus cohésive ; les croix correspondent aux mesures, les courbes en pointillés correspondent aux prédictions par le modèle, avec un intervalle de confiance à 90%

Ce modèle permet de donner un sens physique à la relation entre les propriétés d'écoulement d'un mélange, sa composition et les caractéristiques des poudres qui le composent. Une fois le modèle établi, il permet en outre de prédire l'influence d'une modification de composition du mélange ou de la distribution granulométrique d'un des constituants sur la coulabilité du mélange.

Pour aller plus loin, l'application de ce modèle aux poudres co-broyées a également été abordée dans le travail de Martin Giraud. Prenons l'exemple d'un co-broyage destiné à réduire l'échelle de ségrégation d'un mélange. Les modèles classiques de broyage, basés sur l'établissement des fonctions de sélection et de broyage permettent de calculer une distribution granulométrique en sortie du broyeur. Un tel modèle de broyage appliqué à chaque constituant d'un mélange, dont on connaît la composition, permet de calculer de

nombre de Bond granulaire du mélange en sortie du broyeur à partir de l'équation (30) et par suite, la fonction d'écoulement du mélange co-broyé.

c. Discussion

Comme évoqué dans la discussion de la partie 2.1 malgré une homogénéité identique à l'échelle d'observation ad hoc, deux mélanges des mêmes ingrédients n'ont pas toujours la même robustesse ou n'ont pas la même aptitude à l'écoulement (Figure 24). La microstructure, ou arrangement des particules au sein de la poudre, est sans doute responsable de comportements parfois inattendus. Pourquoi le remplissage des gélules est aisé avec un mélange et impossible avec un autre ?

Ces organisations microstructurelles, responsables des comportements collectifs, sont d'ailleurs mises à profit dans le processus de lubrification où de fines particules adhérant à la surface de grains les éloignent pour assurer une meilleure coulabilité de la poudre. De la même façon, les réseaux de forces transmises par les contacts entre les grains de plus grandes tailles peuvent assurer une structure ou une robustesse à un mélange.

Il faut donc définitivement distinguer la notion d'homogénéité de mélange de la notion de microstructure de la poudre ou du mélange, qui est relative à l'organisation des particules à petite échelle. La première est indissociable de l'échelle d'observation, déterminée par la finalité du produit, comme la teneur en principe actif dans un médicament. La seconde prend son sens à l'échelle des particules, voire des contacts entre les particules, elle est déterminante pour les qualités spécifiques d'un mélange comme sa processabilité (sa faculté à être manipulé facilement sans se dégrader) ou ses qualités d'usage (si l'on prend l'exemple de poudres alimentaires, cela peut concerner son aptitude à la dispersion et à la dissolution dans un liquide). Ce d'autant plus que l'on s'oriente vers la production de produits fonctionnalisés, les poudres composites réalisées par enrobage à sec en sont l'exemple le plus extrême. C'est aussi le cas des poudres extinctrices enrobées d'un produit hydrophobe pour ne pas motter pendant leur conservation afin de rester « pulvérisables », ou des poudres d'artifice au sein desquelles il convient de séparer les composants oxydant et réducteur.

Comment est-ce que les arrangements de grains impactent le comportement collectif ? L'exploration de la relation nombre de Bond – fonction d'écoulement pourrait être mise à profit pour quantifier les effets de l'organisation microscopique de grains sur les forces interparticulaires responsables de la cohésion. Par exemple, dans certaines formulations, la répartition des grains peut être organisée en fonction de leur taille, de leur forme ou de l'ordre d'introduction des réactifs, il serait alors opportun d'en tenir compte dans le calcul du nombre de Bond du mélange $Bo_{G,mix}$ (équation (30)).

3.5 Conclusion

La rhéologie systémique appliquée à l'agitation de poudres nous a permis de mettre en évidence une relation de procédé dont les paramètres dépendent des caractéristiques des poudres et des conditions opératoires (régime d'agitation, taux de remplissage de la cuve). Afin d'établir une corrélation plus générale, nous nous attacherons, à l'avenir, de mener une analyse dimensionnelle faisant intervenir les caractéristiques des poudres. Dans cet objectif, il faudra explorer la pertinence des nombres adimensionnels qui font intervenir ces caractéristiques (nombre de Bond, nombre d'Inertie, coefficient de friction effectif) dans les situations abordées.

Un modèle simplifié basé sur une chaîne de Markov en 2-D nous a permis de quantifier diverses typologies d'écoulement au passage d'une simple pale et donc de mettre en évidence différents mécanismes de mélange opérant en mélangeur convectif. Pour être complété, le modèle reste à déployer en 3-D, sur d'autres poudres et d'autres régimes d'agitation.

L'étude de la triboélectrification et de l'élimination des charges en lit fluidisé, ainsi que l'étude physico-chimique de vieillissement de poudres extinctrices nous ont permis d'appréhender l'importance des conditions ambiantes et du stockage en milieu industriel et de développer des méthodologies pertinentes pour les aborder.

Les interactions cohésives à l'échelle des particules ont pu être mises en relation avec la fonction d'écoulement des poudres en quasi-statique. Le modèle établi prend pour l'instant en considération les seules forces de Van der Waals mais pourrait être élargi aux interactions capillaires, qui sont difficilement évitables en environnement « réel ». Pour autant, ce modèle a été mis à profit pour expliquer les différences de comportement de poudres en fonction de leur composition, de leur distribution de tailles, de leur forme, il sera une pièce maîtresse dans nos études à venir.

Enfin, nous avons montré à plusieurs reprises que la microstructure des poudres, constituées d'un ou plusieurs ingrédients, est responsable des comportements observés à pleine échelle. Caractériser cette microstructure depuis l'échelle mésoscopique constituera un des principaux enjeux pour les recherches à mener.

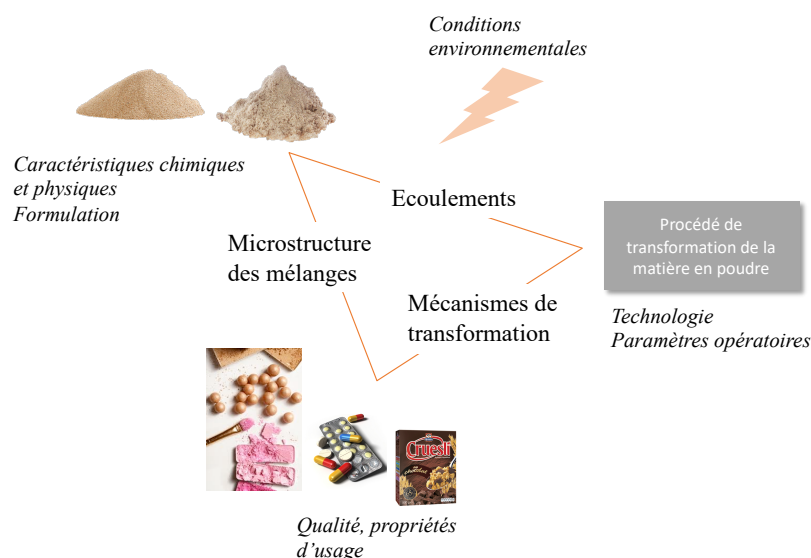


Figure 69 - Interactions caractéristiques des poudres – paramètres procédés – qualité et propriétés d'usage

Ces études multi-échelles orientées processus et produits, au sens des produits mis en jeu dans ces procédés, ont permis d'explorer les relations du triangle caractéristiques des poudres – paramètres procédés – qualité et propriétés d'usage (Figure 69). Elles permettront d'alimenter des modèles complets, prenant en considération le caractère mésoscopique des poudres.

Les démarches développées à l'origine pour les opérations d'agitation et de mélange, ont pu être déployées pour l'étude du broyage en broyeur à boulet, ouvrant des perspectives vers les procédés de mise en forme et de transformation des poudres, dans lesquels la maîtrise des écoulements est indispensable.

4 Synthèse

Les méthodes d'étude du génie des procédés peuvent être appliquées aux opérations qui mettent en œuvre des poudres et, nous l'avons vu, permettent de répondre au besoin de l'industrie de diminuer la part d'empirisme dans la conception, le dimensionnement et la conduite de ces opérations. Nous avons pu aborder et apporter des réponses à des problématiques opérationnelles qui reviennent de façon récurrente dans le quotidien des usines de production :

- La conduite des procédés : détermination d'un temps de mélange, d'une vitesse optimale d'agitation et plus généralement de l'effet d'une modification des paramètres opératoires sur le mélange obtenu ;
- Le transfert d'échelle pour un appareillage donné ou la transposition d'une opération dans un dispositif de géométrie différente ;
- L'effet d'un changement de propriétés des matières premières (distribution granulométriques et/ou forme par exemple) ou de la modification d'une formulation sur les écoulements et sur les mélanges ;
- L'impact des conditions environnementales sur les propriétés d'usage des poudres.

Pour cela, nous avons été amenés à nous équiper d'une large gamme de dispositifs de mélange instrumentés, de l'échelle du laboratoire à l'échelle pilote, d'intérêt pour des applications industrielles. Nous avons développé un savoir-faire expérimental pour la manipulation des poudres et l'analyse de l'homogénéité des mélanges aux échelles macroscopique et mésoscopique. Des études systémiques d'opérations de mélange ont été menées grâce au développement de modèles adaptés du génie des procédés et finalement, l'orientation de nos travaux ces dernières années vers des études multi-échelles nous a permis d'identifier des problématiques scientifiques à explorer et de poser les fondements pour étudier les processus mis en jeu à l'échelle microscopique. Le Tableau 22 reprend le plan adopté pour la présentation des travaux et montre comment les études systémiques et multi-échelles se complètent pour mettre à jour des problématiques scientifiques.

Tableau 22 - Synthèse des travaux présentés dans le manuscrit et verrous scientifiques identifiés

Etudes systémiques	Etudes multi-échelles	Verrous scientifiques mis à jour
2.1 Développement de méthodologies expérimentales pour déterminer l'homogénéité et la dynamique de mélange	3.4 Propriétés des poudres – propriétés des mélanges ?	Caractériser l'état de micromélange ? Imaginer des descripteurs de l'état de micromélange Préciser l'impact de la microstructure des mélanges sur leur rhéologie
2.2 Mise en œuvre des chaînes de Markov pour la conduite des mélangeurs	3.2 Expériences de traçage et Markov pour identifier des mécanismes de mélange à l'échelle mésoscopiques	Modéliser à une échelle plus fine ? Développer les modèles hybrides
2.3 Exploration de l'analyse dimensionnelle pour l'étude de l'agitation et le changement d'échelle	3.1 Phénoménologie d'agitation, au-delà des échelles et de la géométrie 3.3 Caractéristiques des particules, forces mises en jeu et paramètres environnementaux	Introduire des nombres adimensionnels pour rendre compte : - des temps caractéristiques aux différents mécanismes, - des caractéristiques rhéologiques de la poudre.

Ainsi, pour aller plus loin nous devons désormais nous attacher à :

- Imaginer des descripteurs multi-échelle de l'état d'homogénéité et en particulier des descripteurs de micromélange ;
- Introduire les caractéristiques des particules et la microstructure des assemblages de particules dans les modèles rhéologiques ;
- Développer les modèles hybrides pour modéliser à une échelle plus fine ;
- Explorer les nombres adimensionnels pour :
 - introduire des temps caractéristiques aux différents processus afin de décrire les mécanismes,
 - introduire les caractéristiques rhéologiques de la poudre dans les modèles.

Lever ces verrous nous permettra d'avancer dans l'établissement de modèles pour la conduite des mélangeurs planétaires et des mélangeurs continus, qui sont d'un réel intérêt industriel. En particulier, la détermination de descripteurs de l'état de mélange multi-échelle nous permettra d'étudier plus en détails les configurations d'alimentation des mélangeurs, comme la réalisation de pré-mélanges en amont des mélangeurs batch ou l'ordre d'introduction des réactifs mais aussi d'étudier l'étagement de l'alimentation en mélangeur continu. L'approfondissement des modèles rhéologiques sera une aide précieuse pour la conception et le transfert d'échelle des mélangeurs. En effet, aujourd'hui encore, il est par exemple impossible de prévoir comment la cohésion et le frottement granulaire des poudres impactent les efforts exercés sur une pale d'agitation lors d'un démarrage en charge. Dans la même idée, comment prévoir l'évolution de ces efforts en fonction de la formulation des poudres ?

Enfin, prendre en considération l'évolution des caractéristiques d'une poudre au cours d'une opération de transformation (modification de la taille, de la forme etc ...) et la mettre en lien avec les paramètres procédé à ajuster nous permettra d'élargir notre champ d'investigations à des procédés de mise en forme et de transformation tels le broyage, l'agglomération, le séchage ...

Chapitre III Mise en perspective

1	LES POUDRES DANS LES PROCÉDES 4.0	128
1.1	CONTEXTE INDUSTRIEL	128
1.2	PROJET DE RECHERCHE	130
2	ÉLÉMENTS DE MISE EN ŒUVRE DU PROJET	132
2.1	LES MOYENS ET COLLABORATIONS	132
2.2	CONTEXTE PROFESSIONNEL	139
2.3	« DIRIGER LES RECHERCHES », REFLEXIONS AUTOUR DE L'ENCADREMENT	139

Les problématiques scientifiques qui sous-tendent mon projet ont été énoncées en synthèse de l'exposé des travaux (Tableau 22) et certaines notions ont déjà été détaillées dans les paragraphes *Discussions* proposés à la fin de chaque partie. L'objectif du présent chapitre est de présenter les projets qui permettront d'aborder les verrous scientifiques identifiés, dans le contexte industriel actuel. Mon *Projet de recherche* sera structuré en termes de perspectives à court, moyen et plus long terme.

1 Les poudres dans les procédés 4.0

1.1 Contexte industriel

Parmi les procédés qui posent de nouveaux enjeux on compte les procédés de fabrication additive (Alcácer and Cruz-Machado, 2019). Basés sur le principe de l'addition d'une poudre, couche par couche, ils posent la question de l'étalement de poudres, en particulier des poudres fines et cohésives (Vivacqua et al., 2019), mais aussi celle de l'homogénéité des poudres déposées et des objets fabriqués. Comment s'assurer de façon non destructrice de l'homogénéité de quelques pilules pharmaceutiques produites « à façon » pour un traitement personnalisé ?

D'un point de vue Européen, s'approprier de nouveau la fabrication de nos produits, nécessite la maîtrise concomitante des impacts environnementaux, de la qualité des produits et des coûts de production. Le mode de production en continu, limitant les transferts et transports de matières, revêt un intérêt particulier pour l'augmentation des capacités de production, l'automatisation des opérations et la digitalisation des usines. Ce mode de production est aujourd'hui plus que jamais d'intérêt pour l'industrie.

Une ligne de production continue de comprimés, stockage des matières premières, mélange des ingrédients et unité de compression finale est représentée sur la Figure 70. L'opération de mélange y est centrale et doit pouvoir assurer la qualité du mélange obtenu en continu, c'est-à-dire en dépit des aléas de l'environnement de production tels que la nécessité de remplir les doseurs d'alimentation ou de palier la variabilité d'un constituant, qui peut provenir soit d'un lot différent soit de conditions de stockage variables ; ou tout simplement d'une variation de débit de production en lien avec les étapes ultérieures de la mise en forme du produit dans l'usine. De plus, le mélange produit doit avoir une coulabilité maîtrisée afin de pouvoir assurer la cadence demandée à l'unité de compression. Ce sont des contraintes auxquelles nos travaux doivent permettre de répondre.

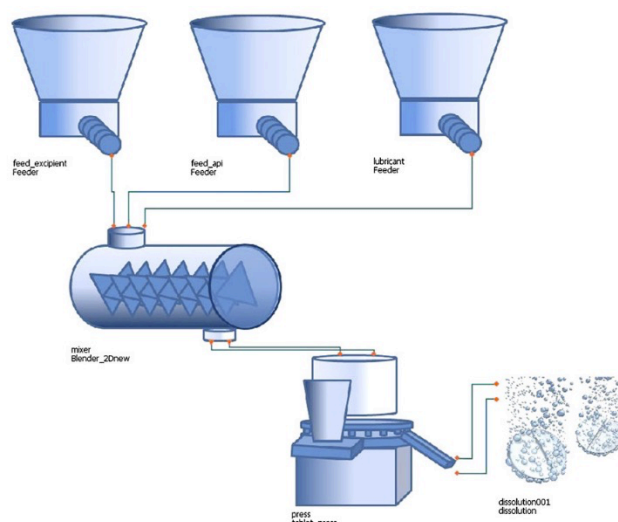


Figure 70 - Schéma d'une unité de compression en sortie d'un mélangeur continu (Ramachandran et al., 2011)

La possibilité d'une alimentation étagée des différents constituants est une perspective pour intensifier l'opération de mélange. Elle peut en effet se substituer à des étapes de pré-mélange tout en limitant les opérations de manutention de type vidange, transport et remplissage, qui présentent de risques de dégradations de l'homogénéité du produit, nécessitent de la manutention et sont finalement consommatrices de temps. Il est de surcroît intéressant d'introduire en cours de mélange, donc dans la longueur du mélangeur, des ingrédients ségrégant ou posant des problèmes de sureté. Ce dernier point est à considérer lorsque par exemple il s'agit de limiter le temps ou le volume dans lequel sont manipulés certains ingrédients.

En dépit de leurs avantages et bien que déjà présents dans les industries alimentaire et pharmaceutique, les mélangeurs de poudres en continu sont encore sous-exploités. Parmi les freins au développement des procédés mettant en œuvre des poudres en continu se posent les questions du contrôle en temps réel de la qualité des produits et en particulier :

- la résolution des méthodes de mesure de l'homogénéité en ligne, la définition de l'homogénéité qui en découle, ainsi que la prise en considération de celle-ci dans les standards industriels d'homogénéité ;
- le contrôle-commande des procédés, qui nécessite une parfaite connaissance de leur dynamique aux différentes échelles, ainsi que le développement de modèles capables de calculer, en temps réel, l'effet des variables manipulées sur les variables contrôlées.

L'usine 4.0 sera digitalisée et automatisée, des modèles commerciaux aux procédés, en passant par la gestion de la chaîne d'approvisionnement. Parmi les challenges à relever pour atteindre cet objectif on compte la possibilité de réaliser un double numérique à l'usine, qui sous-entend de disposer de modèles pour toutes les opérations, mais également la gestion des données. En effet, cette transformation débute par la collecte de données physiques à partir de capteurs classiques sur les matières premières, le procédé, les produits, qui sont transmises pour être exploitées. La raison voudrait que l'on ne collecte ou ne stocke que les données utiles à la conduite de l'usine ou à la traçabilité des produits, encore faudrait-il connaître précisément lesquelles. La collecte, la gestion de ces données représente un défi d'envergure pour les disciplines du génie industriel et du génie des procédés.

Ainsi, parmi les challenges industriels des années à venir, se posent :

- la maîtrise de l'écoulement des poudres et de la ségrégation,
- le contrôle des procédés et plus largement des lignes de production et des usines,
- l'évolution des standards d'homogénéité.

1.2 Projet de recherche

Mon projet pour les années à venir prend forme d'une part, autour des verrous scientifiques identifiés lors de l'analyse des travaux menés et d'autre part, du contexte industriel qui vient d'être énoncé. Les sujets de recherche associés aux problématiques scientifiques ainsi que les approches qui seront mises en œuvre pour y répondre sont détaillés dans le Tableau 23.

Il est attendu que les poudres d'intérêt pour ces travaux couvrent une gamme assez vaste de caractéristiques afin d'étendre la portée de nos modèles. La distribution granulométrique est la caractéristique la plus étudiée, nous chercherons en outre à travailler sur la forme, la masse volumique et les propriétés rhéologiques telles que le coefficient de friction au repos et la cohésion. Cette dernière n'est pas à proprement parler une caractéristique d'une poudre, nous chercherons en réalité à travailler avec des poudres de différentes capacités d'adhésion ou de sensibilité aux forces interparticulaires, comme les forces capillaires. Ainsi, nous pourrions élargir notre gamme de produits étudiés aux poudres céramiques, poudres issues de biomasse et poudres alimentaires.

L'agitation et le mélange, en cuve tournante ou en dispositifs convectifs, en batch ou en continu seront toujours au centre de nos études. Nous pourrions en outre y associer des procédés de transformation, afin d'enrichir les phénoménologies. Le broyage en premier lieu, qui induit une réduction de taille mais aussi de morphologie ; puis la granulation qui associe modification de taille et interactions structurantes ; et enfin nous pourrions envisager des opérations liées à des transformations thermiques comme le séchage, la combustion, la pyrolyse.

Tableau 23 – Sujets de recherche et approches envisagées pour répondre aux problématiques scientifiques identifiées

<i>Verrous scientifiques</i>	<i>Sujets de recherche</i>	<i>Méthodes / approches</i>
Imaginer des descripteurs multi-échelle de l'état d'homogénéité et en particulier des descripteurs de micromélange	Standards d'homogénéité	Définir une échelle d'homogénéité
	Caractérisation du micromélange depuis l'échelle mésoscopique ou macroscopique comme dans les liquides à partir d'une « réaction sonde »	Identifier une échelle de micromélange en relation avec l'énergie apportée par le procédé et les caractéristiques de la poudre Identifier un temps caractéristique de micromélange
		Calculer un nombre d'inertie adapté aux situations rencontrées dans nos procédés Exploiter la notion de coefficient de friction effectif
Introduire les caractéristiques des particules et la microstructure des assemblages de particules dans les modèles rhéologiques	Rhéologie des poudres en régimes quasi-statique et collisionnel, avec de la cohésion Rhéologie des mélanges	Explorer le modèle Bond-fonction d'écoulement pour évaluer l'influence des interactions à l'échelle des particules sur leurs propriétés rhéologiques Intégrer le nombre de Bond dans le calcul d'un coefficient de friction effectif Explorer les transitions entre les régimes d'écoulement
	Dynamique de mélange à différentes échelles	Identifier des mécanismes locaux de mélange et ségrégation, en lien avec un nombre d'inertie Mettre en œuvre des expériences de traçage pour identifier les mécanismes de mélange et de ségrégation à l'échelle mésoscopique à partir de modèles basés sur les chaînes de Markov
	Cartographie produits – processus-procédés	Analyser les données produit – procédés par les méthodes de « data mining »
Modéliser finement un procédé en temps raisonnable	Modèles hybrides par couplage Markov-DEM	Mettre en œuvre des modèles DEM Développer nos modèles à base de Markov à partir d'une meilleure connaissance des écoulements et des mécanismes pour la discrétisation
	Critères de changement d'échelle	Établir un critère basé sur un temps d'opération adimensionné par un temps caractéristique des processus mis en jeu
	Rhéologie systémique	Réaliser une analyse dimensionnelle exhaustive intégrant les caractéristiques des poudres (friction effective, nombre de Bond, nombre d'inertie)

2 Éléments de mise en œuvre du projet

2.1 Les moyens et collaborations

La mise en œuvre de ce projet de recherche passera par l'encadrement de stagiaires, post-doc et doctorants et des partenariats académiques et industriels.

a. A court terme

Analyse du comportement rhéologique des poudres à partir des propriétés des grains, application à l'étude d'un procédé de broyage/mélange pour la préparation du combustible nucléaire MOX

Thèse de Martin Giraud en collaboration avec le CEA, DMRC, Marcoule

Janvier 2018 – à soutenir fin 2020

Contexte industriel

Le procédé MIMAS (micronized masterblend), mis en œuvre à l'usine MELOX pour la préparation du combustible nucléaire MOX, repose en grande partie sur la manutention de milieux granulaires, principalement à travers des étapes de mélange et de broyage. La connaissance des propriétés d'écoulement des poudres à partir des caractéristiques physico-chimiques des grains élémentaires est capitale pour l'optimisation et le fonctionnement de ce procédé. Étant donnée la forte radioactivité des produits d'intérêt, il a été proposé pour cette étude de travailler dans un premier temps avec des substituts choisis sur la base de la similarité de certaines caractéristiques physiques avec les oxydes d'uranium et de plutonium, puis de transposer les résultats obtenus sur le système réel.

Déroulement prévu tel qu'écrit dans le sujet de thèse

Dans une première phase de deux ans, la thèse se focalisera sur des poudres oxydes inactives se substituant au dioxyde d'uranium et au dioxyde de plutonium. L'alumine, la zircone et l'oxyde de cérium (cérine) seront utilisées, des calculs théoriques simples ayant montré que ces poudres étaient de bons substituts de l' UO_2 et du PuO_2 du point de vue de l'intensité des forces d'interaction qui s'exercent entre les grains d'un matériau pulvérulent. Plusieurs poudres de ces divers oxydes seront étudiées. Elles se différencieront les unes des autres de par leur nature chimique (alumine versus zircone versus cérine), morphologique (agrégats aléatoires, tabulaires ou sphériques), dimensionnelle (taille et distribution granulométrique des agrégats) et microstructurale (taille et forme des cristallites élémentaires constituant les agrégats). Dans les poudres considérées, certaines seront des copies optimisées des poudres mères UO_2 et PuO_2 utilisées pour la réalisation des mélanges MOX.

Cette première partie de l'étude doit donc permettre l'identification de paramètres clés au niveau des poudres mères, de la formulation et du mode de réalisation des mélanges. Ceux-ci vont conditionner les propriétés rhéologiques de mélanges de poudres céramiques de type oxyde. L'établissement de lois de corrélations entre ces paramètres et certaines grandeurs rhéologiques seront intégrés dans le processus de changement d'échelle laboratoire-pilote.

Dans une deuxième phase d'un an, la thèse se concentrera sur l'étude de mélanges réels actifs UO_2/PuO_2 , à l'échelle du laboratoire uniquement. Une campagne d'essais sera

définie suite à l'interprétation de tous les tests menés sur les mélanges inactifs et aux lois de corrélations établies. Le principal objectif de cette deuxième phase sera de valider les grandes tendances obtenues sur des mélanges de poudres inactives dans le cas des mélanges MOX.

Objectifs scientifiques

- Établir d'une manière générale des liens précis entre le comportement rhéologique macroscopique d'un milieu granulaire et les propriétés des poudres constitutives de ce mélange à l'échelle du laboratoire.
- Mettre en évidence tous les paramètres à contrôler/optimiser lors d'un changement d'échelle dans la réalisation des mélanges, du laboratoire vers des dispositifs de taille pilote/industrielle, tout en maîtrisant les propriétés rhéologiques des lots obtenus au final.

Résumé des travaux

Dans cette étude, différentes poudres de céramique, essentiellement d'alumine, de zircon et d'oxyde d'yttrium, sont caractérisées finement en termes de rhéologie et de propriétés des grains. Un modèle, reposant sur le nombre adimensionnel de Bond granulaire et permettant de prédire la coulabilité macroscopique de poudres polydisperses à partir des propriétés des grains qui la constituent, est développé et validé. Celui-ci permet notamment de prédire efficacement la coulabilité de mélanges binaires ou ternaires et de poudres broyées en fonction des propriétés des grains et de la composition des mélanges.

L'influence de différents paramètres opératoires tels que la vitesse de rotation, le temps de broyage ou le taux de remplissage de la jarre sont étudiés dans des broyeurs à boulets de différentes tailles. Ces résultats permettent d'identifier les grandeurs adimensionnelles à prendre en compte en priorité pour le changement d'échelle du broyeur. Les similitudes géométrique, cinématique et dynamique sont discutées.

Une méthodologie permettant de prévoir l'évolution de la coulabilité de la poudre au cours du broyage est établie. Dans un premier temps, un modèle prédictif d'évolution de la distribution des tailles est élaboré, par la définition de la fonction de sélection du système et un bilan de population. Puis, sur la base du modèle qui met en relation le nombre de Bond granulaire et la fonction d'écoulement de la poudre, nous établissons l'évolution de la coulabilité de la poudre broyée au cours du temps. Un *nombre de fragmentations*, traduit par un temps caractéristique adimensionné est finalement identifié comme paramètre clé pour le changement d'échelle, lorsque le broyeur opère en régime de roulement ou de cascade.

Enfin, une méthodologie permettant de quantifier l'homogénéité de mélanges de poudres, sous la forme de pastilles, à différentes échelles est développée, dans le but de pouvoir comparer différents procédés de mélange et de co-broyage. N'ayant pas a priori connaissance de l'échelle d'observation à adopter, le principe est de faire varier l'échelle d'observation pour atteindre un coefficient de variation ou indice global d'homogénéité acceptable. Cette étude fait apparaître l'idée d'une *échelle d'acceptabilité du mélange* ou *échelle d'homogénéité*, en rupture du concept classique d'indice de ségrégation.

Valorisation

A ce jour un article est publié*, un second a été soumis dans une revue scientifique de portée internationale et trois sont en préparation.

*Martin GIRAUD, Cendrine GATUMEL, Stéphane VAUDEZ, Guillaume BERNARD-GRANGER, Jeremy NOS, Thierry GERVAIS, Henri BERTHIAUX, Linking powder flowability to interparticle

b. A moyen terme

Homogénéité des mélanges et rhéologie en mélangeur à double arbre à pales.

Thèse de Hayfa Boussoffara en convention CIFRE avec la société TETRA PAK

En cours depuis janvier 2020 – Co-directrice – 50% encadrement

Contexte

Le mélange des poudres est une opération clé dans pratiquement tous les secteurs industriels (agroalimentaire pharmacie, cosmétique, ciments, plastiques, etc.) car elle gouverne les propriétés d'usage des produits formulés dont la demande n'a cessé d'augmenter au cours de ces dernières années. La difficulté d'appréhension des phénomènes impliqués dans ces mélanges de très nombreux constituants, de caractéristiques rhéologiques souvent très différentes, a rendu ardue la conception des équipements de mélange et la définition de leur domaine d'utilisation selon les produits. Le recours de manière systématique à des essais à pleine échelle, qui sont longs et coûteux, est symptomatique de l'absence d'un lien clair entre le comportement d'une poudre en procédé et sa caractérisation rhéologique à l'échelle du laboratoire. L'entreprise Tetra Pak Powder Handling qui conçoit et commercialise des systèmes de dosage, transport et mélange de produits pulvérulents à destination de l'industrie agroalimentaire est confrontée à cette problématique et a constaté l'échec des méthodes ne prenant pas en compte la rhéologie des poudres. L'équipe « mélange des poudres » du centre RAPSODEE de IMT Mines Albi étudie le mélange des poudres depuis plus de vingt ans et a contribué de manière significative à l'avancée des connaissances en Génie des Procédés dans ce domaine.

Objectifs et méthodes

Dans ce sujet de thèse, on se propose de contribuer à l'établissement du lien entre la rhéologie des poudres et de leurs mélanges au travers des échelles industrielles, pilote et laboratoire, dans l'optique de garantir le fonctionnement optimal des mélangeurs à double arbre à pales de la gamme développée par Tetra Pak Powder Handling. Pour cela, on s'appuiera sur un programme de recherche essentiellement expérimental, basé sur :

- L'analyse statistique de mise en œuvre des poudres et des mélanges de poudres à partir des données industrielles récoltées par l'entreprise depuis plusieurs années. Ceci sera mis en contraste avec les propriétés rhéologiques de ces systèmes.
- La caractérisation de la rhéologie de poudres définies en amont, et de leurs mélanges, à l'échelle du laboratoire grâce aux moyens disponibles à RAPSODEE, notamment le rhéomètre à poudres FT4 sous ses différentes configurations (compressibilité, cisaillement, aération). Ceci sera étudié en parallèle d'une caractérisation des interactions entre particules qui pourra se résumer dans le calcul du nombre de Bond granulaire. Dépendant de la composition du mélange, celui-ci s'avère être un critère essentiel à prendre en compte, voire à intégrer dans un modèle d'empilement qui pourrait expliquer certains phénomènes observés à pleine échelle.
- Le recours à des essais pilote réalisés dans un mélangeur instrumenté pour la mesure du couple, disponible au laboratoire RAPSODEE et muni d'un système de pale simple. Ceci permettra de réaliser une étude de rhéologie « systémique », directement dans un mélangeur, se résumant à l'établissement de corrélations entre nombres adimensionnels

faisant intervenir les caractéristiques rhéologiques mesurées à l'échelle laboratoire. L'étude doit permettre d'identifier les limites d'utilisation du mélangeur selon le type de poudres. Une différenciation sera effectuée selon les régimes d'écoulement observables : phase dense, aéré ou fluidisé. Cette étude sera étendue pour un système à double arbre, identique à celui utilisé par l'entreprise, à inclure dans le système actuel par exemple. Selon les résultats obtenus et le temps disponibles, on envisagera la possibilité de réaliser une modélisation DEM de la rhéologie à l'échelle mésoscopique afin d'alimenter les corrélations par des expériences numériques.

- Des essais ciblés à pleine échelle seront réalisés pour valider certaines conclusions et entériner les corrélations obtenues.

L'ensemble devrait permettre de contribuer à la cartographie et à la classification des poudres et de leurs mélanges sous l'angle de leurs caractéristiques rhéologiques, par exemple sous forme d'abaque. Il devrait servir de guide pour l'extrapolation des mélangeurs à double arbre et renforcer la méthodologie d'étude.

c. A plus long terme

Intensification du mélange des poudres dans une maquette de mélangeur continu instrumenté pour la rhéologie, avec alimentation multi-étagée

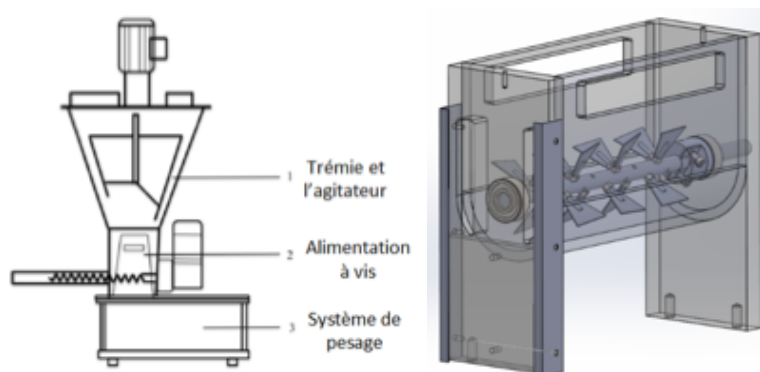


Figure 71 – Maquette de mélangeur continu équipée d'un couplemètre, conçue au laboratoire RAPSODEE ; alimentation mobile par des doseurs pondéraux

Mots clé : procédés continu, agitation, mélange de poudres, design, intensification

Méthodologie de recherche :

Approche expérimentale et modélisation, autour d'une maquette de mélangeur continu (Figure 71).

- Rhéologie systémique, étude des écoulements de poudres pour intégrer leurs propriétés physiques dans un modèle prédictif. A moyen terme, identifier des régimes d'agitation en fonction des paramètres procédés et des caractéristiques des poudres mesurées avec des dispositifs de caractérisation commerciaux
- Étude procédé, étagement de l'alimentation (ordre et lieux d'introduction des ingrédients d'un mélange), avec comme outils DTS, Markov. Le modèle d'alimentation étagée incluant une ségrégation radiale proposé par Vadim Mizonov (Mizonov et al., 2015) a été testé expérimentalement au cours du stage de Carla Barcelo (2018 – RAPSODEE, IMT Mines Albi) pour des mélanges couscous/semoule et couscous/lactose. Les résultats montrent que pour le mélange ségrégant de couscous et

de semoule, la meilleure homogénéité est obtenue lorsque les ingrédients sont alimentés dans la deuxième cellule du mélangeur Gericke GCM 500 (découpé en cinq cellules). L'identification des paramètres du modèle reste le point délicat de cette étude. Travailler sur le mélangeur pilote permettra non seulement de faciliter la manutention mais aussi de travailler avec des masses retenues plus importante afin de pouvoir travailler avec plus de cellules pour mieux identifier le mélange radial. L'hybridation du modèle macroscopique avec un modèle DEM est une alternative à envisager afin d'inclure les interactions inter-particulaires pour prédire l'homogénéité des mélanges.

Objectifs :

- Identification de mécanismes de mélange et de ségrégation et optimisation de l'homogénéité de mélanges de poudre à partir de la configuration du mélangeur en régime permanent, impact sur les phases transitoires de mise en route ou changement de paramètres fonctionnels (débits, vitesses d'agitation)
- Fournir un modèle complet établissant les liens entre les ingrédients, le dispositif, les paramètres procédés et la production pour le pilotage d'un mélangeur continu.

Moyens :

Une thèse à démarrer en septembre 2021 et un post-doc pour développer le modèle DEM

Du procédé à l'usine : projet data RAPSODEE

Collaboration envisagée : Jean-Louis Dirion (IMT Mines Albi, laboratoire RAPSODEE)

La science des données peut apporter une aide considérable pour mettre en évidence des relations entre certaines caractéristiques des particules comme la taille, distribution de taille, forme, porosité, masse volumique, composition chimique ... et leur comportement en procédé (tendance à l'auto-granulation, propriétés d'écoulement, tendance à la ségrégation ...).

Ce projet de capitalisation de connaissances par des modèles basés sur l'observation des données pourra être déployé à trois échelles :

- A l'échelle d'un mélangeur en incluant les paramètres procédés en données d'entrée, dans l'objectif de mettre en évidence leurs liens avec des grandeurs observées en sortie comme la puissance dissipée, l'intensité ou l'échelle de ségrégation.
- A l'échelle du laboratoire RAPSODEE, ce qui nous permettra d'élargir à la fois l'étendue des poudres et des procédés concernés.
- Plus largement, si résultats sont encourageants, avec d'autres équipes académiques ou partenaires industriels.

d. Discussion

Le Tableau 24 montre comment les trois sujets actuellement dessinés, en cours ou à venir, s'insèrent dans mon projet.

Le projet Data RAPSODEE concerne essentiellement le point « Modéliser finement un procédé en temps raisonnable » - « Cartographie produits – processus-procédés ».

Seule la « Caractérisation du micromélange depuis l'échelle mésoscopique ou macroscopique comme dans les liquides à partir d'une réaction sonde » n'est pas abordée

explicitement. C'est un sujet prospectif dont la définition précise nécessite une réflexion plus approfondie qui n'est pas encore totalement aboutie, deux options se dessinent :

- l'alimenter au grès des avancées des autres sujets, en le conservant en « fil rouge »
- dessiner un projet à part entière, qui pourrait être à l'origine d'un partenariat académique.

Tableau 24 – Mise en relation des sujets à venir avec le projet scientifique

<i>Verrous scientifiques</i>	<i>Sujets de recherche</i>	<i>Méthodes / approches</i>	<i>Thèse Martin Giraud</i>	<i>Thèse Hayfa Boussoffara</i>	<i>Intensification mélange continu</i>
Imaginer des descripteurs multi-échelle de l'état d'homogénéité et en particulier des descripteurs de micromélange	Standards d'homogénéité	Définir une échelle d'homogénéité	X		X
	Caractérisation du micromélange depuis l'échelle mésoscopique ou macroscopique comme dans les liquides à partir d'une « réaction sonde »	Identifier une échelle de micromélange en relation avec l'énergie apportée par le procédé et les caractéristiques de la poudre			
		Identifier un temps caractéristique de micromélange			
Introduire les caractéristiques des particules et la microstructure des assemblages de particules dans les modèles rhéologiques	Rhéologie des poudres en régimes quasi-statique et collisionnel, avec de la cohésion Rhéologie des mélanges	Calculer un nombre d'inertie adapté aux situations rencontrées dans nos procédés		X	
		Exploiter la notion de coefficient de friction effectif		X	
		Explorer le modèle Bond-fonction d'écoulement pour évaluer l'influence des interactions à l'échelle des particules sur leurs propriétés rhéologiques	X	X	
		Intégrer le nombre de Bond dans le calcul d'un coefficient de friction effectif		X	
		Explorer les transitions entre les régimes d'écoulement		X	
Modéliser finement un procédé en temps raisonnable	Dynamique de mélange à différentes échelles	Identifier des mécanismes locaux de mélange et ségrégation, en lien avec un nombre d'inertie		X	X
		Mettre en œuvre des expériences de traçage pour identifier les mécanismes de mélange et de ségrégation à l'échelle mésoscopique à partir de modèles basés sur les chaînes de Markov			X
	Cartographie produits – processus-procédés	Analyser les données produit – procédés par les méthodes de « data mining »		x	
	Modèles hybrides par couplage Markov-DEM	Mettre en œuvre des modèles DEM		x	X
		Développer nos modèles à base de Markov à partir d'une meilleure connaissance des écoulements et des mécanismes pour la discrétisation			X
Explorer les nombres adimensionnels pour définir des temps caractéristiques aux différents processus et introduire les caractéristiques rhéologiques des poudres dans les modèles systémiques	Critères de changement d'échelle	Établir un critère basé sur un temps d'opération adimensionné par un temps caractéristique des processus mis en jeu	x		X
	Rhéologie systémique	Réaliser une analyse dimensionnelle exhaustive intégrant les caractéristiques des poudres (friction effective, nombre de Bond, nombre d'inertie)	x	X	X

2.2 Contexte professionnel

Nourri des connaissances acquises et des compétences développées au travers des travaux de recherche menés depuis une vingtaine d'années, mon projet prend forme dans un cadre professionnel plus large que mes activités de recherche. Enseignant-chercheur de métier, mes activités professionnelles sont naturellement partagées entre recherche, développement économique et enseignement. J'ai eu la chance de pouvoir exercer certaines responsabilités depuis dix ans, dans la filière de formation en alternance de IMT Mines Albi, dont je viens de prendre la direction. La fertilisation croisée de ces différentes activités se présente sous trois aspects :

- Diffuser les connaissances en génie des procédés des solides divisés vers les futurs ingénieurs ou chercheurs par les activités d'enseignement.
- Rester au plus près des préoccupations du monde industriel, en m'appuyant sur mes activités de tutorat et ma responsabilité dans la formation en alternance.
- Progresser dans l'accompagnement des élèves ingénieurs et futurs docteurs, dans le sens de donner une direction tout en favorisant les idées et les initiatives personnelles, afin de monter en compétence ensemble.

2.3 « Diriger les recherches », réflexions autour de l'encadrement

Le doctorat en génie des procédés est par essence multi-échelle et multidisciplinaire, mais l'ingénierie des produits et l'évolution des procédés de fabrication mènent à intégrer des champs disciplinaires et des approches scientifiques de plus en plus vastes. Dans la même idée, les montages de financements parfois complexes, impliquant des portions de bourses, encourageant au développement de partenariats multiples qui renforcent la diversité des angles de vue voire des dimensions abordées : sociétales, économiques, environnementales.

Ainsi, le doctorat n'est plus forcément l'approfondissement d'une seule question mais souvent de plusieurs questions connexes. Ces dernières années ont vu émerger et foisonner les thèses sur travaux, qui se prêtent bien à l'exercice : le doctorant ne « raconte plus une histoire » mais des histoires qui s'imbriquent et qui sont lisibles indépendamment les unes des autres. Cela représente pour moi la possibilité de matérialisation d'une pensée qui n'est plus impérativement linéaire mais arborescente.

Certains doctorants peuvent se sentir dépossédés de leur thèse car les publications sont co-signées avec les encadrants et sont soumises au processus itératif de review des éditeurs. Mais il me semble que c'est aussi une motivation, dans le sens où la mise en avant des développements originaux est source de fierté pour le doctorant. Si l'équipe d'encadrement et le doctorant s'accordent suffisamment tôt sur le principe, par exemple en fin de première année, cela peut être une motivation supplémentaire pour approfondir l'exploitation de certains résultats un peu en marge du fil rouge de la thèse et finalement d'enrichir son travail.

Cette présentation des travaux de thèse revêt également un intérêt scientifique. Les thèses sur travaux permettent en effet de sortir de leur contexte certains résultats et certaines approches, qui en seront d'autant plus facile à assembler différemment pour étayer une stratégie de recherche à plus long terme.

Conclusion générale

Forces, faiblesses, menaces et opportunités pour la mise en œuvre du projet

L'analyse des travaux de recherche présentés dans ce mémoire a mis en avant les forces sur lesquelles je pourrai m'appuyer pour développer mon projet. Ce sont principalement :

- Une plateforme expérimentale couvrant une large gamme de dispositifs de mélange instrumentés, de l'échelle du laboratoire à l'échelle pilote, d'intérêt pour des applications industrielles.
- Un savoir-faire expérimental pour la manipulation des poudres et l'analyse de l'homogénéité des mélanges à l'échelle macro voire mésoscopique.
- Le développement de modèles pour mener des études systémiques.

N'ayant pas pris il y a une quinzaine d'années la voie de la modélisation par éléments discrets, l'hybridation de nos modèles systémiques devra s'appuyer sur l'utilisation de codes commerciaux s'ils sont suffisants, ou nous pourrons nous associer avec des partenaires académiques ayant la possibilité de développer des modèles spécifiques à nos besoins.

La principale menace pour le développement de nos activités, en particulier pour l'intégration des caractéristiques des poudres et des particules dans nos modèles réside dans le fait que le parc de moyens communs de caractérisation au laboratoire RAPSODEE est vieillissant et des investissements spécifiques sont à prévoir pour la caractérisation. Trouver des moyens nécessite de répondre à des appels à projet, de monter des collaborations, ce qui prend du temps ... or mes fonctions à la tête de la formation en alternance sont très consommatrices de temps.

Mettre à profit les liens développés avec le monde économique au travers des activités liées à l'encadrement des stages de nos élèves et la responsabilité de la filière de formation en alternance est une réelle opportunité de mener des travaux en cohérence avec le contexte industriel. Enfin, dans les années futures, l'intégration d'un jeune maître-assistant pour consolider notre équipe et compléter nos compétences en modélisation, voire élargir notre champ d'application à d'autres produits et procédés serait un atout supplémentaire.

Bilan personnel

Investie dans des activités d'enseignement et d'ingénierie pédagogique depuis le début de ma carrière, puis dans des responsabilités en formation, il a été difficile de mener de front une activité de recherche aussi intense que je l'aurais voulu, ce qui fût souvent frustrant. C'est finalement petit à petit, grâce au travail en équipe mené depuis toutes ces années avec Henri et portée par l'enthousiasme de nos partenaires industriels et académiques, de nos stagiaires et doctorants, que ce projet de rédaction d'habilitation à diriger les recherches a pu prendre réalité. Me replonger dans tous ces travaux m'a confortée dans l'idée que cette aventure à la fois intellectuelle et humaine était bien celle pour laquelle j'avais signé il y a vingt ans ... et donné un nouveau souffle pour les vingt années à venir !

Bibliographie

Alcácer, V., Cruz-Machado, V., 2019. Scanning the Industry 4.0: A Literature Review on Technologies for Manufacturing Systems. *Eng. Sci. Technol. Int. J.* 22, 899–919. <https://doi.org/10.1016/j.jestch.2019.01.006>

Alexander, A., Shinbrot, T., Muzzio, F.J., 2002. Scaling surface velocities in rotating cylinders as a function of vessel radius, rotation rate, and particle size. *Powder Technol.* 126, 174–190. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(02\)00010-4](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(02)00010-4)

Alexander, A.W., Chaudhuri, B., Faqih, A., Muzzio, F.J., Davies, C., Tomassone, M.S., 2006. Avalanching flow of cohesive powders. *Powder Technol.* 164, 13–21. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2006.01.017>

Ammarcha, C., Gatumel, C., Dirion, J.L., Cabassud, M., Berthiaux, H., 2017. Continuous powder mixing of segregating mixtures under steady and unsteady state regimes: Homogeneity assessment by real-time on-line image analysis. *Powder Technol.* 315, 39–52. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2017.02.010>

Ammarcha, C., Gatumel, C., Dirion, J.L., Cabassud, M., Mizonov, V., Berthiaux, H., 2019. Powder flow and mixing in a continuous mixer operating in either transitory or steady-state regimes: Mesoscopic Markov chain models. *Powder Technol.* 346, 116–136. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.01.085>

Ammarcha, C., Gatumel, C., Dirion, J.L., Cabassud, M., Mizonov, V., Berthiaux, H., 2013. Transitory powder flow dynamics during emptying of a continuous mixer. *Chem. Eng. Process. Process Intensif.* 65, 68–75. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2012.12.004>

Ammarcha, C., Gatumel, C., Dirion, J.L., Cabassud, M., Mizonov, V., Berthiaux, H., 2012. Predicting bulk powder flow dynamics in a continuous mixer operating in transitory regimes. *Adv. Powder Technol.* 23, 787–800. <https://doi.org/10.1016/j.appt.2011.10.008>

André, C., Demeyre, J.F., Gatumel, C., Berthiaux, H., Delaplace, G., 2014. Derivation of dimensionless relationships for the agitation of powders of different flow behaviours in a planetary mixer. *Powder Technol.* 256, 33–38. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2014.02.002>

André, C., Demeyre, J.F., Gatumel, C., Berthiaux, H., Delaplace, G., 2012. Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders: Mixing time and power consumption. *Chem. Eng. J.* 198–199, 371–378. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2012.05.069>

Berger, N., Azéma, E., Douce, J.-F., Radjai, F., 2015. Scaling behaviour of cohesive granular flows. *EPL Europhys. Lett.* 112, 64004. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/112/64004>

Bergum, J.S., Prescott, J.K., Tejawani, R.W., Garcia, T.P., Clark, J., Brown, W., 2014. Current Events in Blend and Content Uniformity, in: *Product Development, Pharmaceutical Engineering*. Presented at the ISPE Annual meeting, p. 10.

Bernard-Granger, G., Giraud, M., Pascal, E., Mailhan, L., Larsson, T., Valot, C., Ablitzer, C., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2019. Rheological properties of alumina powder mixtures investigated using shear tests. *Powder Technol.* 345, 300–310. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.01.027>

Berntsson, O., Danielsson, L.-G., Lagerholm, B., Folestad, S., 2002. Quantitative in-

line monitoring of powder blending by near infrared reflection spectroscopy. *Powder Technol.* 123, 185–193. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(01\)00456-9](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(01)00456-9)

BERTHIAUX, H., 2002. Mélange et homogénéisation des solides divisés. *Tech. Ing. Mise En Forme Médicam.*

Berthiaux, H., Mizonov, V., 2004. Applications of Markov Chains in Particulate Process Engineering: A Review. *Can. J. Chem. Eng.* 82, 1143–1168. <https://doi.org/10.1002/cjce.5450820602>

Berthiaux, H., Mizonov, V., Zhukov, V., 2005. Application of the theory of Markov chains to model different processes in particle technology. *Powder Technol.* 157, 128–137. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2005.05.019>

Bertrand, F., Leclaire, L.-A., Levecque, G., 2005. DEM-based models for the mixing of granular materials. *Chem. Eng. Sci.* 60, 2517–2531. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.11.048>

Bhalode, P., Ierapetritou, M., 2020. A review of existing mixing indices in solid-based continuous blending operations. *Powder Technol.* 373, 195–209. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2020.06.043>

Capece, M., Ho, R., Strong, J., Gao, P., 2015. Prediction of powder flow performance using a multi-component granular Bond number. *Powder Technol.* 286, 561–571. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2015.08.031>

Capece, M., Silva, K.R., Sunkara, D., Strong, J., Gao, P., 2016. On the relationship of inter-particle cohesiveness and bulk powder behavior: Flowability of pharmaceutical powders. *Int. J. Pharm.* 511, 178–189. <https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2016.06.059>

Carr, R.L., 1965. Evaluating Flow properties of Solids. *Chemical Engineering* 163–168.

Castellanos, A., 2005. The relationship between attractive interparticle forces and bulk behaviour in dry and uncharged fine powders. *Adv. Phys.* 54, 263–376. <https://doi.org/10.1080/17461390500402657>

Chen, Y., Yang, J., Dave, R.N., Pfeffer, R., 2008. Fluidization of coated group C powders. *AIChE J.* 54, 104–121. <https://doi.org/10.1002/aic.11368>

Chevoir, F., Roux, J.-N., da Cruz, F., Rognon, P.G., Koval, G., 2009. Friction law in dense granular flows. *Powder Technol.* 190, 264–268. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2008.04.061>

Cundall, P.A., Strack, O.D.L., 1979. A discrete numerical model for granular assemblies. *Geotechnique* 29, 47–65.

DANCKWERTS, P.V., 1953. Theory of mixtures and mixing. *Research* 6, 355–361.

Delaplace, G., Loubière, K., Ducept, F., Jeantet, R., 2014. Modélisation en génie des procédés par analyse dimensionnelle. *Lavoisier.*

Delaplace, G., Thakur, R.K., Bouvier, L., André, C., Torrez, C., 2007. Dimensional analysis for planetary mixer: Mixing time and Reynolds numbers. *Chem. Eng. Sci.* 62, 1442–1447. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2006.11.039>

Demeyre, J.-F., 2007. Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe®. *Institut National Polytechnique de Toulouse.*

Devriendt, L., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2013. Experimental Evidence of Mixture

Segregation by Particle Size Distribution. Part. Sci. Technol. 31, 653–657. <https://doi.org/10.1080/02726351.2013.832447>

Doucet, J., Hudon, N., Bertrand, F., Chaouki, J., 2008. Modeling of the mixing of monodisperse particles using a stationary DEM-based Markov process. Comput. Chem. Eng. 32, 1334–1341. <https://doi.org/10.1016/j.compchemeng.2007.06.017>

Ehrhardt, N., Montagne, M., Berthiaux, H., Dalloz-Dubrujeaud, B., Gatumel, C., 2005. Assessing the homogeneity of powder mixtures by on-line electrical capacitance. Chem. Eng. Process. Process Intensif. 44, 303–313. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2004.03.016>

Entrop, W., 1978. . Presented at the International symposium on mixing, Mons, pp. 1–14.

FDA, 2003. Powder Blends and Finished Dosage Units—Stratified In-Process Dosage Unit Sampling and Assessment.

Freeman, R., 2007. Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders — A comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell. Powder Technol. 174, 25–33. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2006.10.016>

Gao, Y., Ierapetritou, M., Muzzio, F., 2012. Periodic section modeling of convective continuous powder mixing processes. AIChE J. 58, 69–78. <https://doi.org/10.1002/aic.12563>

Gatumel, C., Espitalier, F., Schwartzentruber, J., Biscans, B., Wilhelm, A.M., 1998. Nucleation Control in Precipitation Processes by Ultrasound 10.

GDR MiDi, 2004. On dense granular flows. Eur. Phys. J. E 14, 341–365. <https://doi.org/10.1140/epje/i2003-10153-0>

Ghadiri, M., Pasha, Mehrdad, Nan, W., Hare, C., Vivacqua, V., Zafar, U., Nezamabadi, S., Lopez, A., Pasha, Massih, Nadimi, S., 2020. Cohesive Powder Flow: Trends and Challenges in Characterisation and Analysis. KONA Powder Part. J. 37, 3–18. <https://doi.org/10.14356/kona.2020018>

Giraud, M., Gatumel, C., Vaudez, S., Bernard-Granger, G., Nos, J., Gervais, T., Berthiaux, H., 2020. Investigation of a granular Bond number based rheological model for polydispersed particulate systems. Chem. Eng. Sci. 115971. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2020.115971>

Gotoh, K., 2018. Powder characteristics for index of powder unit operation. J. Taiwan Inst. Chem. Eng. 90, 4–8. <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2018.01.033>

Gu, Y., Chialvo, S., Sundaresan, S., 2014. Rheology of cohesive granular materials across multiple dense-flow regimes. Phys. Rev. E 90, 032206. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.90.032206>

Gyenis, J., 1999. Assessment of mixing mechanism on the basis of concentration pattern. Chem. Eng. Process. Process Intensif. 38, 665–674. [https://doi.org/10.1016/S0255-2701\(99\)00066-5](https://doi.org/10.1016/S0255-2701(99)00066-5)

Hamaker, H.C., 1937. The London—van der Waals attraction between spherical particles. Physica 4, 1058–1072. [https://doi.org/10.1016/S0031-8914\(37\)80203-7](https://doi.org/10.1016/S0031-8914(37)80203-7)

Hon-Cheung, Y., 1980. Geometrical investigation of a general octahedral linkage and the turbula. Mech. Mach. Theory 15, 463–478. [https://doi.org/10.1016/0094-114X\(80\)90042-7](https://doi.org/10.1016/0094-114X(80)90042-7)

Huang, Z., Scicolone, J.V., Gurumuthy, L., Davé, R.N., 2015. Flow and bulk density enhancements of pharmaceutical powders using a conical screen mill: A continuous dry coating device. *Chem. Eng. Sci.* 125, 209–224. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2014.05.038>

Inoue, I., Yamaguchi, K., 1970. Particle Motion in a Mixer. Mixing in a Two Dimensional V-Type Mixer. *Intern. Chem. Eng.* 10, 490–497.

Knight, P.C., Seville, J.P.K., Wellm, A.B., Instone, T., 2001. Prediction of impeller torque in high shear powder mixers. *Chem. Eng. Sci.* 56, 4457–4471. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(01\)00114-2](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(01)00114-2)

Kusumanindhyah, N., Brissonneau, L., Gilardi, T., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2019. The role of powder physicochemical properties on the extinction performance of an extinguishing powder for sodium fires. *Nucl. Eng. Des.* 346, 24–34. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2019.02.017>

Kusumanindyah, N.A.P., 2016. Study of the physicochemical properties of an extinguishing powder for sodium fires: aging, fabrication, and mechanism of extinction. Institut National Polytechnique de Toulouse.

Lacey, P.M.C., 1954. Developments in the theory of particle mixing. *J. Appl. Chem.* 4, 257–268. <https://doi.org/10.1002/jctb.5010040504>

Legoix, L., 2016. Étude expérimentale et modélisation de mélangeurs convectifs: agitation de poudres de différentes coulabilités. Institut National Polytechnique de Toulouse.

Legoix, L., Gatumel, C., Milhe, M., Berthiaux, H., 2017a. Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender. *Powder Technol.* 305, 609–619. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2016.09.021>

Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux, H., 2017b. Characterizing powders in order to determine their flow behavior in a mixer: From small scale observations to macroscopic in-mixer rheology for powders of various flowabilities. *Powder Technol.* 322, 314–331. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2017.07.075>

Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux, H., Mizonov, V., 2017c. Powder flow dynamics in a horizontal convective blender: Tracer experiments. *Chem. Eng. Res. Des.* 121, 1–21. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2017.03.002>

Leturia, M., Benali, M., Lagarde, S., Ronga, I., Saleh, K., 2014. Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods. *Powder Technol.* 253, 406–423. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.11.045>

Liu, L.X., Marziano, I., Benthani, A.C., Litster, J.D., E.T.White, Howes, T., 2008. Effect of particle properties on the flowability of ibuprofen powders. *Int. J. Pharm.* 362, 109–117. <https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2008.06.023>

Makishima, S.-I., Shirai, T., 1968. EXPERIMENTAL STUDY ON THE POWER REQUIREMENTS FOR AGITATING BEDS OF SOLID PARTICLES, AND PROPOSAL OF A NEW MODEL. *J. Chem. Eng. Jpn.* 1, 168–174. <https://doi.org/10.1252/jcej.1.168>

Mandato, S., Cuq, B., Ruiz, T., 2012. Experimental study of vertical stress profiles of a confined granular bed under static and dynamic conditions. *Eur. Phys. J. E* 35, 56. <https://doi.org/10.1140/epje/i2012-12056-3>

Marigo, M., Cairns, D.L., Davies, M., Ingram, A., Stitt, E.H., 2012. A numerical comparison of mixing efficiencies of solids in a cylindrical vessel subject to a range of motions. *Powder Technol.* 217, 540–547. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2011.11.016>

Marigo, M., Davies, M., Leadbeater, T., Cairns, D.L., Ingram, A., Stitt, E.H., 2013. Application of Positron Emission Particle Tracking (PEPT) to validate a Discrete Element Method (DEM) model of granular flow and mixing in the Turbula mixer. *Int. J. Pharm.* 446, 46–58. <https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2013.01.030>

Marikh, K., Berthiaux, H., Gatumel, C., Mizonov, V., Barantseva, E., 2008. Influence of stirrer type on mixture homogeneity in continuous powder mixing: A model case and a pharmaceutical case. *Chem. Eng. Res. Des.* 86, 1027–1037. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2008.04.001>

Marikh, K., Berthiaux, H., Mizonov, V., Barantseva, E., Ponomarev, D., 2006. Flow Analysis and Markov Chain Modelling to Quantify the Agitation Effect in a Continuous Powder Mixer. *Chem. Eng. Res. Des.* 84, 1059–1074. <https://doi.org/10.1205/cherd05032>

Massol-Chaudeur, S., Berthiaux, H., Dodds, J.A., 2002. Experimental study of the mixing kinetics of binary pharmaceutical powder mixtures in a laboratory hoop mixer. *Chem. Eng. Sci.* 57, 4053–4065. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(02\)00262-2](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(02)00262-2)

Mayer-Laigle, C., 2012. Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes particuliers en mélangeur Turbula® : application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites. Institut National Polytechnique de Toulouse.

Mayer-Laigle, C., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2019. Scale-up in Turbula® mixers based on the principle of similarities. *Part. Sci. Technol.* 1–12. <https://doi.org/10.1080/02726351.2019.1644689>

Mayer-Laigle, C., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2015. Mixing dynamics for easy flowing powders in a lab scale Turbula® mixer. *Chem. Eng. Res. Des.* 95, 248–261. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2014.11.003>

Mayer-Laigle, C., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2011. A 2D autocorrelation method for assessing mixture homogeneity as applied to bipolar plates in fuel cell technology. *Adv. Powder Technol.* 22, 167–173. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2010.09.005>

Mellmann, J., 2001. The transverse motion of solids in rotating cylinders—forms of motion and transition behavior. *Powder Technol.* 118, 251–270. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(00\)00402-2](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(00)00402-2)

Midoux Noël, 1985. Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique, Génie des procédés de l'École de Nancy. Tec & Doc, Paris Londres New York.

Mizonov, V., Barantseva, E., Khokhlova, Y., Berthiaux, H., Gatumel, C., 2009a. Theoretical Study of Superposition of Macro- and Microscale Mixing and its Influence on Mixing Kinetics and Mixture Quality. *Part. Sci. Technol.* 27, 327–336. <https://doi.org/10.1080/02726350902991015>

Mizonov, V., Berthiaux, H., Gatumel, C., 2015. Theoretical Study of Optimal Positioning of Segregating Component Input into Continuous Mixer of Solids. *Part. Sci. Technol.* 33, 339–341. <https://doi.org/10.1080/02726351.2014.970312>

Mizonov, V., Berthiaux, H., Gatumel, C., Barantseva, E., Khokhlova, Y., 2009b. Influence of crosswise non-homogeneity of particulate flow on residence time distribution in a continuous mixer. *Powder Technol.* 190, 6–9. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2008.04.052>

Molerus, O., 1975. Theory of yield of cohesive powders. *Powder Technol.* 12, 259–275. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(75\)85025-X](https://doi.org/10.1016/0032-5910(75)85025-X)

Mory Mathieu, 2010. Écoulements pour les procédés: applications à la réaction chimique et à la séparation mécanique, Mécanique des fluides. Hermes science publLavoisier, Paris.

Muzzio, F.J., Alexander, A.W., 2005. Scale Up of Powder- Blending Operations. Pharmaceutical technology, Scaling-up manufacturing 34–43.

Nadeem, H., Heindel, T.J., 2018. Review of noninvasive methods to characterize granular mixing. Powder Technol. 332, 331–350. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2018.03.035>

Norton, J., 2015. An introduction to sensitivity assessment of simulation models. Environ. Model. Softw. 69, 166–174. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2015.03.020>

Orozco, L.F., Delenne, J.-Y., Sornay, P., Radjai, F., 2020. Scaling behavior of particle breakage in granular flows inside rotating drums. Phys. Rev. E 101, 052904. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.101.052904>

Pignatelli, F., Asselin, C., Krieger, L., Christov, I.C., Ottino, J.M., Lueptow, R.M., 2012. Parameters and scalings for dry and immersed granular flowing layers in rotating tumblers. Phys. Rev. E 86, 011304. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.86.011304>

Ponomarev, D., 2006. MODELES MARKOVIENS POUR LE MELANGE DES POUDRES EN MELANGEUR STATIQUE. Institut National Polytechnique de Toulouse.

Portillo, P., Muzzio, F., Ierapetritou, M., 2006. Characterizing powder mixing processes utilizing compartment models. Int. J. Pharm. 320, 14–22. <https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2006.03.051>

Radl, S., Brandl, D., Heimbürg, H., Glasser, B.J., Khinast, J.G., 2012. Flow and mixing of granular material over a single blade. Powder Technol. 226, 199–212. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2012.04.042>

Ramachandran, R., Arjunan, J., Chaudhury, A., Ierapetritou, M.G., 2011. Model-Based Control-Loop Performance of a Continuous Direct Compaction Process. J. Pharm. Innov. 6, 249–263. <https://doi.org/10.1007/s12247-011-9118-2>

Revel, J., 2003. Etude expérimentale de phénomènes électrostatiques lors de la fluidisation de granulés et de poudres de polyéthylène : charge et neutralisation par injection sipéersonique d'ions. Ecole des Mines de Paris, Albi.

Revel, J., Gatumel, C., Dodds, J.A., Taillet, J., 2003. Generation of static electricity during fluidisation of polyethylene and its elimination by air ionisation. Powder Technol. 135–136, 192–200. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2003.08.015>

Sandeaux, J., Gatumel, C., Kamenka, N., Brun, B., 1977. Interaction de la sérum albumine humaine et des anions trichloracétate et chlorure étudiée par autodiffusion. J. Chim. Phys. 74, 109–114. <https://doi.org/10.1051/jcp/1977740109>

Sarkar, A., Wassgren, C.R., 2009. Simulation of a continuous granular mixer: Effect of operating conditions on flow and mixing. Chem. Eng. Sci. 64, 2672–2682. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.02.011>

Sato, M., Miyanami, K., Yano, T., 1979. Power Requirement of Horizontal Cylindrical Mixer. J. Soc. Powder Technol. Jpn. 16, 3–7. <https://doi.org/10.4164/sptj.16.3>

Schofield, C., 1976. The definition and assessment of mixture quality in mixtures of particulate solids. Powder Technol. 15, 169–180. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(76\)80045-9](https://doi.org/10.1016/0032-5910(76)80045-9)

Schofield, C., 1970. Assessing mixtures by autocorrelation. *Trans.Inst. Chem. Engrs.* 48, T28–T34.

Shah, U.V., Karde, V., Ghoroi, C., Heng, J.Y.Y., 2017. Influence of particle properties on powder bulk behaviour and processability. *Int. J. Pharm.* 518, 138–154. <https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2016.12.045>

Thomas, G., Ouabbas, Y., Grosseau, P., Baron, M., Chamayou, A., Galet, L., 2009. Modeling the mean interaction forces between powder particles. Application to silica gel–magnesium stearate mixtures. *Appl. Surf. Sci.* 255, 7500–7507. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2009.03.099>

Tomasetta, I., Barletta, D., Poletto, M., 2014. Correlation of powder flow properties to interparticle interactions at ambient and high temperatures. *Particuology* 12, 90–99. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2013.02.002>

Trabelsi, B., 2013. Simulation numérique de l'écoulement et mélange granulaire par des éléments discrets ellipsoïdaux. Institut National Polytechnique de Toulouse.

Trabelsi, I., Moakher, M., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2009. An algebraic condition and an algorithm for the internal contact between two ellipsoids. *Eng. Comput.* 26, 635–644. <https://doi.org/10.1108/026444400910975432>

Vanarase, A.U., Osorio, J.G., Muzzio, F.J., 2013. Effects of powder flow properties and shear environment on the performance of continuous mixing of pharmaceutical powders. *Powder Technol.* 246, 63–72. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.05.002>

Villermaux Jacques, 1993. Génie de la réaction chimique: conception et fonctionnement des réacteurs, 2e édition revue et augmentée. ed, Génie des procédés de l'Ecole de Nancy. Tec & doc, Paris [etc].

Vivacqua, V., López, A., Hammond, R., Ghadiri, M., 2019. DEM analysis of the effect of particle shape, cohesion and strain rate on powder rheometry. *Powder Technol.* 342, 653–663. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2018.10.034>

Wohllhart, K., 1981. Dynamic analysis of the Turbula. Presented at the International symposium on gearing and power transmission, Tokyo, pp. 425–430.

Yari, B., Beaulieu, C., Sauriol, P., Bertrand, F., Chaouki, J., 2020. Size segregation of bidisperse granular mixtures in rotating drum. *Powder Technol.* 374, 172–184. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2020.07.030>

Yoshida, M., Misumi, A., Oshitani, J., Gotoh, K., Shimosaka, A., Shirakawa, Y., 2017. Effects of main particle diameter on improving particle flowability for compressed packing fraction in a smaller particle admixing system. *Adv. Powder Technol.* 28, 2542–2548. <https://doi.org/10.1016/j.appt.2017.07.004>

Zhao, X., 2013. Contribution to the implementation of a process control system for continuous powder mixing. Institut National Polytechnique de Toulouse.

Zhao, X., Gatumel, C., Dirion, J.-L., Berthiaux, H., Cabassud, M., 2013. Implementation of a control loop for a continuous powder mixing process. Presented at the AIChE annual meeting, San Francisco (CA).

Liste exhaustive des publications et communications personnelles

e. Statistiques

Mendeley – août 2020

h-index 11 – 406 citations – 35 citations en 2020

Google scholar - août 2020

h-index 14 – 637 citations

f. Publications dans des revues à diffusion internationales (34)

- [1] C. Gatumel, F. Espitalier, J. Schwartzentruber, B. Biscans, A.M. Wilhelm. Nucleation control in precipitation processes by ultrasound. KONA Powder and Particle Journal, No.16 (1998), p. 160-169
- [2] J. Revel, C. Gatumel, J.A. Dodds, J. Taillet. Generation of static electricity during fluidisation of polyethylene and its elimination by air ionisation. Powder technology 135-136 (2003) p.192-200
- [3] N. Ehrardt, M. Montagne, H. Berthiaux, B. Dalloz-Dubrujeaud, C. Gatumel. Assessing the homogeneity of powder mixtures by on - line electrical capacitance. Chemical Engineering & Processing, 44/2 (2005), p. 303-313
- [4] H. Berthiaux, V. Mosorov, L. Tomczak, C. Gatumel, J.F. Demeyre, Principal component analysis for characterising homogeneity in powder mixing using image Processing techniques. Chemical Engineering and Processing, 45/5 (2006), p. 397-403
- [5] J. Dodds, F. Espitalier, O. Louisnard, R. Grossier, R. David, M. Hassoun, F. Baillon, C. Gatumel, N. Lyczko. The effect of ultrasound on crystallisation-precipitation processes : some examples and a new segregation model. Part. part. syst. Charact. 24 (2007) 18-28
- [6] Continuous mixing of powder mixtures with pharmaceutical process constraints. H. Berthiaux, K. Marikh, C. Gatumel. Chemical Engineering and Processing 47 (2008) 2315-2322
- [7] Marikh K., Berthiaux H., Gatumel C., Mizonov V., Barantseva E. Influence of stirrer type in continuous powder mixing: a model case and a pharmaceutical case, Chemical Engineering Research and Design, 86 (2008), pp1027-1037 (11 pages).
- [8] Trabelsi B., Moakher M., Gatumel C., Berthiaux H. An algebraic condition and an algorithm for the internal contact between two ellipsoids, Engineering Computations Journal, Volume 26, Issue 6, Pages: 635-644, 2009.
- [9] Mizonov V., Berthiaux H., Gatumel C., Barantseva E., Hokhlova J. Influence of crosswise non-homogeneity of particulate flow on Residence Time Distribution in a continuous mixer, Powder Technology 190 (2009) 6-9
- [10] Denis Ponomarev, Vadim Mizonov, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Elena Barantseva, Markov-chain modelling and experimental investigation of powder-mixing kinetics in static revolving mixers, Chemical Engineering and Processing, 48 (2009) 828–836

- [11] Denis Ponomarev, Vadim Mizonov, Henri Berthiaux, Cendrine Gatumel, Janos Gyenis, Elena Barantseva. A 2D Markov chain for modelling powder mixing in alternately revolving static mixers of Sysmix® type, *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, Volume 48, Issue 11-12, November 2009, Pages 1495-1505
- [12] Mizonov V., Baratseva E., Khokhlova Y., Berthiaux H., Gatumel C. Theoretical study of superposition of macro and micro-scale mixing and its influence on mixing kinetics and mixture quality, *Particulate Science and Technology*, Volume 27, Issue: 4, Pages: 327-333, 2009
- [13] C. Mayer-Laigle, C. Gatumel, H. Berthiaux, A 2D autocorrelation method for assessing mixture homogeneity as applied to bipolar plates in fuel cell technology. *Advanced Powder Technology*, 22 (2011), 167-173
- [14] C. Ammarcha, C. Gatumel, J.L. Dirion, M. Cabassud, V. Mizonov, H. Berthiaux. Predicting bulk powder flow dynamics in a continuous mixer operating in transitory regimes *Advanced Powder Technology*, Volume 23, Issue 6, November 2012, Pages 787-800
- [15] C. André, J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, G. Delaplace, Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders: Mixing time and power consumption, *Chemical Engineering Journal*, Volumes 198–199, 2012, Pages 371-378
- [16] C. Ammarcha, C. Gatumel, J.L. Dirion, M. Cabassud, V. Mizonov, H. Berthiaux, Transitory powder flow dynamics during emptying of a continuous mixer. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, Volume 65, March 2013, Pages 68-75
- [17] Laurent Devriendt, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Experimental Evidence of Mixture Segregation by Particle Size Distribution, *Particulate Science and Technology* , 31 : 653-657, 2013
- [18] C. André, JF. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, G. Delaplace, Derivation of dimensionless relationships for the agitation of powders of different behaviours in a planetary mixer, *Powder Technology*, 256, 33-38, 2014
- [19] C. Mayer, C. Gatumel, H. Berthiaux, Mixing dynamics for easy flowing powders in a lab scale Turbula® mix, *Chemical Engineering Research and Design*, 95 (2015) 248-261
- [20] V. Mizonov, H. Berthiaux, C. Gatumel, Theoretical Study of Optimal Positioning of Segregating Component Input into Continuous Mixer of Solids, *Particulate science and technology: an international journal*, volume 33, issue 4, 2015, pp 339-341
- [21] Vadim Mizonov, Henri Berthiaux, Cendrine Gatumel, Theoretical search for solutions to minimize negative influence of segregation in mixing of particulate solids, *Particuology*, 2016, 25, 36-41
- [22] Vadim Mizonov, Ivan Balagurova, Henri Berthiaux, Cendrine Gatumel, A Markov chain model of mixing kinetics for ternary mixture of dissimilar particulate solids, *Particuology*, 31 (2017) 80–86
- [23] Léonard Legoix, Cendrine Gatumel, Mathieu Milhé, Henri Berthiaux, Rheology of cohesive powders in a pilot planetary blender, *Powder Technology*, 305 (2017) 609-619
- [24] Ammarcha C., Gatumel C., Dirion J.L., Cabassud M., Berthiaux H., Continuous powder mixing of segregating mixtures under steady and unsteady state regimes: Homogeneity assessment by real-time on-line image analysis, *Powder Technology*, 315 (2017) 39-52

- [25] Legoix Léonard, Gatumel Cendrine, Milhé, Mathieu, Berthiaux Henri, Mizonov Vadim, Powder flow dynamics in a horizontal convective blender: tracer experiments, Chemical Engineering Research and Design, 2017, 121 (2017) 1-21
- [26] Legoix Léonard, Gatumel Cendrine, Milhé Mathieu, Berthiaux Henri, Characterizing powders in order to determine their flow behavior in a mixer: From small scale observations to macroscopic in-mixer rheology for powders of various flowabilities, Powder Technology 322 (2017) 314–331
- [27] Vadim Mizonov, Ivan Balagurov, Henri Berthiaux, Cendrine Gatumel, Intensification of vibration mixing of particulate solids by means of multi-layer loading of components, Advanced Powder Technology, Volume 28, Issue 11, November 2017, Pages 3049-3055
- [28] Legoix, Léonard, Gatumel, Cendrine, Milhé, Mathieu, Berthiaux, Analysis of powder flow and in-system rheology in a horizontal convective mixer with reclining blades, Particulate Science and Technology, 2018, Vol.36, No. 8, 955-966
- [29] Bernard-Granger G., Giraud M., Pascal E., Mailhan L., Larsson T., Valot C., Ablitzer C., Gatumel C., Berthiaux H., Rheological properties of alumina powder mixtures investigated using shear tests, Powder Technology, Volume 345, 1 march 2019, Pages 300-310
- [30] Ammarcha C., Gatumel C., Dirion J.L., Cabassud M., Mizonov V., Berthiaux H., Powder flow and mixing in a continuous mixer operating in either transitory or steady-state regimes: Mesoscopic Markov chain models, Powder Technology, Volume 346, 15 March 2019, Pages 116-136
- [31] N. Kusumanindyah, L. Brissonneau, T. Gilardi, C. Gatumel, H. Berthiaux, The role of powder physicochemical properties on the extinction performance of an extinguishing powder for sodium fires, Nuclear Engineering and Design, Volume 346, 2019, pp24-34
- [32] Mayer-Laigle C., Gatumel C., Berthiaux H., Scale-up in Turbula® mixers based on the principle of similarities, Particulate science and technology, 1-12 (2019)
- [33] Martin GIRAUD, Cendrine GATUMEL, Stéphane VAUDEZ, Guillaume BERNARD-GRANGER, Jeremy NOS, Thierry GERVAIS, Henri BERTHIAUX, Linking powder flowability to interparticle forces through the granular Bond number: single polydisperse particulate systems, Chemical Engineering Science, 228 (2020) 115971
- [34] Martin GIRAUD, Cendrine GATUMEL, Stéphane VAUDEZ, Guillaume BERNARD-GRANGER, Jeremy NOS, Thierry GERVAIS, Henri BERTHIAUX. Predicting the flowability of powder mixtures from their single components properties through the multi-component population-dependent granular Bond number; extension to grinded powder mixtures, Powder Technology, 379 (2021) pp.26-37

g. Publications dans des revues à diffusion nationale (5)

- [1] Barantseva E., Khokhlova Y., Mizonov V., Berthiaux H., Gatumel C. On optimal parameters of a mixing blade of a blade mixer of granular materials, Chemistry and Chemical Technology, V51 (7), 2008, pp 108-110 (3 pages).
- [2] Barantseva E., Khokhlova Y., Mizonov V., Berthiaux H., Gatumel C. Mathematical model of kinetics of blade mixing in a continuous mixer, Bulletin of ISPEU, 3 (2008), 51-52 (2 pages).

[3] Mizonov, V. E.; Balagurov, I. A.; Berthiaux, H.; et al., Influence of multilayer loading of dissimilar particulate solids into a batch mixer on mixing kinetics and capacity, IZVESTIYA VYSSHIKH UCHEBNIKH ZAVEDENII KHIMIYA I KHIMICHESKAYA TEKHNLOGIYA, 2016, Vol. 59 , Issue 10, p. 54-60

[4] Balagurov I. A., Berthiaux H., Gatamel, C., Theoretical search for optimum hold-up in a batch mixer of particulate solids, IZVESTIYA VYSSHIKH UCHEBNIKH ZAVEDENII KHIMIYA I KHIMICHESKAYA TEKHNLOGIYA , 2018, Vol.61(4-5), p.93-97

[5] Gatamel, H. Berthiaux, V. Mizonov, Industrial mixing of particulate solids: present practices and future evolution, Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Khim. Khim. Tekhnol., 2018, vol. 61, n. 12, pp 4-13

h. Participation à des ouvrages collectifs et chapitres de livre (1)

[1] B. Cuq, H. Berthiaux, C. Gatamel, Powder mixing in the production of food powders, Handbook of Food Powders, 2013, chap 9, pages 200-229

dans

Handbook of food powders: Processes and properties

Edited by Bhesh Bhandari, Nidhi Bansal, University of Queensland, Australia, Min Zhang, Jiangnan University, China and Pierre Schuck, INRA, France

Woodhead Publishing Series in Food Science, Technology and Nutrition No. 255

ISBN 0 85709 513 7

ISBN-13: 978 0 85709 513 8

August 2013

688 pages

<http://www.woodheadpublishing.com/en/book.aspx?bookID=2613#sthash.gRdba8qv.dpuf>

i. Publication dans des actes de congrès avec comité de lecture sur le texte complet (10)

[1] C. Gatamel, F. Espitalier, J. Schwartzentruber, B. Biscans, A.M. Wilhelm, Precipitation of barium sulfate : influence of ultrasound, Polytechnica Acta Scandinavica - Chemical Technology Series, n°244, p. 96-98, 1997

[2] C. Gatamel, F. Espitalier, J. Schwartzentruber, Ultrasound contribution in a precipitation process, Récents Progrès en Génie des Procédés V.13, N.71, p.9-16, 1999

[3] Demeyre Jean-François, Gatamel Cendrine, Grandjean Michel, Berthiaux Henri, Etude par analyse d'images de l'agitation et de l'homogénéité de mélanges de milieux granulaires dans un mélangeur discontinu : le Triaxe, Société Française de Génie des Procédés, n° 96, 9 p., 2007, ISBN 2-910239-70-5 11ème congrès de la société française de génie des procédés, Saint Etienne, FRANCE, 9-11 octobre 2007

[4] MAYER-LAIGLE Claire, DIAZ Ester, GATUMEL Cendrine, BERTHIAUX Henri, Cinétique de mélange et changement d'échelle en mélangeur Turbula, SFGP 2011, Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 101 – 2011, ISSN 1775-335X-ISBN 2-910239-75-6, Ed. SFGP, Paris, France

[5] ZHAO Xiaojuan, BERTHIAUX Henri, CABASSUD Michel, DIRION Jean-Louis, GATUMEL Cendrine, Régulation d'un procédé de mélange de poudres en continu, SFGP

2013 Lyon, Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 104 – 2013, ISSN: 1775-335X ; ISBN: 978-2-910239-78-7, Ed. SFGP, Paris, France

[6] KUSUMANINDYAH Nur, BRISSONNEAU Laurent, GILARDI Thierry, GATUMEL Cendrine, BERTHIAUX Henri, Study of the physicochemical properties and the aging phenomena of an extinguishing powder for sodium fire, STPMF, Récents progrès en Génie des procédés, 2015, numéro 107, ISSN: 1775-335X ; ISBN: 978-2-910239-81-7, Ed. SFGP, Paris, France

[7] LEGOIX Léonard, GATUMEL Cendrine, BERTHIAUX Henri, Agitation de mélanges de poudres de différentes cohésivités en mélangeur convectif planétaire, STPMF, Récents progrès en Génie des procédés, 2015, numéro 207, ISSN: 1775-335X ; ISBN: 978-2-910239-81-7, Ed. SFGP, Paris, France

[8] Kusumanindyah, Nur; Brissonneau, Laurent; Gilardi, Thierry et al., Study of the Aging Impact on the Extinction Efficiency of an Extinguishing Powder for Sodium Fire , 15TH INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON LOSS PREVENTION AND SAFETY PROMOTION (LOSS 2016), Chemical Engineering Transactions, 2016, Volume: 48 Pages: 367-372

[9] V. Mizonov, I. Balagurov, H. Berthiaux, C. Gatumel, Structuring of Batch Mixer Loading to Improve Mixing Time and Mixture Quality of Solids , Chem. Eng. Technol., 2018, 41, 8, pp 1505-1510 [5th international symposium on reliable flow of particulate solids, Norway, June 2017]

[10] L. Legoix, M. Milhé, C. Gatumel, H. Berthiaux, Free flowing and cohesive powders agitation in a cylindrical convective blender- kinetics experiments and Markov chain modelling, EPJ Web of Conferences 140, 03050 (2017), 4 pages, Powders & Grains 2017

j. Communications à des congrès internationaux et SFGP (48)

[1] C. Gatumel, F. Espitalier, O. Louisnard, J. Schwartzentruber, B. Biscans, A.M. Wilhelm, Micromixing and ultrasonic precipitation of barium sulfate, First European Congress on Chemical Engineering, Florence 1997, pp. 1511-1514

[2] C. Gatumel, F. Espitalier, J. Schwartzentruber, B. Biscans, A.M. Wilhelm, Characterization of the influence of ultrasound on barium sulfate precipitation, Ultrasound in Processing, Toulouse 1997, pp. 133-138

[3] C. Gatumel, F. Espitalier, J. Schwartzentruber, Ultrasound contribution in a precipitation process, 2nd European Congress on Chemical Engineering, Montpellier, september 1999

[4] C. Gatumel, F. Espitalier, J. Schwartzentruber, Ultrasound contribution in a precipitation process, 2nd European Congress on Chemical Engineering, Montpellier, sept.1999

[5] C. Gatumel, J.M. Cosmao, L. Estel, Extraction du Cr(VI) par pertraction sur un appareil à disques tournant, 3rd International Research conference – Water reuse – Water treatment plant operation, Toulouse, Nov 1999

[6] J. Revel, C. Gatumel, J.A. Dodds, J. Taillet, Static charge elimination in a slugging fluidized bed, 4th World Congress on Particle Technology, Sydney, july 2001

[7] J. Revel, C. Gatumel, J.A. Dodds, J. Taillet, Electrostatique de granulés et de poudres de polyéthylène dans un lit fluidisé, Société française d'électrostatique, Toulouse 2002

- [8] N. Ehrhardt, M. Montagne, H. Berthiaux, B. Dalloz-Dubrujeaud, C. Gatumel, Assessing the homogeneity of binary and ternary powder mixtures by on-line electrical capacitance, CHOP'S 4 – Budapest – Mai 2003
- [9] N. Ehrhardt, H. Berthiaux, C. Gatumel, B. Dalloz-Dubrujeaud. Suivi de la qualité de mélange de poudre en écoulement par une méthode capacitive. Congrès de la SFGP, Saint-Nazaire, septembre 2003
- [10] N. Ehrhardt, M. Montagne, H. Berthiaux, B. Dalloz-Dubrujeaud, C. Gatumel, J.A. Dodds. Developments in the assessment of the composition of binary powder mixtures flows by on – line electrical capacitance. Particulate Systems Analysis, septembre 2003, Harrogate, UK
- [11] C. Gatumel, M. Lallée, J. Revel. Etude expérimentale de la charge par frottement de particules de polyéthylène. STP4, Compiègne, mai 2004-05-17
- [12] Marta Losada Martin, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux. Caractérisation du mélange de poudres cohésives dans un mélangeur à tambour « chaotique », le Turbula®. STP4, Compiègne, mai 2004-05-17
- [13] J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, M. Grandjean. Batch mixing study of agro-food materials in an innovative mixer : the Triaxe®. 7th world Congress of Chemical Engineerieng, Glasgow 2005
- [14] D.A. Ponomarev, C. Gatumel, H. Berthiaux, V.E. Mizonov. Theoretical and experimental investigation of periodically revolving static mixer. 7th world Congress of Chemical Engineerieng, Glasgow 2005
- [15] J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, M. Grandjean. Caractérisation de l'agitation de milieux granulaires en mélangeur Triaxe®. 10ème congrès de la SFGP, Toulouse 2005, Récents Progrès en Génie des Procédés, vol 92, CD-ROM édition
- [16] M. Jimenez, M. Losada-Martin, C. Gatumel, H. Berthiaux. Etude cinétique du mélange de poudres cohésives dans un mélangeur à tambour. 10ème congrès de la SFGP, Toulouse 2005, Récents Progrès en Génie des Procédés, vol 92, CD-ROM édition
- [17] Berthiaux H., Marikh K., Gatumel C., Gautier R. Continuous mixing of pharmaceutical powder mixtures, 5th World Congress on Powder Technology, Orlando, Avril 2006.
- [18] Ponomarev D., Mizonov V., Gatumel C., Berthiaux H. Experimental investigation and mathematical modelling of evolution of the axial non homogeneity of mixtures in static mixers, 5th World Congress on Powder Technology, Orlando, Avril 2006.
- [19] Berthiaux H., Gatumel C. Industrial powder mixing: present practices and future revolutions, conférence "keynote", 5th International Conference for Conveying and Handling of Particulate Solids CHOPS'5, Sorrento, Août 2006.
- [20] Demeyre J.F., Gatumel C., Grandjean M., Berthiaux H. Powder agitation and mixture homogeneity in a Triaxe® mixer, 5th International Conference for Conveying and Handling of Particulate Solids CHOPS'5, Sorrento, Août 2006.
- [21] Demeyre, J.F., Gatumel C., Grandjean M., Berthiaux H. Etude par analyse d'images de l'homogénéité de mélange de milieux granulaires dans un mélangeur discontinu : le Triaxe®, 11ème Congrès de de la SFGP, Saint-Etienne, Octobre 2007, Récents Progrès en Génie des Procédés, vol.96, CD-ROM édition.
- [22] Gatumel C., Baillon F., Maurice J.J., Dodds J.A., Guigon P., Delebarre A., Schwartzentruber J., Chamayou A., Berthiaux H., Calvet R., Espitalier F., Rodier E., de

Ryck A., Saleh K., Loubignac E. Développement d'une formation en sciences et technologie des poudres utilisant les TICE, 11ème Congrès de de la SFGP, Saint-Etienne, Octobre 2007, Récents Progrès en Génie des Procédés, vol.96, CD-ROM édition.

[23] Trabelsi B., Moakher M., Berthiaux H., Gatumel C. Mélange de milieux granulaires : modélisation par éléments discrets ellipsoïdaux et validation expérimentale, 11ème Congrès de de la SFGP, Saint-Etienne, Octobre 2007, Récents Progrès en Génie des Procédés, vol.96, CD-ROM édition.

[24] Trabelsi B., Moakher M., Berthiaux H., Gatumel C. An algebraic condition and an algorithm for the contact of two ellipsoids, DEM'07, Brisbane, Août 2007

[25] Devriendt L., Gatumel C., Berthiaux H. Ségrégabilité et polydispersité granulométrique : plus on est de fous, moins on est ségrége, Colloque Science et Technologie des Poudres et Matériaux Frittés, Montpellier, Mai 2007.

[26] Ammarcha C., Gatumel C., Dirion J.L., Cabassud M., Mizonov V., Berthiaux H. Dynamique de l'écoulement des poudres dans un mélangeur continu opérant en mode semi-batch, Colloque Science et Technologie des Poudres et Matériaux Frittés, Montpellier, Mai 2007.

[27] Mizonov Vadim E., Berthiaux Henri, Gatumel Cendrine, Barantseva Elena, Khokhlova Yuliya Influence of crosswise non-homogeneity of particulate flow on residence time distribution in a continuous mixer, 6 p., Science et technologie des poudres& Poudres et matériaux frittés , France, 23-25 mai 2007

[28] Devriendt L., Gatumel C., Berthiaux H. Experimental evidence of mixture segregation by particle size distribution, soumis à 8th World Congress on Chemical Engineering WCCE9, Montréal, Août 2009.

[29] Marikh K., Gatumel C., Berthiaux H. Influence of premix configuration in continuous powder mixing, soumis à 8th World Congress on Chemical Engineering WCCE9, Montréal, Août 2009.

[30] Ammarcha C., Gatumel C., Dirion J.L., Cabassud M., Mizonov V., Berthiaux H. Powder flow dynamics in a continuous mixer operating in semi-batch mode, soumis à 8th World Congress on Chemical Engineering WCCE9, Montréal, Août 2009.

[31] Ammarcha C., Gatumel C., Dirion J.L., Cabassud M., Mizonov V., Berthiaux H. Modélisation de la dynamique de l'écoulement des poudres dans un mélangeur continu par une chaîne de Markov : états transitoires et régime permanent Congrès de la Société Française de Génie des Procédés, Marseille, octobre 2009

[32] Trabelsi B., Moakher M., Gatumel C., Berthiaux H. Mélange de milieux granulaires : Couplage méthode des éléments discrets ellipsoïdaux et chaîne de Markov. Congrès de la Société Française de Génie des Procédés, Marseille, octobre 2009

[33] C. Ammarcha, J.L. Dirion, C. Gatumel, M. Cabassud, H. Berthiaux. Predicting hold-up weight changes in a continuous powder mixer during transitory regimes. 2010, AIChE annual meeting

[34] C. Mayer-Laigle, C. Gatumel and H. Berthiaux. A 2D autocorrelation method for assessing mixture homogeneity as applied to bipolar plates in fuel cell technology. WCPT6, Nuremberg, 2010

[35] Vadim Mizonov, Henri Berthiaux, Elena Barantseva, Yuliya Khokhlova, Cendrine Gatumel. Optimal flow control of segregating component in mixing of particulate solids. WCPT6, Nuremberg, 2010

- [36] Claire Mayer-Laigle, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux. Cinétique de mélange et changement d'échelle en mélangeur Turbula. SFGP 2011
- [37] Claire Mayer-Laigle, Cendrine Gatumel and Henri Berthiaux. Experimental investigation of the scale up of Turbula mixers on the basis of kinematic and dynamic similarities. 2012, AIChE Annual meeting, Houston
- [38] Simulation et contrôle-commande d'un procédé de mélange de poudres en continu. X. Zhao, J.L. Dirion, C. Gatumel, H. Berthiaux, M. Cabassud. 6eme colloque Sciences et Technologies des Poudres, Toulouse 2012
- [39] X.J. Zhao, C. Gatumel, J.L. Dirion, H. Berthiaux, M. Cabassud. Implementation of a control loop for a continuous powder mixing process. 2013, AIChE, Annual meeting, San Francisco
- [40] C. Gatumel, H. Berthiaux, C. André, G. Delaplace. Characterizing the mixing efficiency of the planetary powder mixer Triaxe® through an extended power consumption study. 2013, AIChE, Annual meeting, San Francisco
- [41] C. Gatumel, L. Legoux, H. Berthiaux, Characterizing powders for blending processes: from micro and meso-scale measurements to macroscopic behavior, Particle Technology Forum 2015 - Core Programming Area at the 2015 AIChE Annual Meeting
- [42] Rheology of powder mixtures in a planetary blender. L. Legoux, C. Gatumel, H. Berthiaux. 2015, AIChE, Annual meeting, Salt Lake City
- [43] N. Veuilleux, C. Gatumel, Fluid networks: from science-based training to a learning-centered pathway, a collaborative development involving a teacher, a pedagogical engineer and a learning management system, Core Programming Area at the 2016 AIChE Annual Meeting
- [44] L. BRISSONNEAU, T. GILARDI, H. BERTHIAUX, C. GATUMEL. Study of the physicochemical properties, the aging phenomena, and the production method of an extinguishing powder for sodium fire. Particle Technology Forum 2016 - Core Programming Area at the 2016 AIChE Annual Meeting
- [45] L. Legoux, C. Gatumel, M. Milhé, H. Berthiaux, V. Mizonov. Towards a Markov chain modelling for a planetary mixer: a preliminary study in a model mixer with blades. Particle Technology Forum 2016 - Core Programming Area at the 2016 AIChE Annual Meeting, pp 187-209
- [46] L. Legoux, M. Milhé, C. Gatumel, H. Berthiaux, Free flowing and cohesive powders agitation in a cylindrical convective blender- kinetics experiments and Markov chain modelling, 8th International conference on micromechanics of granular media, Powders and grains, Montpellier, 3-7 july 2017
- [47] Bichun Huang, Kevin Phan, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Establishment of a general correlation accounting for stirrer-to-wall distance in a bladed powder mixer operating in the cataracting regime, WCPT8, Orlando, 2018
- [48] Martin GIRAUD, Henri BERTHIAUX, Guillaume BERNARD-GRANGER, Cendrine GATUMEL, Stéphane VAUDEZ, Rheological study of binary mixtures of powders using interparticular forces, 12th European Congress of Chemical Engineering, Firenze, 2019

k. Autres conférences et séminaires (5)

- [1] C. Gatumel, J. Schwartzentruber and J. Dodds. Precipitation in an ultrasound field.. International Fine Particles Research Institute annual meeting, 1996, Nancy (France)
- [2] C. Gatumel, N. Lyczko, F. Espitalier, J. Schwartzentruber. Effet des ultrasons sur la précipitation de poudres minérales. Séminaire de Génie des Procédés, Ecole des Mines, Paris, le 12 mars 1998
- [3] C. Gatumel, J.M. Cosmao, L. Estel. Extraction du Cr(VI) par pertraction sur un appareil à disques tournant. Pollutec 1999
- [4] C. Gatumel. Peut-on dimensionner les mélangeurs de poudre ? Journées thématiques du groupe Solides Divisés – SFGP – 11 et 12 décembre 2003 – Albi
- [5] C. Gatumel, F. Baillon, JJ Maurice, JA Dodds, P. Guigon, A. Delebarre, J. Schwartzentruber, A. Chamayou, H. Berthiaux, R. Calvet, F. Espitalier, E. Rodier, A. de Ryck, K. Saleh, E. Loubignac. Développement d'une formation en Sciences et Technologies des Poudres utilisant les TICE. Colloque "E-Prospectives et territoires de la connaissance" Université JF Champollion, - 5/7 oct. 2006

l. Articles de vulgarisation (4)

- [1] H. Berthiaux et C. Gatumel. Les nouveaux défis du génie des procédés.. Info Pharma Magazine, no 5, novembre 2003, p. 28-31
- [2] C. Gatumel. Analyse granulométrique : réponses à l'exigence des nouveaux procédés. Spectra Analyse, Vol 33, n°236 janvier-février-mars 2004, p. 19-27
- [3] J. Revel, C. Gatumel. L'électrostatique et les solides divisés. Process Manutention, no 37, mars/avril 2004, p. 44-46
- [4] C. Gatumel, J.A. Dodds. Caractériser les Poudres destinées aux formes solides. Industrie Pharma magazine, no 5, juin/juillet 2005, p. 46-49

DERNIÈRE PUBLICATION DE L'ÉQUIPE :

Martin GIRAUD, Cendrine GATUMEL, Stéphane VAUDEZ, Guillaume BERNARD-GRANGER, Jeremy NOS, Thierry GERVAIS, Henri BERTHIAUX, Linking powder flowability to interparticle forces through the granular Bond number: single polydisperse particulate systems, Chemical Engineering Science, 228 (2020)

Investigation of a granular Bond number based rheological model for polydispersed particulate systems

Martin Giraud ^{a,b}, Cendrine Gatumel ^a, Stéphane Vaudez ^b, Guillaume Bernard-Granger ^b, Jeremy Nos ^c, Thierry Gervais ^d, Henri Berthiaux ^{a,*}

^a Laboratoire RAPSODEE, UMR CNRS 5302, IMT Mines Albi, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

^b CEA, DEN, DMRC, Université de Montpellier, Marcoule, France

^c Orano, 125 avenue de Paris, 92320 Châtillon, France

^d Orano Melox, Les Tourettes, D138A, 30200 Chusclan, France

- Link between the particles properties and the flow behavior of powders.
- Dimensionless granular Bond number for polydispersed powders.
- The flowability of various powders is measured with a shear cell tester.
- Correlation between the Bond number and the flowability found experimentally.
- Physical meaning of the correlation through Rumpf's theory.

A B S T R A C T

Granular materials are used in many industrial processes among various fields, such as pharmaceutical, food, metallurgy or nuclear fuel production. However, compared to other commonly used media, such as liquids, powders are known to behave unpredictably, leading to uncontrolled process operations. Since the flow behavior of the powders originates from interparticle forces, we suggest a model, linking the macroscopic flowability of powder beds, and the properties of the microscopic particles constituting the powder. A population dependent granular Bond number (Capece et al., 2016), that takes into account the particles properties such as the particles' true density, surface energy, rugosity and the whole particle size distribution, is used. This non-dimensional number was found to correlate well with the flowability of polydispersed powder bed, which can be measured by shear testing with a Freeman FT4[®] powder rheometer. The results found in previous studies (Bernard-Granger et al., 2019; Capece et al., 2016) are extended and discussed using five different oxide powders exhibiting various flow behaviors. In particular, a short sensitivity analysis of the model is carried out. The results show that the fraction of fine particles within a polydispersed powder is a critical parameter for the flowability of the powder bed. Finally, the Rumpf's theory is used to suggest a physical meaning for the model parameters.

Keywords:

Powder rheology

Flowability

Shear test

Population dependent granular Bond number

1. Introduction

Flow behavior of powders is critical in many industrial processes involving granular materials such as pharmaceutical and chemical production or metal and mineral processing. Indeed, a poor flowability may lead to various problems such as segregation, agglomeration or arching during bulk powder handling or processing.

Up to now, the link between the physicochemical properties of the individual particles and the flowability of bulk powders is still unclear. This is because granular materials exhibit highly variable and unpredictable behaviors. It is generally considered that under a certain size, around 100 μm , interparticle attractive forces start to overcome particles' weight, resulting in cohesive behaviors (Aulton, 2002). However, flowability is not only correlated to particles' size but is also influenced by particles' shape (Cleary, 2008; Podczeczek and Mia, 1996), surface energy, mechanical properties (Tomas, 2001), environmental conditions (Tomasetta et al., 2014)

* Corresponding author.

E-mail address: henri.berthiaux@mines-albi.fr (H. Berthiaux).

and polydispersity of the particle size distribution (Vlachos and Chang, 2011).

Since a cohesive behavior originates from interparticle attractive forces, many efforts are undertaken in order to correlate intermolecular forces, such as Van der Waals, capillarity and electrostatic forces, to the bulk powder behavior. Therefore, flowability criteria based on the preponderance of either gravity or interparticle forces between individual particles were proposed (Li et al., 2004; Liu et al., 2008). Models assessing the flow performance of powders from the force balance at an individual particle level were then derived (Li et al., 2004; Liu et al., 2008; Tomasetta et al., 2014). Although these models seem to be in good agreement with empirical data, they are not commonly used for predictions since they involve very specific particles' properties, such as the Poisson's ratio or the Young's modulus, which are not always measurable. It can also be noticed that most of these models are based on the assumption that the particle properties are identical within the whole powder. However, in most granular mediums, various particle properties, such as the size, shape or surface energy, may be actually distributed (Arai, 1996).

The granular Bond number is defined as the ratio between interparticle forces and gravity contribution between two particles, A and B on Fig. 1 for example. It can be computed from quite simple particle properties, such as size distribution, particles' rugosity, surface energy and true density, which are easily measurable or documented in the literature. Assuming that the electrostatic and capillary forces can be neglected, the interparticle forces are equal to the Van der Waals forces developed between the particles. The granular Bond number between particles A and B ($Bo_{g,AB}$) can then be expressed using Eq. (1):

$$Bo_{g,AB} = \frac{F_{vdw,AB}}{W_{AB}} \quad (1)$$

where $F_{vdw,AB}$ is the Van der Waals force and W_{AB} is the weight of the particles. The Van der Waals force can be assessed from particle properties using commonly known cohesion force models (Hamaker, 1937; Rumpf, 1990; Xie, 1997; Chen et al., 2008; Rabinovich et al., 2000; Derjaguin et al., 1975; Johnson et al., 1971). In particular, the Van der Waals Force between two spherical particles may be estimated using Eq. (2) from the Hamaker theory (Hamaker, 1937):

$$F_{vdw,AB} = \frac{\sqrt{A_A A_B}}{12z_0^2} \frac{d_A d_B}{d_A + d_B} \quad (2)$$

where A_A and A_B are the Hamaker constants of particles A and B respectively, d_A and d_B are the diameter of particles A and B respectively, and z_0 is the distance between the two particles in close contact which can be assumed to be $z_0 = 0.4nm$ (Israelachvili, 2011a). Since real powders are rarely constituted of spherical and smooth

particles, the rugosity of particles A and B can be taken into account by using the modified Rumpf equation (3), which shows a better agreement with empirical data (Chen et al., 2008):

$$F_{vdw,AB} = \frac{\sqrt{A_A A_B}}{12z_0^2} \left(\frac{\hat{d}}{2 \left(1 + \frac{\hat{d}_{asp}}{2z_0} \right)^2} + \frac{3\hat{d}_{asp}\hat{d}}{\hat{d}_{asp} + \hat{d}} \right) \quad (3)$$

In the above equation, $\hat{d}$ is the harmonic mean diameter of particles A and B. Similarly, $\hat{d}_{asp}$ is the harmonic mean of the size of asperities of particles A and B. It was shown in the literature that $\hat{d}_{asp} = 200nm$ is a reasonable approximation for the size of natural roughness of powders (Capece et al., 2015).

The geometric mean of the weight of particles A and B is used to represent the weight of both particles (W_{AB}) in Eq. (1) (Capece et al., 2016). The true density of particles A and B, respectively $\rho_{s,A}$ and $\rho_{s,B}$, allow to compute the weight of the particles, represented by the powder's true density, as shown in Eq. (4):

$$W_{AB} = \frac{\pi}{6} g \sqrt{\rho_{s,A} \rho_{s,B}} d_A^3 d_B^3 \quad (4)$$

where $g = 9.81m \cdot s^{-2}$ is the gravity constant.

In case of two particles in close contact within a mono-constituent powder, particles A and B are of the same chemical nature, which means that they share approximately the same Hamaker constant, true density and asperity diameters. The granular Bond number between these two particles can then be computed using Eq. (5):

$$Bo_{g,AB} = \frac{A}{2\pi\rho_s g z_0^2} \times \frac{\hat{d}}{\sqrt{d_A^3 d_B^3}} \left(\frac{1}{2 \left(1 + \frac{\hat{d}_{asp}}{2z_0} \right)^2} + \frac{3\hat{d}_{asp}}{\hat{d}_{asp} + \hat{d}} \right) \quad (5)$$

where A is the Hamaker constant of the powder, ρ_s is its true density and $\hat{d} = 2 \frac{d_A d_B}{d_A + d_B}$.

Despite the fact that it only accounts for individual interparticle cohesion, and not for the whole bulk powder bed structure, the granular Bond number was shown to correlate well with the flow behavior for cohesive powders. Castellanos (Castellanos, 2005) noticed a link between the granular Bond number and the bulk properties of powders, such as the gas velocity over which the fluidized bed exhibits non-bubbling regime. He also proposed an agglomerate Bond number, which takes into account the agglomeration events occurring within fine powders. This concept of granular and agglomerate Bond numbers are also used by Huang (Huang et al., 2015) who showed that the flow function coefficient, measured with a powder shear tester, evolves with the Bond number according to a power law. The same type of correlation was highlighted and further explored by Capece (Capece et al., 2015). In particular, a population dependent granular Bond number was developed (Capece et al., 2016) in order to take into account the whole particle size distribution of the powder investigated. Indeed, the granular Bond number allows to consider distributed properties, while most anterior models only considered means or median properties, assuming that particles' size or shape are identical for all the particles constituting the powdered medium. Finally, Capece's granular Bond number and population dependent granular Bond number have also been extended to multi-component mixture of powders (Capece et al., 2015).

The correlation obtained by Capece between the flow function coefficient and the granular Bond number of pharmaceutical powders, is a power law given by Eq. (6). In this equation, the empirical parameters α and β are supposed to be material independent. ff_c

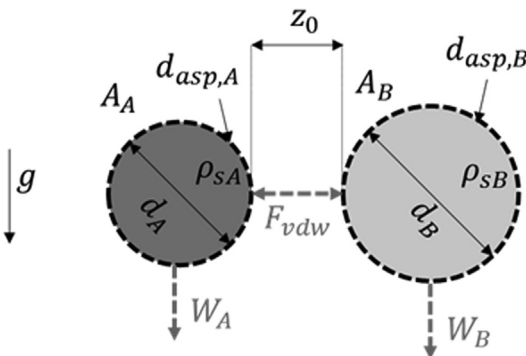


Fig. 1. Forces applied between two spherical particles A and B in close contact.

corresponds to the flow function coefficient, also denoted as the flow index in this paper, and Bo_g is the granular Bond number.

$$ff_c = \alpha \cdot Bo_g^{-\beta} \quad (6)$$

Such a correlation has also been verified experimentally by investigating the rheological behavior of powder mixtures constituted by different amounts of two alumina powders (Bernard-Granger et al., 2019).

The correlation represented by Eq. (6) was obtained by Capece for various pharmaceutical powders and with multi-component mixtures involving these powders. Although the powders investigated exhibit different flow behaviors, from very poor flowability to free flowing, most of them share a similar true density, between 1 and 3 g.cm⁻³ while powders used in other fields may be heavier. Moreover, Capece used an RST-XS[®] Schulze shear tester to measure the flowability of the powders, while different equipment, such as the FT4[®] Freeman's rheometer, are becoming commonly used (Leturia et al., 2014). Even if these two equipment are based on the same principle, it is well known that they differ in some aspects that may affect the results (Koyunov et al., 2015). Among other things, the RST-XS[®] Schulze and the FT4[®] Freeman rheometer cannot apply the same pre-consolidations stress, although it was shown that the consolidation state of the powder might affect the flowability measurements (Legoix et al., 2017). Thereby, it appears that the correlation found by Capece needs to be verified and extended using different powders and different types of rheometer.

Since most investigations focus only on the Van der Waals force contributions for the calculation of interparticle forces, Bernard-Granger attempted to take also into account the capillary forces in the calculation of the granular Bond number (Bernard-Granger et al., 2019). However, this study was done with alumina powders that appear to be sparsely sensitive to relative humidity. Then, the influence of capillary forces has to be discussed for powders that are more sensitive to humidity as well.

Both authors show that the correlation (6) obtained between the granular Bond number and the flowability of powders has a strong potential for predicting the flowability of powder mixtures according to their formulation (Bernard-Granger et al., 2019; Capece et al., 2015). However, despite its good ability to predict the flowability of powders and mix of powders, the physical meaning of the correlation has never been investigated extensively. In particular, the value of the correlation parameters α and β , that are supposed to be material independent, is poorly discussed. Besides, it is well known that the consolidation state of a powder bed affects significantly the flowability measurements (Legoix et al., 2017; Tomasetta et al., 2014). Then, the effect of the pre-consolidation stress, applied to the powder during shear testing, on the correlation parameters has to be investigated. Finally, a sensitivity analysis of the correlation has never been carried out in the literature although it has to be done out in order to evaluate the relevance of the predictive model. In particular, since the granular Bond number depends on various particle's properties, it would be of a great interest to assess which parameter is the most influent on its value, and therefore on the flowability of the bulk powder medium.

In this paper, Capece's model will be extended, by comparing experimental results obtained with an FT4[®] powder rheometer, to the model predictions for non-pharmaceutical powders exhibiting various properties in terms of flow behavior, true density, particle size distributions or sensibility to relative humidity. Besides, a sensitivity analysis of the granular Bond number will be carried out in order to investigate the influence of different powder properties on the value of the granular Bond number. First, the influence of non-distributed properties, such as the true density, will be stud-

ied. Then, the influence of distributed properties, such as particle size distribution, will be investigated in order to take into account the polydispersity of real powders. Then, the physical meaning of the correlation (6) linking the flowability of bulk powders and the granular Bond number, will be discussed. In particular, a physical interpretation of the value of empirical parameters α and β , involving the state of consolidation of the powder, will be suggested.

2. Materials and methods

2.1. Powders

Five different powders have been used for this work. They were chosen because they all exhibit different properties in terms of flow behavior, particle size and shape distribution, true density and bed porosity:

- Two different grades of alumina powder (GE15 and CR6) from Baikowski[®], Poisy, France.
- Two different grades of zirconia powder (GY3Z-R60 and CY3Z-RA) from Saint Gobain[®], Courbevoie, France.
- An yttrium oxide powder (grade C) from H.C. Starck[®], Newton, USA.

In this paper, alumina GE15, alumina CR6, zirconia GY3Z-R60, zirconia CY3Z-RA and yttria grade C will be referred as Al₂O₃ G, Al₂O₃ C, ZrO₂ G, ZrO₂ C and Y₂O₃ C respectively.

2.2. Characterization methods

Each powder has been characterized in terms of flow behavior, particle size distribution, true density and surface energy. Then, the granular Bond number has been computed for all powders using the methodology described in section 2.3.

2.2.1. Powder flowability

The flowability of the powders was assessed from the yield locus measured with a powder rheometer FT4[®] (Freeman, Tewkesbury, UK). Measurements were performed using a 10 mL cylindrical cell in which powder is pre-consolidated under a 9 kPa normal stress. Shear tests are then performed successively at 3, 4, 5, 6 and 7 kPa normal stresses following the Jenike standard procedure (EFCE Working Party on the Mechanics of Particulate Solids. and Institution of Chemical Engineers (Great Britain), 1989). According to Mohr's theory, the five points obtained should be aligned on the yield locus line, represented on Fig. 2, whose parametric equation is given by Eq. (7):

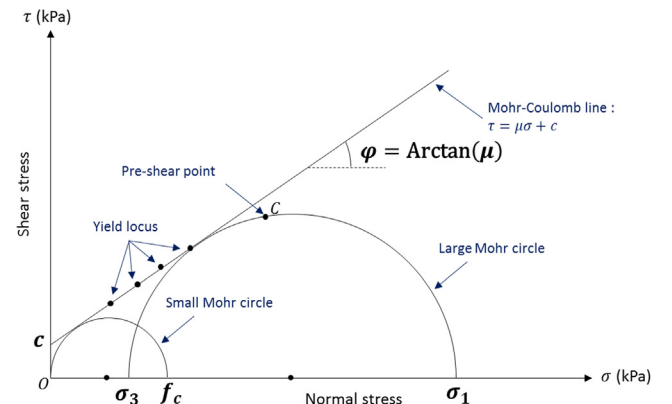


Fig. 2. Mohr-Coulomb yield locus and Mohr circles.

$$\tau = \mu\sigma + c \quad (7)$$

where τ and σ are respectively the shear and the normal stresses. c gives the cohesion of the powder in kPa, and μ is the friction coefficient from which the angle of internal friction φ can be deduced using Eq. (8). The friction coefficient comes from friction between the surfaces of the particles while cohesion originates from interparticle forces taking place between particles.

$$\mu = \tan \varphi \quad (8)$$

The Mohr circles can then be constructed from the yield locus curve, as shown on Fig. 2. The small Mohr circle is tangent to the yield locus and passes through the origin while the large Mohr circle is tangent to the yield locus and passes through the pre-consolidation point. The cohesion stress f_c and the major consolidation stress σ_1 corresponds to the shear stress values of the highest intersections between the x-axis and the small and large Mohr circles respectively. The flow index, which is given by Eq. (9), is used in order to assess the flowability of a powder, the classification given in Table 1 being commonly used in the literature to classify the flow behavior of a given powder (Leturia et al., 2014).

$$ff_c = \frac{\sigma_1}{f_c} \quad (9)$$

The flow index ff_c and cohesion c , measured by shear tests for each powder, are reported in Table 2. Each measurement was performed at least twice with different samples, the incertitude given in the table corresponding to the standard deviation. The first column shows results for powders in ambient conditions, while the second column shows results obtained for the same powders after drying in a stove at 110 °C for 24 h. The moisture content of the powders in ambient conditions was measured with an MB90® moisture analyzer (Ohaus, Parsippany, USA) by heating the samples at 110 °C for two minutes. The results showed that all the powders had a moisture content between 0.2% and 0.5% in natural ambient conditions. The flow index of the dry ZrO₂ G powder was not calculated because its flowability is too high for the equipment under that level of consolidation. Indeed, for this specific powder, the rheometer gives a cohesion parameter slightly below zero, which has no physical meaning. Thus, the cohesion of the ZrO₂ G was assumed to be 0 kPa, corresponding to a free flowing powder, and its flow index is not calculated. Concerning the other powders, it can be noted that the flowability of the dry and ambient powders are very similar for alumina and yttrium oxide while it differs significantly for both zirconia powders. This means that powders of different nature may react differently to ambient humidity. For this reason, all the samples were conditioned in a stove before any measurement with the rheometer. Fig. 3 shows the flow index of each dry and wet powders according to their cohesion. It seems that these two parameters are strongly correlated according to a power law which parameters are given in Eq. (10), where the cohesion parameter c is in kPa, through a determination coefficient of $R^2 = 0.9993$.

$$ff_c \approx 4.66 \times c^{-0.90} \quad (10)$$

Table 1
Classification of the flowability of powders according to the flow index value.

Flow index value	Flowability
$ff_c < 1$	Not flowing
$1 < ff_c < 2$	Very poor
$2 < ff_c < 4$	Poor
$4 < ff_c < 10$	Easy
$ff_c > 10$	Free flowing

2.2.2. True density

The true density of the particles ρ_s was measured using a helium pycnometer AccuPyc II 1340® (Micromeritics, Mèrignac, France) in a 10 mL cell. Five samples per powder were taken and measured, the average result being kept for each powder. Between three and six cycles including of 25 purges and 25 measurements were performed on each powder at 23 °C and 19.6 PSI (135 kPa). Results are given in Table 4 where the incertitude corresponds to the standard deviations between different samples.

2.2.3. Particle size distribution

Particle size distributions of the powders were measured with a LASER diffraction equipment Mastersizer 3000® (Malvern, Malvern, UK) using a liquid dispersion unit (Hydro MV®) in order to obtain adequate dispersion of the agglomerated powders. Dry dispersion (Aero S®) has also been performed but the particle size distribution is too variable and highly dependent on the transport pressure through the venturi. The Mie theory was used in order to compute the size of the particles. Ten samples per powder were analyzed and a measurement was taken ten times for each sample. The Sauter mean diameter and the span of the distributions are given in Table 4. The average of each measurements was kept and the incertitude intervals correspond to the standard deviation. The particle size distribution of each powder is given on Fig. 4. It should be noted that the powders exhibiting the worse flowability values in Table 2 (Al₂O₃ C and Y₂O₃ C) are those containing the largest fraction of very fine particles, under 10 µm. On the contrary, the only free flowing powder according to Table 2 (ZrO₂ G) is also the only one that exhibits the most significant fraction of particles larger than 100 µm. Finally, Al₂O₂ G and ZrO₂ C both have intermediate flow behavior and also intermediate particle size distributions, as compared to the other ones. The link between particle size distribution and flowability will be further explored in next sections.

2.2.4. Particle surface energy

Dynamic vapor sorption was performed with a DVS system (SMS, London, UK) in order to measure surface energy of the particles. The device, illustrated on Fig. 5, is constituted of a micro-balance (5) placed in a thermal chamber (6), here regulated at 25 °C. Around 100 mg of powder (2) and a reference sample (3) are placed on both sides of the balance and are swept by a gas, here nitrogen. The humidity of the gas (heptane vapor) is controlled by two valves and a humidifier (1) and measured with two probes (4) on each sides of the chamber. The humidity of the gas varies from 0% to 95% relative humidity and the mass loss is measured, giving the sorption and desorption isotherms.

The dispersive surface energy is then computed using the method described in SMS application note 17 (Levoguier and Williams, n.d.). This method was shown to give similar results than inverse gas chromatography for alumina powders (Tisserand et al., 2009). Knowing the specific surface area of the sample, the equilibrium spreading pressure π_e can be deduced from the adsorption isotherm of the sample, using Gibbs theory. The value of π_e allows then to compute the work of adhesion between the liquid and solid phases w_{SL} from solid/liquid interaction theory described by Young's equation:

$$w_{SL} = \gamma_l^d (1 + \cos \theta) + \pi_e \quad (11)$$

Where γ_l^d is the liquid surface tension and θ is the angle of contact between the droplet and the solid surface. For heptane, the surface tension is well known ($\gamma_l^d = 19.68 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$) and the contact angle can be assumed to be null. Finally, the dispersive surface

Table 2

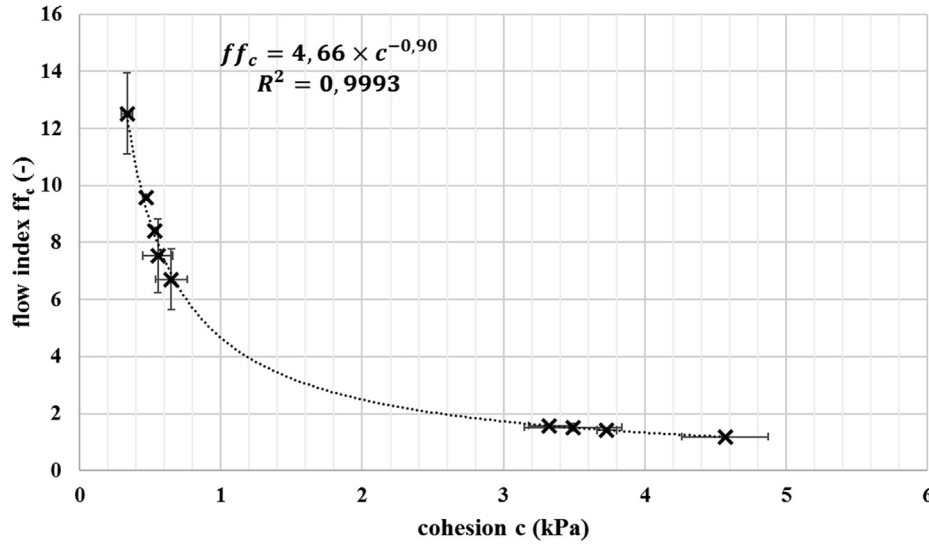
Flow index and cohesion parameter of the powders measured using a FT4® powder rheometer, under ambient and dry conditions.

Material	Ambient conditions (around 30% relative humidity and 23 °C)		Dry condition (stove at 110 °C for 24 h)	
	$ff_{c,amb}(-)$	$c_{amb}(kPa)$	$ff_{c,dry}(-)$	$c_{amb}(kPa)$
Al ₂ O ₃ G	9.58 ± 0.01	0.47 ± 0.00	8.42 ± 0.11	0.54 ± 0.01
Al ₂ O ₃ C	1.42 ± 0.06	3.73 ± 0.07	1.19 ± 0.04	4.57 ± 0.31
ZrO ₂ G	7.54 ± 1.29	0.56 ± 0.11	—	0
ZrO ₂ C	6.71 ± 1.07	0.65 ± 0.11	12.5 ± 1.43	0.34 ± 0.04
Y ₂ O ₃ C	1.52 ± 0.13	3.49 ± 0.35	1.58 ± 0.05	3.32 ± 0.14

Table 3

Surface properties of the particles, measured by dynamic vapor sorption (DVS) of heptane at 25 °C.

Material	Specific surface area $s_A(m^2 \cdot g^{-1})$	Equilibrium spreading pressure $\pi_e(mN \cdot m^{-1})$	Work of adhesion solid / liquid $w_{SL}(mN \cdot m^{-1})$	Dispersive surface energy $\gamma_s^d(mN \cdot m^{-1})$
Al ₂ O ₃ G	11.8 ± 0.8	38.0 ± 0.8	77.4 ± 0.8	76.1 ± 1.6
Al ₂ O ₃ C	4.2	38.3	77.7	76.6
ZrO ₂ G	2.4 ± 0.3	25.5 ± 1.3	65.8 ± 2.3	55.2 ± 3.8
ZrO ₂ C	5.5	36.6	75.9	73.2
Y ₂ O ₃ C	10.2	34.5	73.9	69.3

**Fig. 3.** Flow index of dry and wet powders according to their cohesion measured by FT4® powder rheometer in a 10 mL cell, under a pre-consolidation stress of 9 kPa.**Table 4**

Powders properties and population dependent granular Bond number calculated.

Material	True density $\rho_s(g \cdot cm^{-3})$	Hamaker constant $A(10^{-19}J)$	Sauter mean diameter $D_s(\mu m)$	Span of the distribution Span (-)	Asperity size $d_{asp}(nm)$	Population-dependent granular Bond number $B_{oc}(-)$
Al ₂ O ₃ G	4.017 ± 0.070	1.57 ± 0.03	23.1 ± 1.3	2.07 ± 0.10	200	$(1.16 \pm 0.05) \times 10^2$
Al ₂ O ₃ C	4.080 ± 0.005	1.56	4.4 ± 0.8	4.28 ± 1.20	200	$(1.09 \pm 0.23) \times 10^4$
ZrO ₂ G	5.408 ± 0.010	1.13 ± 0.08	52.6	2.08	200	7.40×10^0
ZrO ₂ C	5.874 ± 0.012	1.50	34.7 ± 11.1	1.04 ± 0.06	200	$(3.39 \pm 0.66) \times 10^1$
Y ₂ O ₃ C	4.986 ± 0.093	1.42	5.4 ± 3.5	13.6 ± 5.88	200	$(2.57 \pm 1.32) \times 10^3$

energy of the sample γ_s^d is computed from the Fowkes model represented by Eq. (12), which is valid since the van der Waals of the powders used in this study are London dispersive interactions.

$$w_{SL} = 2\sqrt{\gamma_l^d \cdot \gamma_s^d} \quad (12)$$

The Hamaker constant can then be computed using the Frenkel equation (Israelachvili, 2011b, p. 13):

$$A = 24\pi D_0^2 \gamma_s^d \quad (13)$$

where $D_0 \approx 0.165nm$ is a cut off distance.

DVS measurements are carried out on two different samples for Al₂O₃ G and ZrO₂ G, other powders being measured only once. The values obtained by DVS for each powders are given in Table 3 and the average Hamaker constant values and the corresponding standard deviations are summarized in Table 4. The values obtained from this method are consistent with those that can be computed from the Lifshitz theory (Bernard-Granger et al., 2019; Lifshitz and Hamermesh, 1992).

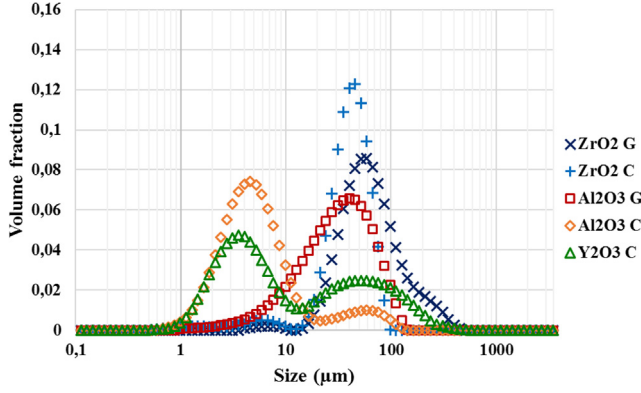


Fig. 4. Particle volume distribution of the powders measured by LASER diffraction with liquid dispersion.

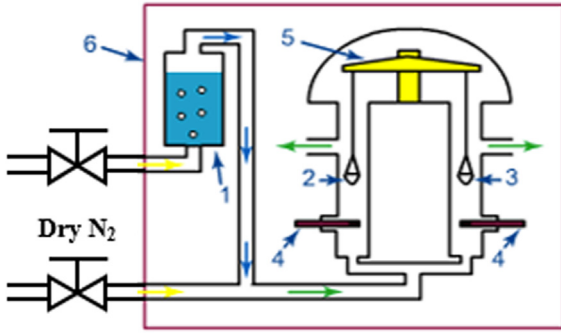


Fig. 5. Schematic representation of the DVS system.

2.3. Population dependent granular Bond number calculation

2.3.1. Interparticle forces

In this study, the capillary forces have been neglected since all the samples have been dried before rheological measurements. The electrostatic forces have been measured by a tribo-electrification technique: a few grams of powder is introduced in a cylindrical vessel made of stainless steel, oriented at 40° from the horizontal, isolated from the ground and rotating at 92 revolutions per minute. The total charge acquired or conceded by the powder after a certain amount of time is obtained by placing the sample in a Faraday cage, linked to an electrometer. The magnitude of the specific charge acquired or conceded by the samples never exceeds one micro Coulomb per kilogram except from the Y_2O_3 C powder, which reaches $-3.8 \mu C.kg^{-1}$ after 15 min of rotation. Finally, the magnitude of the electrostatic forces within the powder, assuming that particles are in close contact, can then be estimated using Eq. (14), where C is the surface charge of the particle, obtained from the specific charge of the powder and the specific surface area of the particles (Bernard-Granger et al., 2019). However, it should be noted that in this technique, the charge measured corresponds to the total charge of the sample and does not account for the individual particle electrostatic charges. Thus, this method only allows to get an order of magnitude of the effective electrostatic forces.

$$|F_{el}|^{max} = \frac{\pi C^2 d^2}{4\epsilon_r \epsilon_0} \quad (14)$$

here, $\epsilon_0 = 8.90 \times 10^{-12} C^2.N^{-1}.m^{-2}$ is the vacuum dielectric constant and $\epsilon_r = 1$ is the relative dielectric constant of the air.

Fig. 6 shows the evolution of the electrostatic forces (Eq. (14)), the weight (Eq. (4)) and Van der Waals forces (Eq. (3)), according to the particle diameter of Y_2O_3 C powder, which is the powder where the electrostatic forces are the most significant. It appears clearly that the magnitude of the electrostatic forces is negligible compared to other forces acting on the particles. Thus, the van der Waals forces are the only interparticle force taken into account for the evaluation of cohesive forces in this study.

2.3.2. Calculation method of population dependent granular Bond number accounting for size polydispersity

For real powders, it was shown that the Sauter mean diameter can be used in order to represent the particle size of one powder exhibiting poorly dispersed size distribution (Capece et al., 2015). However, this approximation becomes questionable when the powders exhibit more complex particle size distributions. Therefore, Capece developed a population dependent granular Bond number Bo_G allowing to take into account the whole size distribution of a powder. This population-dependent granular Bond number consists of a weighted harmonic mean of all the potential individual granular Bond numbers within the powder as shown in Eq. (15) (Capece et al., 2016).

$$Bo_G = \left(\sum_{k=1}^M \sum_{l=1}^M \frac{f_s(x_k) \cdot f_s(x_l)}{Bo_{g,kl}} \right)^{-1} \quad (15)$$

where all size classes are indexed from 1 to M , x_k and x_l correspond to the size of the classes k and l respectively and $f_s(x_{k,l})$ is the surface distribution function according to the size $x_{k,l}$ which can be obtained from the volume distribution given by LASER diffraction, assuming that the particles are spherical. Finally, $Bo_{g,kl}$ is the individual granular Bond number between particles of size x_k and x_l computed as shown in Eq. (5).

In order to compute the population dependent granular Bond number, using Eqs. (5) and (15), the true density, the Hamaker constants and the size distribution of each powder were measured. All the results are summarized in Table 4. As explained in the introduction, the asperity size can be reasonably assumed to be around 200 nm. AFM measurements, were carried out in contact mode with a confocal Raman microscope alpha300 R (WITec®, Ulm, Germany), the root mean squares observed on the surface of several particles are given in Table 5, the incertitude given corresponds to the standard deviation between several particles of the same powder (between three and six particles per powder). Despite the large deviations between different measurements and the low amount of particles analyzed, the results showed that 200 nm is reasonable for all the powders investigated. The last column of Table 4 gives the population dependent granular Bond number calculated for each powder. In particular, the whole granulometric distribution was used to compute the population dependent granular Bond number, but some key parameters of the size distributions are given in Table 4. The high standard deviation on the Y_2O_3 C Bond number comes from the poor repeatability of the particle size measurements for this powder, due to its very wide distribution.

3. Theoretical developments

3.1. Sensitivity analysis of the population dependent granular Bond number

As shown in the introduction section 1, the granular Bond number seems to be correlated to the flowability of the powders. Besides, the population dependent granular Bond number, computed in section 2.3.2, depends on various particle properties, such

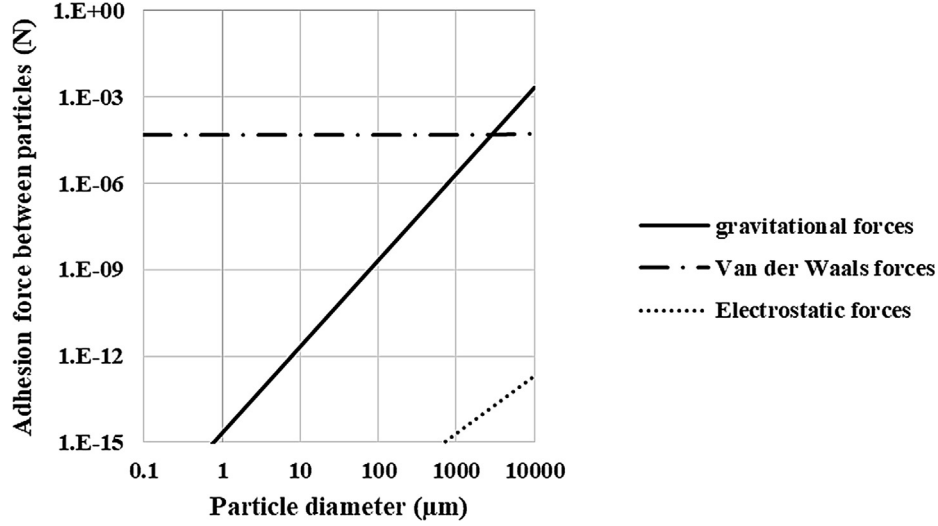


Fig. 6. Estimation of the gravity, Van der Waals and electrostatic forces of Y_2O_3 C particles according to their size.

Table 5
Root mean square of the asperities measured by atomic force microscopy (AFM) on the surface of the particles.

Material	Root mean square
	<i>rms</i> (nm)
Al_2O_3 G	195.3 ± 17.9
Al_2O_3 C	251.6 ± 48.5
ZrO_2 G	120.9 ± 16.1
ZrO_2 C	207.0 ± 62.3
Y_2O_3 C	271.1 ± 6.4

as the Hamaker constant, the true density, the particle size distribution and the particles' rugosity. It is then of great interest to investigate the ranking of these different input factors according to their relative influence on the Bond number variability. Indeed, such a study would allow to identify which particle properties have the most significant impact on the population dependent granular Bond number calculated, and therefore on the powder flow behavior, according to relation (6).

The sensitivity analysis of a model consist in investigating how the variation of the output of the model can be attributed to the variations of the input factors. In particular, it can be used in order to identify the parameters that might have a significant, or negligible, influence on the output variability (Pianosi et al., 2016). Applied to this study, it allows assessing which particle properties are the most critical on the powder macroscopic flow behavior. In this section, we provide a brief local sensitivity analysis, meaning that the variations of the input factors are investigated around a specific value, and not all the space of variability. A "one-at-a-time" (OAT) perturbation and derivative method is used for its simplicity (Norton, 2015). Even if this method provides relevant information as a first approach, it should be noted that it does not take into account the interactions between input factors and considers local sensitivity only.

The granular Bond number, as defined by Eqs. (5) and (15), depends on four physical particle properties: the true density ρ_s , the Hamaker constant A , the particle asperity size d_{asp} and the particle size distribution. Among these input properties, the particle size is a distributed parameter, while the other three properties are non-distributed. Rigorously, the surface energy and the particles' rugosity should be distributed as well as they might depend on the size of the particles. However, much further

characterizations would be needed in order to take these specifications into account, making the model much more difficult to use for quick predictions. In a first step, an analysis is carried out considering only non-distributed properties. Then, in a second step, the particle size distribution is considered.

3.1.1. Non-distributed properties

As a first approach, we will consider that the particle size can be represented by the Sauter mean diameter D_s , as it was already done in previous studies (Capecce et al., 2015). The mean granular Bond number $\bar{Bo}_G$ of a mono-constituent powder can then be defined, using Eq. (16), as a continuous function, depending on four non-distributed variables: $\bar{Bo}_G = f(A, \rho_s, D_s, d_{asp})$.

$$\bar{Bo}_G = \frac{A}{6\pi g \rho_s z_0^2} \times \frac{1}{D_s^2} \left(\frac{1}{2 \left(1 + \frac{d_{asp}}{2z_0}\right)^2} + \frac{3d_{asp}}{d_{asp} + D_s} \right) \quad (16)$$

The sensitivity of the mean granular Bond number according to each parameter is investigated by analyzing the variation induced by a perturbation, one at a time, of each individual parameter (Pianosi et al., 2016). For example, The variation induced by a perturbation of the true density $\Delta \rho_s$ can be expressed as:

$$\Delta_{\rho_s} \bar{Bo}_G = \frac{\bar{Bo}_G(\rho_s, A, D_s, d_{asp}) - \bar{Bo}_G[(\rho_s + \Delta \rho_s), A, D_s, d_{asp}]}{\bar{Bo}_G(\rho_s, A, D_s, d_{asp})} \quad (17)$$

Then, the normalized sensitivity factor of first order, s_{ρ_s} related to the true density is defined as the ratio between the variation induced by the perturbation and the initial perturbation itself as shown by Eq. (18). Thus, a sensitivity factor $s_\chi = 1$ means that a perturbation on the parameter χ will produce a perturbation of the same magnitude on the mean granular Bond number. Likewise, a sensitivity factor $s_\chi \gg 1$ means that the mean granular Bond number is highly sensitive to the parameter χ .

$$s_{\rho_s} = \left| \frac{\Delta_{\rho_s} \bar{Bo}_G}{\Delta \rho_s} \right| \quad (18)$$

The sensitivity factors of each parameter were computed for perturbations in a range of -20% to $+20\%$ around a nominal value. The measured properties of the Al_2O_3 G powder are chosen as the nominal values because this powder exhibits an intermediate flow

behavior and granular Bond number compared to the other powders investigated ($\rho_s = 4.107 \text{ g.cm}^{-3}$, $A = 1.57 * 10^{-19} \text{ J}$, $D_s = 23.1 \mu\text{m}$ and $d_{asp} = 200 \text{ nm}$). Fig. 7 shows the sensitivity factors obtained for each parameter and for different initial perturbations. The results indicate that the sensitivity factor corresponding to the Sauter mean diameter is significantly higher compared to those related to other parameters. Besides, the sensitivity factors related to the true density and the Hamaker constant appears to be equal to one. This is perfectly consistent with Eq. (16) in which the mean granular Bond number appears to be proportional to the Hamaker constant, and inversely proportional to the true density. Finally, the sensitivity parameter of the particle asperity size is also close to one, assuming that its value is around 200 nm.

The sensitivity analysis of non-distributed parameters shows that all the particles properties considered in this paper have significant influence on the value of the mean granular Bond number computed. However, among these properties, the particle size is the most critical one. According to relation (6), this means that particles' size, density, surface energy and rugosity have an effect on the macroscopic flow behavior of the powders, but particle size seems to be of first importance. This result is perfectly consistent with most experimental studies reported in the literature (Fu et al., 2012; Tomas, 2001; Yu et al., 2011).

3.1.2. Distributed properties

Previous section showed that the size of the particles is the most important particle parameter regarding the mean granular Bond number. However, the population dependent granular Bond number uses the whole size distribution instead of the Sauter mean diameter. In order to investigate the influence of the particle size distribution on the population dependent granular Bond number, different volume particle distributions $F_{RR}(x)$ were artificially created using the Rosin-Rammler law, given by Eq. (19). This law, commonly used for distribution simulation (Vesilind, 1980), uses two parameters: x_0 which is the location parameter of the distribution, and n which is the spread parameter. A high value of n corresponds to a narrow distribution.

$$F_{RR}(x) = 1 - e^{-\left(\frac{x}{x_0}\right)^n} \quad (19)$$

Eleven artificial particle size distributions were made up and the population dependent granular Bond number was computed for each distribution using the Al_2O_3 G powder properties

($\rho_s = 4.107 \text{ g.cm}^{-3}$, $A = 1.57 * 10^{-19} \text{ J}$, $d_{asp} = 200 \text{ nm}$ and $z_0 = 0.4 \text{ nm}$). However, the same results were obtained using the properties of the other powders investigated in this study. The spread and location parameters of the distributions are shown in Table 6. These parameters were chosen in order to obtain distributions in the same range than those corresponding to the real powders, given on Fig. 4. Table 6 shows also the population dependent granular Bond number computed from these distributions. The decile (d_{10} , d_{50}), the Sauter mean diameter D_s and the span parameter of the distributions were also calculated and are given in the same Table 6. Distributions AA1 and AA2 are created from a linear combination of two Rosin-Rammler distributions in order to obtain bimodal distributions.

The curves corresponding to the distributions of Table 6 are shown on Fig. 8. Distributions A1, A2, A3 and A4 share the same location parameter $x_0 = 55 \mu\text{m}$ but have different spread parameters n (Fig. 8 (a)). Whereas distributions A2, A5 A6 and A7 share the same spread parameter $n = 3.0$ with different location parameters (Fig. 8 (b)). Finally, distributions A3, A8, AA1 and AA2 almost share the same median diameter d_{50} around $32.5 \mu\text{m}$, but have different span parameters (Fig. 8 (c)). In that case, the distributions AA1 and AA2 are bimodal, while A3 and A8 are monomodal. In particular, one can notice that A8 and AA1 have the same median diameter and almost the same span parameter but with different modalities (bimodal or monomodal). The median diameter and the span are used instead of x_0 and n for these distributions because AA1 and AA2 are not Rosin-Rammler type distributions.

The population dependent granular Bond number corresponding to each distribution of Table 6 were computed using the Al_2O_3 G powder properties. The values obtained are plotted against the spread parameter n , the location parameter x_0 , the span and the median diameter d_{50} on Fig. 9 (a), (b), (c) and (d) respectively.

Fig. 9 (a) shows that, for a given location parameter, the Bond number becomes smaller when the spread parameter is higher. This result implies that the cohesive forces become less important when the distribution is narrower. However, Fig. 9 (a) also shows that two distributions sharing the same spread parameter can demonstrate very different Bond numbers depending on their location parameter (A5 and A7 for example). Fig. 9 (b) represents the population dependent granular Bond number as a function of the Rosin-Rammler location parameter x_0 . For a given spread parameter ($n = 3.0$ for this example), the Bond number decreases when the position parameter increases. Indeed, the cohesion forces are

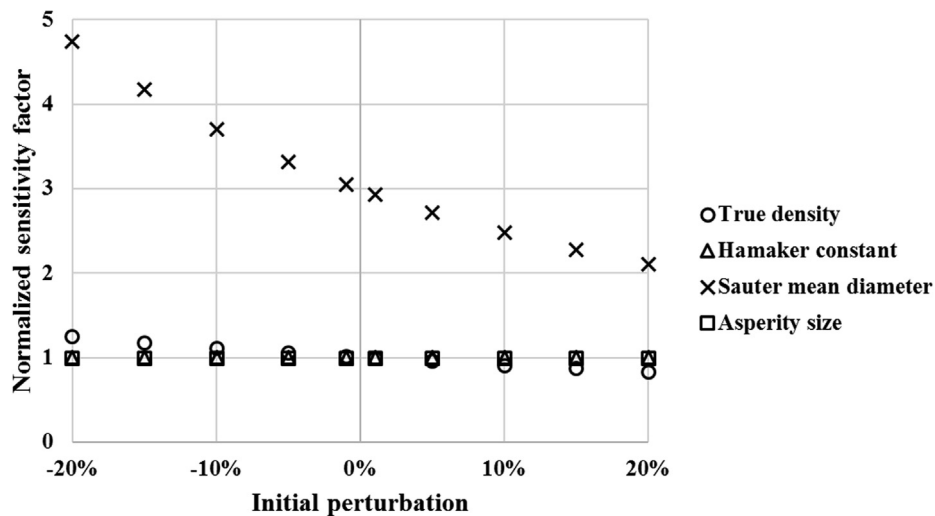
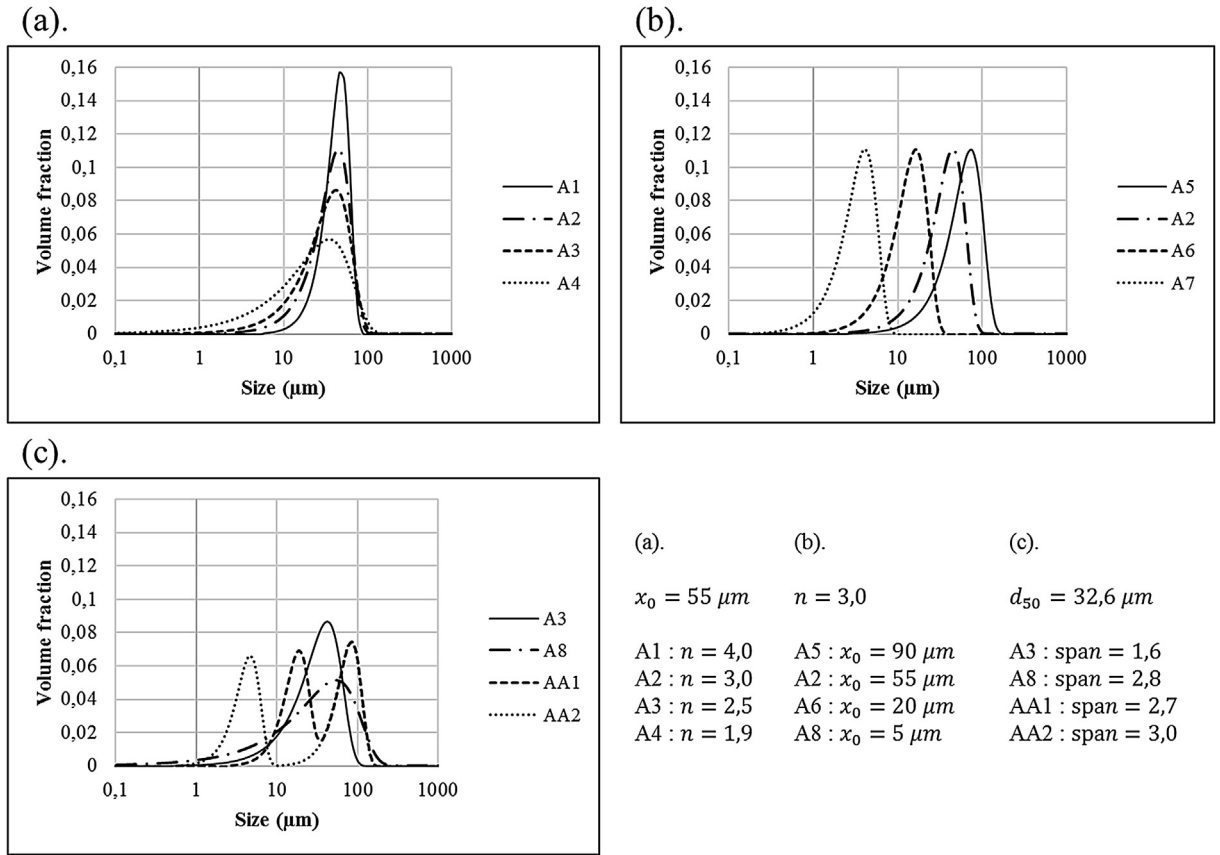


Fig. 7. Sensitivity factors of the mean granular Bond number according to different parameters, for initial perturbations in a range of -20% to +20%.

Table 6

Distribution parameters corresponding to the particle size distributions modeled by Rosin-Rammler law. The population dependent granular Bond numbers are computed from the distributions using the Al_2O_3 G powder properties

Name	$x_0(\mu\text{m})$	n	$d_{10}(\mu\text{m})$	$d_{50}(\mu\text{m})$	$D_5(\mu\text{m})$	span	Bo_g
A1	55	4.0	23.6	42.4	38.4	0.9	3.56×10^1
A2	55	3.0	15.7	37.3	28.7	1.2	7.19×10^1
A3	55	2.5	10.4	32.6	19.8	1.6	1.71×10^2
A4	55	1.9	3.6	22.5	5.0	2.5	3.52×10^3
A5	90	3.0	25.7	61.1	46.9	1.2	1.66×10^1
A6	20	3.0	5.7	13.6	10.4	1.2	1.48×10^4
A7	5	3.0	1.4	3.40	2.6	1.2	9.08×10^4
A8	90	1.8	4.2	32.7	5.0	2.8	2.33×10^3
A9	89	3.0	25.4	60.4	46.6	1.2	1.71×10^1
AA1	$A6 + 5 \cdot A5$		11.6	32.6	25.4	2.7	8.15×10^1
AA2	$A7 + 20 \cdot A9$		2.9	32.4	7.5	3.0	1.28×10^3

**Fig. 8.** Size distributions of Table 6, simulated through the Rosin-Rammler equation.

expected to become less influential than the weight of the particles as their size increases. However, it also appears that two distributions having the same location parameter can show significantly different Bond number depending on their spread parameter. Fig. 9 (a) and (b) show that both location and spread of the distributions have an influence on the population dependent granular Bond number.

Fig. 9 (c) and (d) show the evolution of the population dependent granular Bond numbers according to the span parameter and to the median diameter d_{50} of the distributions, respectively. The span and the median diameter are used instead of the Rosin-Rammler parameters in order to include the bimodal distributions AA1 and AA2 that cannot be described using two simple Rosin-Rammler parameters. The observations made on Fig. 9 (a) and (b) also applies to Fig. 9 (c) and (d): the Bond number seems to be higher for more disperse and smaller particle sizes, but both

parameters seem to be interdependent. We can also note on Fig. 9 (c) that distributions AA1 (bimodal) and A8 (monomodal) have very different Bond numbers despite the fact that they almost share the same span and median diameters. This suggests that the span and the median diameter might not be the most relevant parameters to assess the population dependent granular Bond number, especially for polydisperse powders. However, we can notice a global trend on Fig. 9 (d) suggesting that the Bond number decreases with the median diameter even if there is still significant differences between some distributions having different spreads.

Considering that the Bond number is correlated to the flowability, Fig. 9 suggests that the flowability increases when the distribution becomes narrower and when the mean particle diameter increases. This is consistent with many theoretical and experimental studies found in the literature (Fu et al., 2012). However, it is not possible to assess which is the most influential parameter among

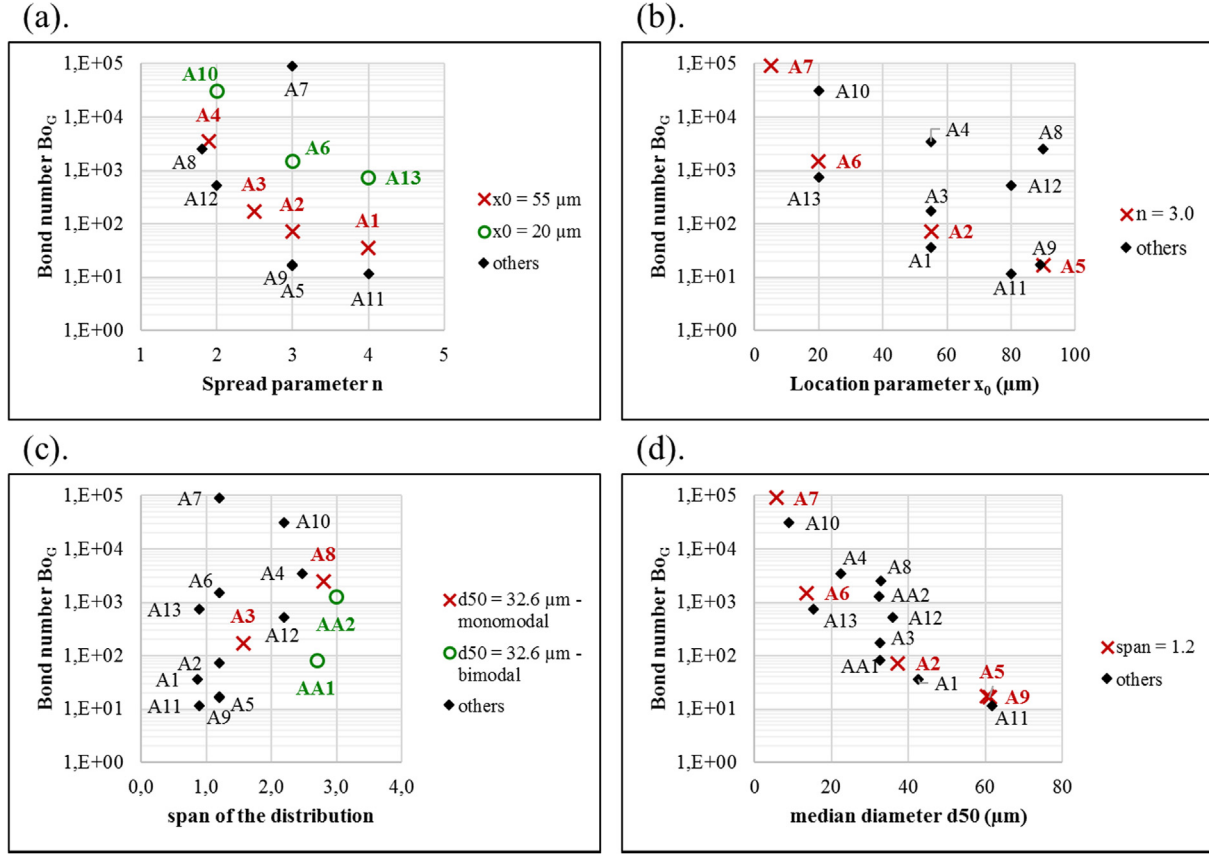


Fig. 9. Evolution of the population dependent granular Bond number according to various distribution parameters: spread parameter n (a), location parameter x_0 (b), span (c) and median diameter d_{50} (d).

the location and the spread of the distribution from this data. One possible explanation for these results is that the finest particles of the distribution are the most influent on the computed Bond number. Indeed, the amount of fine particles within a given distribution depends simultaneously on its location and its spread: it increases when the location parameters, x_0 and d_{50} decrease and when the distribution becomes more disperse (n decreases and $span$ increases). This would be consistent with Hamaker's theory suggesting that the Van der Waals force applied to two particles in interaction is dominated by the size of the smallest particle (Hamaker, 1937). Applied to a polydispersed mixture, that would imply that the flowability of the whole powder is mostly controlled by the contribution of the finest particles.

3.1.3. Links between the population dependent granular Bond number and some characteristic distribution parameters

Previous section 3.1.2 showed that the Rosin-Rammler parameters, the span or the median diameter were not sufficient to explain the value of the population dependent granular Bond number. However, Fig. 10 show that the population dependent granular Bond number seems to be closely correlated to the first decile d_{10} and the Sauter mean diameter D_s , whatever the other characteristics of the distributions (spread, modality etc.). The dotted lines of Fig. 10 corresponds to power law interpolations. The equations and determination coefficients corresponding to these power laws are given in Table 7. The fact that the population dependent granular Bond number seems to be correlated to those two parameters can be explained physically:

- The first decile diameter is characteristic of the finest particles among a given particle size distribution. As discussed in the previous paragraph, according to the Hamaker's theory, these fine particles are expected to be the more influent on the overall cohesion of the powder.
- The Sauter mean diameter takes into account the ratio between the surface and the volume of the particles. Yet, the Van der Waals force and the weight applies respectively on the surface and for the volume of the particles. Then it is not surprising to find that the Bond number, defined as the ratio between Van der Waals force and weight, appears correlated to the Sauter mean diameter.

As a conclusion for this section, the population dependent granular Bond number, as defined in sections 1 and 2.3.2, depends on four physical properties of the particles constituting a powder medium: the true density, the Hamaker constant, the particle asperity size and the particle size distribution. Although the population dependent granular Bond number is sensitive to each of these parameters, the particle size distribution seems to be the most influent one. It also appears that the fraction of fine particles and the Sauter mean diameter are closely correlated to the population dependent granular Bond number, whatever the shape and the spread of the distribution. In particular, the population dependent granular Bond number seems to be proportional to the Sauter mean diameter at the power -2.6 , as shown by Eq. (20):

$$Bo_G \propto D_s^{-2.6} \quad (20)$$

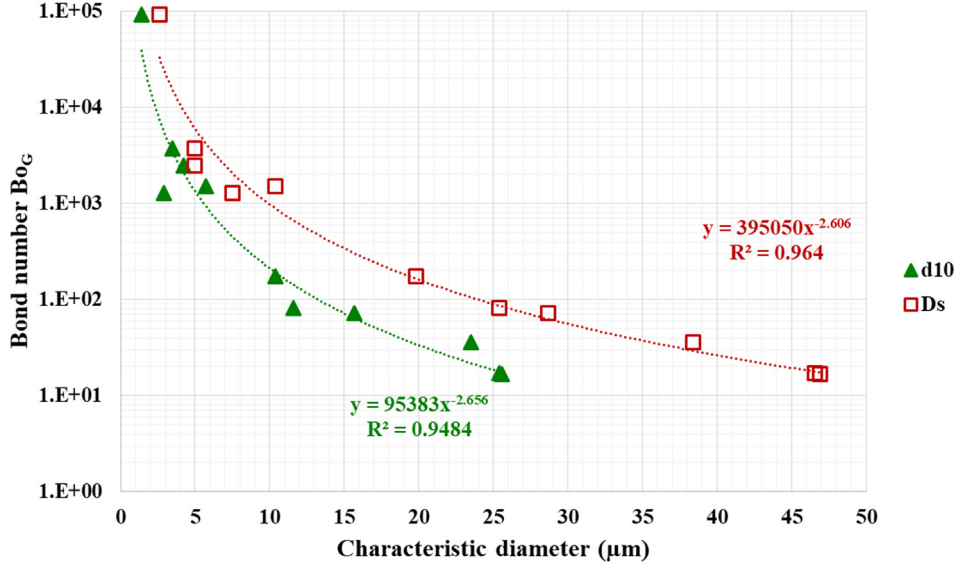


Fig. 10. Population dependent granular Bond number computed for the distributions of Table 6, plotted against the first decile diameter (d_{10} , triangles) and the mean Sauter diameter (D_s , squares). The dotted curves corresponds to power law interpolations those parametric equations are given in Table 7.

Table 7
Parametric equations and regression coefficients corresponding to the powder law interpolations of Fig. 10.

Correlation	Correlation type	Parametric equation	Determination coefficient
$Bo_G = f(d_{10})$	Power law	$Bo_G = 9.5 \times 10^4 \times d_{10}^{-2.7}$	$R^2 = 0.9484$
$Bo_G = f(D_s)$	Power law	$Bo_G = 3.9 \times 10^5 \times D_s^{-2.6}$	$R^2 = 0.9640$

3.2. Relationship with Rumpf's theory

Equation (21), known as the theoretical Rumpf's equation, is widely used to express the link between the tensile strength σ_z of a powder bed, the particles properties and the powder bed structure (Molerus, 1975; Tsubaki, 1984):

$$\sigma_z = \frac{\kappa}{\pi} (1 - \varepsilon) \frac{F_{vdW}}{d^2} \quad (21)$$

Here κ is the powder bed coordination number, ε is the powder bed porosity and d is the particle diameter. As the cohesion c of a powder bed is easily measurable, it is often used instead of the tensile strength (Tomasetta et al., 2014) and Eq. (21) becomes Eq. (22), neglecting the effect of the friction coefficient which is approximately the same for all the powders investigated.

$$c = \frac{\kappa}{\pi} (1 - \varepsilon) \frac{F_{vdW}}{d^2} \quad (22)$$

It is then possible to express the relationship between the granular Bond number and the cohesion between two particles by combining Eqs. (1) and (22):

$$c = f(\varepsilon, \kappa) \frac{W \times Bo_G}{d^2} \quad (23)$$

where $f(\varepsilon, \kappa)$ is a function that depends only on the powder bed structure. In addition W represents the weight of the particles in contact at the failure plane. It can be estimated as the geometric mean of both particles in interaction at the failure plane, as in Eq. (4), and is proportional to the particle diameter cubed. Equation (23) then becomes Eq. (24) where a depends on the powder bed structure and on the true density of the particles.

$$c = a(\varepsilon, \kappa, \rho_s) \times d \times Bo_G \quad (24)$$

Besides, it was shown in the previous section 3.1.3 (Table 7) that the population dependent granular Bond number is approximately proportional to the particle diameter at the power -2.6 , if we assume that the Sauter mean diameter is a correct approximation of the particles size, we can get Eq. (25):

$$c = a(\varepsilon, \kappa, \rho_s) \times Bo_G^b \quad (25)$$

Where the exponent $b = -\frac{1}{2.6} + 1 = 0.6$ comes from the combination of Eqs. (20) and (24).

Finally, we can combine Eqs. (10) and (25) to get a relationship between the flow index ff_c and the population dependent granular Bond number of a given powder according to the Rumpf's theory:

$$ff_c = \alpha(\varepsilon, \kappa, \rho_s) \times Bo_G^{-\beta} \text{ with } \beta = 0.54 \quad (26)$$

where α is a proportionality factor that depends on the powder bed structure and on the true density of the particles, derived from a and Eq. (10), and given by expression (27):

$$\alpha(\varepsilon, \kappa, \rho_s) \approx 4.664 \times a(\varepsilon, \kappa, \rho_s)^{-0.90} \quad (27)$$

Then, according to the Rumpf's theory, the flow index of a powder bed, measured using a powder rheometer under a 9 kPa pre-consolidation stress is expected to be roughly inversely proportional to the square root of the population dependent granular Bond number, and also to depend on the powder bed structure and true density.

Equation (26) is derived from Rumpf's theory represented by Eq. (21), the analysis of the population dependent granular Bond number (Eq. (20)) and the powder flowability measurements carried out with an FT4[®] powder rheometer (10). It is a semi-empirical model that correlates the macroscopic flow behavior of the powder to the microscopic particles properties. Indeed, the flow index is a characteristic of the powder flow behavior and the population dependent granular Bond number is representative of the interparticle forces at particle scale. This semi-empirical correlation between macroscale powder behavior and microscale particle properties has been tested experimentally, the results are given in next section 4.

4. Experimental results and discussion

4.1. Experimental results

On Figure 11, the flow index measured by shear tests in a powder rheometer, is plotted as a function of the population dependent granular Bond number (on a logarithmic scale) that has been computed from particles characterizations summarized in Table 4. Only the flow indexes in dry conditions Table 2 are kept since some powders might exhibit capillary forces, due to relative humidity sensitivity, which is not taken into account for the interparticle forces calculation in Eq. (1).

The cross symbols represents the experimental results for each powder and the error bars correspond to their standard deviations. The ZrO₂ G powder does not appear on the figure since its flow index could not be computed as explained in section 2.2.1. In virtue of Eq. (26), the flow index is expected to vary with the population dependent granular Bond number according to a power law with an exponent β of 0.54, and the proportionality factor α should depend on the state of consolidation of the powder and its true density. Since all the powders investigated have a similar true density (between 4 and 6 g.cm⁻³, according to Table 4), and since they are approximately in the same state of consolidation during the shear tests (same pre-consolidation stress set to 9 kPa), we can assume that the proportionality α is constant for the powders investigated.

The dotted line corresponds to the power law fit given by Eq. (28), which has the same form than Eq. (26), where the exponent β is fixed at 0.54 according Rumpf's theory and Eqs. (10) and (20). The proportionality factor α is adjusted with the least square method in order to fit the experimental data. A value of $\alpha = 89.5$ was found with a total squared error of $S^2 = 3.5670$ between the experimental data and the power law equation.

$$ff_c = \alpha \times Bo_G^{-\beta} \text{ with } \begin{cases} \alpha = 89.5 \\ \beta = 0.54 \end{cases} \quad (28)$$

It appears on Figure 11 that the flow index of these powders is correlated to the population dependent granular Bond number and that this correlation is consistent with Eq. (26), derived from the Rumpf theory. The correlation (28) is of great interest for understanding the relationship between macroscopic flow behavior of powders and the microscopic scale properties of the particles

constituting the powder bed. It suggests that the flow index is approximately inversely proportional to the square root of the population dependent granular Bond number, which is itself mostly dependent on the particle size distribution, and in particular, on the fraction of fine particles. The correlation then confirms that the fraction of fine particles among a powder bed is a critical parameter that has a great influence on the its flowability, which is consistent with many experimental results (Liu et al., 2008; Vlachos and Chang, 2011).

4.2. Discussion and comparison with the literature

The correlation represented by Eq. (28) can be compared to similar correlations obtained experimentally by other authors. The values for parameters α and β found in the literature are given in Table 8. Despite the fact that all these studies found a power law correlation, the equation parameters α and β vary significantly between the authors and are not the same than those suggested in this paper. However, these variations can be explained from the various conditions of flow index measurements and Bond number calculation method. The most relevant differences are listed in Table 8 and are explained in next paragraphs.

First, it should be noted that Eq. (26) comes from a combination of Eq. (25), derived from Rumpf's theory and Eq. (10), which is empirical and might be valid only for the powders and the equipment used for a given investigation protocol. It follows that, rigorously, the correlation parameters α and β found in this study should not be compared directly with those obtained in the literature. Actually, the correlation that comes from the Rumpf's equation is Eq. (25) which gives the link between the cohesion of the powder and the population dependent granular Bond number.

Moreover, some studies were carried using pharmaceutical powders with true densities in a range of 1 to 3 g.cm⁻³. While other studies, including this one, used ceramic powders with true densities from 4 to 6 g.cm⁻³. According to section 3.2, the proportionality factor α is expected to vary when the true densities of the powder becomes too different. This could partially explain the significant difference between the α parameters found with ceramic and pharmaceutical powders. However, section 3.2 also suggests that the proportionality factor α is affected by the state of consolidation of the powder bed as well. Meaning that different shear testing procedure may provide different results on Eq. (28) parameters. The differences between Shulze RTS-XS® and Freeman FT4®

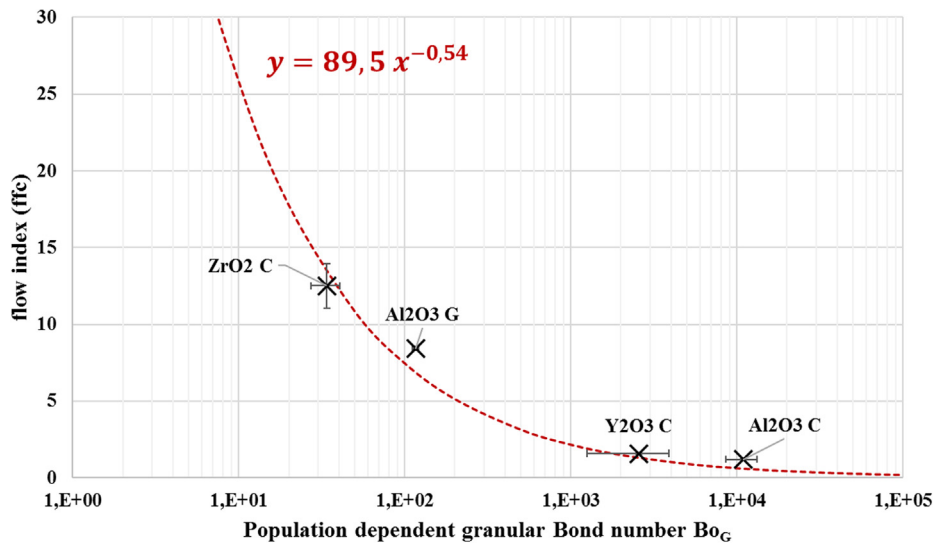


Fig. 11. Flow index of the powders plotted as a function of their population dependent granular Bond number.

Table 8

Other correlations found in the literature

Reference	Power law parameters	Powders used	Shear test device	Type of Bond number	Van der Waals force model
This study	$\alpha = 89.5\beta = 0.54$	Oxide powders	Freeman FT4®	Population dependent	Rumpf modified (3)
(Capece et al., 2015)	$\alpha = 15.7\beta = 0.27$	Pharmaceutical powders	Shulze RST-XS®	Mean	Rumpf modified (3)
(Capece et al., 2016)	$\alpha = 14.8\beta = 0.28$	Pharmaceutical powders	Shulze RST-XS®	Population dependent	Rumpf modified (3)
(Bernard-Granger et al., 2019)	$\alpha = 204\beta = 0.29$	Oxide powders	Freeman FT4®	Mean	Hamaker (2)

rheometers is well documented in the literature (Koynov et al., 2015). Even if they follow a similar measurement protocol, they cannot perform shear tests in the same state of consolidation. Indeed, Capece's measurements were carried out with an annular cell under a pre-consolidation stress of 300 Pa, while the measurements carried out for our investigation were performed with a cylindrical cell under a pre-consolidation stress of 9 kPa. In particular, it was shown in the literature that the pre-consolidation stress affects significantly the powder bed porosity and the macroscopic flow behavior of the powder (Legoix et al., 2017). Thus, the proportionality factors α obtained may vary when the flow index is measured with a different device or under a different pre-consolidation stress.

In order to study in more detail the influence of the powder bed structure on the correlation's parameters, several shear tests were performed on the same powders with a FT4® rheometer under different consolidations stresses. Since the relationship between the flow index and the cohesion parameter (Eq. (10)) may vary with the pre-consolidation stress, Eq. (25), involving the cohesion, is used instead of Eq. (26) in order to check the consistency with Rumpf's theory. Table 9 gives the cohesion parameters obtained for each powder under 3, 6, 9 and 15 kPa pre-consolidation stresses. The uncertainties given in Table 9 correspond to the standard deviations between two samples; they only appear on 9 kPa measurements since other pre-consolidations values were tested only once for each powder. It appears that the cohesion measured for each powder is significantly higher when the pre-consolidation stress increases. This result is in good agreement with the literature (Legoix et al., 2017) and can be explained by the fact that the powder is expected to be more resistive to the flowability when it has been consolidated under a higher normal stress. The cohesion obtained for each powder and for each pre-consolidation stress is plotted against the population dependent granular Bond number on Figure 12. The assumption that the population dependent granular Bond number is not a function of the powder bed structure is reasonable since it only depends on individual particle properties. The error bars corresponds to the standard deviations of the measurements. The dotted lines on Figure 12 corresponds to the power law Eq. (25) where the exponent is fixed to 0.6, according to Rumpf's theory and the proportionality factor a is adjusted using the least square method in order to fit the data. The values obtained for the proportionality factors for each pre-consolidation stress are given on Table 10 with the corresponding total squared error. The results show that the proportionality factor a varies with the pre-consolidation stress. That means that a is a function of the powder bed structure, as

expected in Eq. (25). More precisely, a increases when the powder bed is more compacted. Since a high cohesion value leads to a low flow index, the proportionality factor α is then expected to decrease when the pre-consolidation stress becomes higher. This could explain why the α parameters obtained with a pre-consolidation stress of 300 Pa (Capece et al., 2016, 2015) are considerably lower than those obtained in this study (Table 8) or other studies using a 9 kPa pre-consolidation stress (Bernard-Granger et al., 2019).

Finally, we can notice that the correlations obtained in this study and by Bernard-Granger (Bernard-Granger et al., 2019) still differs significantly despite the fact that the same powders and the same measurement protocol were used. However, these differences are explained by the fact that the granular Bond number computed by Bernard-Granger does not take into account the whole particle size distribution and only considers smooth particles ($d_{asp} = 0\mu m$). Thus, the granular Bond number is probably less accurate since alumina powders, especially the Al₂O₃ C powder, exhibit a sparse particle size distribution and is characterized by rough particles. This underlines the importance of the population dependent granular Bond number when dealing with polydispersed powders. Moreover, the particle diameter used for the granular Bond number calculation by (Bernard-Granger et al., 2019) is the diameter given by the powder manufacturer, but does not corresponds to the measurements carried out by either LASER granulometry or SEM picture analysis (Bernard-Granger et al., 2019). This probably leads to a lesser accurate granular Bond number value. Deeper powder characterizations were carried out for this study, leading to more exact granular Bond number and flow index values.

As a conclusion for this section, the proportionality factors a and α of Eqs. (25) and (26) respectively, are material dependent and may also vary with the flow measurement technique. On the other hand, the exponent $b = 0.6$ of Eq. (25) is derived from Rumpf's theory and is expected to be material independent. However, the exponent β is derived not only from Rumpf's theory but also from empirical equation (10). Thereby, caution should be taken when comparing α and β parameters obtained for different studies.

5. Conclusion and perspectives

This paper confirms and develops the correlation found in previous investigations regarding the relationship between the macroscopic flow behavior of a powder and the microscopic properties of the particles constituting the powder bed, represented by the population dependent granular Bond number. The power law

Table 9

Cohesion of the powders measured with a FT4® powder rheometer under different pre-consolidations stresses

Powder	Cohesion (kPa)			
	3 kPa pre-consolidation	6 kPa pre-consolidation	9 kPa pre-consolidation	15 kPa pre-consolidation
Al ₂ O ₃ G	0.16	0.46	0.54 ± 0.01	0.77
Al ₂ O ₃ C	2.08	2.69	4.57 ± 0.14	5.65
ZrO ₂ G	0	0	0	0.09
ZrO ₂ C	0.10	0.24	0.34 ± 0.04	0.91
Y ₂ O ₃ C	1.05	1.73	3.32 ± 0.31	3.95

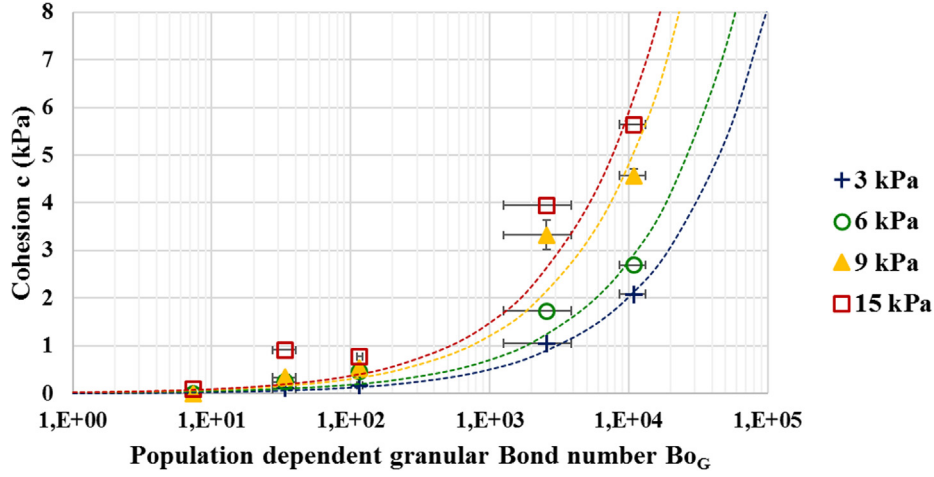


Fig. 12. Cohesion of the powders measured with an FT4® powder shear tester under different pre-consolidation stresses, plotted against the population dependent granular Bond number. The dotted lines correspond to the predictions of equation Eq. (25) according to Rumpf's theory.

Table 10

Proportionality factors and total squared error corresponding to the correlations of Fig. 12

Pre-consolidation stress σ_c (kPa)	3	6	9	15
Proportionality factor a (kPa)	0.008	0.011	0.019	0.024
Total squared error S^2	0.0278	0.4001	1.7403	2.7640

linking the flow index to the population dependent granular Bond number, introduced in previous studies (Bernard-Granger et al., 2019; Capece et al., 2016; Castellanos, 2005), was confirmed in this paper for different ceramic oxide powders. In particular, polydispersed powders exhibiting a higher true density have been investigated. Furthermore, we showed that the correlation (6), linking the flow index to the granular Bond number through a power law equation, turns out to be consistent with the Rumpf's theoretical equation. Thus, physical meanings for the power law's parameters α and β were suggested. It was shown experimentally and theoretically that the proportionality factor α depends on the powder bed structure. It may also depend on the true density of the particles but the magnitude of this effect was not assessed experimentally since the powders used in this study have similar densities. On the other hand, the exponent β seems to be material independent and can be found using Rumpf's theory. An effort was made in order to explain the different values of α and β found in this study and among the literature. It appeared that the correlation obtained was significantly affected by the shear test measurement protocol. In particular, the pre-consolidation stress applied to the powder bed was shown to be a key parameter, as stated in previous studies (Legoix et al., 2017). The evolution of the power law parameters α and β according to the pre-consolidation stress has been sparsely discussed in this paper but may be studied in more detail in future work. In particular, more data should be acquired at various pre-consolidation stresses and through other rheometers.

The population dependent granular Bond number Bo_G , as defined in this paper, only depends on four particles properties: true density, Hamaker constant, particle asperity size and particle size distribution. Among these parameters, the particle size distributions seems to be the most influent parameter on the population dependent granular Bond number, and thus on the flowability of the powders. In particular, the population dependent granular Bond number was shown to be strongly related to the fraction of fine particles, whatever the shape and spread of the distribution. This result suggests that the fraction of fine particles is a critical

parameter that has a great influence on the flowability of the powders, which is perfectly consistent with many experimental results reported in the literature (Liu et al., 2008).

In spite of the good agreement with the empirical data, the model still has some limitations and could be improved in many aspects. In particular, the population dependent granular Bond number does not take into account the shape of the particles that are all considered spherical up to now. Finer characterization of the particle's shape distribution would be of great interest to improve the Bond number calculation. Indeed, shape factors were shown to correct efficiently the predicted interparticle forces calculation (Thomas et al., 2009). Likewise, the particles are considered as ideally distributed in the powder bed as each interaction has the same probability of occurrence in the population dependent granular Bond number calculations. However, one can expect segregation effects to occur among the particles of different size constituting a powder medium (Mayer-Laigle et al., 2015). Furthermore, it was shown that capillary forces may exist between the particles due to ambient relative humidity sensitivity. These forces, created by liquid bridges between particles in close contact, should also be taken into account in the granular Bond number calculation in order to explain the flow behavior of this powder in ambient conditions. Indeed, in presence of such forces, the effective flow index of a given powder is expected to be lower than the flow index predicted by the model neglecting capillary forces (Bernard-Granger et al., 2019). Finally, the influence of the true density of the particles on the correlation parameters are still unclear and have to be investigated experimentally using powders exhibiting a wider range of densities.

Despite these limitations, the model reveals a strong potential for predicting accurately and quickly the flowability of real polydispersed powders from simple particles properties that can be measured experimentally. Besides the prediction of a single powder flowability, the model could be applied in many industrial processes handling powders. For example, the correlation could be used to predict the flowability of multi component powder mixtures according to their formulation (Capece et al., 2016). More-

over, it could be applied to grinding processes, giving a prediction of the flowability of the powders as their particle size decreases.

Declaration of Competing Interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

References

- Arai, Y., 1996. *Chemistry of Powder Production*. Particle Technology Series, Springer, Netherlands.
- Aulton, M.E., 2002. *Pharmaceutics : the science of dosage form design*. Churchill Livingstone, Edinburgh, New York.
- Bernard-Granger, G., Giraud, M., Pascal, E., Mailhan, L., Larsson, T., Valot, C., Ablitzer, C., Gatamel, C., Berthiaux, H., 2019. Rheological properties of alumina powder mixtures investigated using shear tests. *Powder Technol.* 345, 300–310. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.01.027>.
- Capece, M., Ho, R., Strong, J., Gao, P., 2015. Prediction of powder flow performance using a multi-component granular Bond number. *Powder Technol.* 286, 561–571. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2015.08.031>.
- Capece, M., Silva, K.R., Sunkara, D., Strong, J., Gao, P., 2016. On the relationship of inter-particle cohesiveness and bulk powder behavior: Flowability of pharmaceutical powders. *Int. J. Pharm.* 511, 178–189. <https://doi.org/10.1016/j.jipharm.2016.06.059>.
- Castellanos, A., 2005. The relationship between attractive interparticle forces and bulk behaviour in dry and uncharged fine powders. *Adv. Phys.* 54, 263–376. <https://doi.org/10.1080/17461390500402657>.
- Chen, Y., Yang, J., Dave, R.N., Pfeffer, R., 2008. Fluidization of coated group C powders. *AIChE J.* 54, 104–121. <https://doi.org/10.1002/aic.11368>.
- Cleary, P.W., 2008. The effect of particle shape on simple shear flows. *Powder Technol.* 179, 144–163. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2007.06.018>.
- Derjaguin, B.V., Muller, V.M., Toporov, Y.P., 1975. Effect of contact deformations on the adhesion of particles. *J. Colloid Interface Sci.* 53, 314–326. [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(75\)90018-1](https://doi.org/10.1016/0021-9797(75)90018-1).
- EFCE Working Party on the Mechanics of Particulate Solids., Institution of Chemical Engineers (Great Britain), 1989. Standard shear testing technique for particulate solids using the Jenike shear cell : a report of the EFCE Working Party on the Mechanics of Particulate Solids. Institution of Chemical Engineers, Rugby, England.
- Fu, X., Huck, D., Makein, L., Armstrong, B., Willen, U., Freeman, T., 2012. Effect of particle shape and size on flow properties of lactose powders. *Particuology* 10, 203. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2011.11.003>.
- Hamaker, H.C., 1937. The London–van der Waals attraction between spherical particles. *Physica* 4, 1058–1072. [https://doi.org/10.1016/S0031-8914\(37\)80203-7](https://doi.org/10.1016/S0031-8914(37)80203-7).
- Huang, Z., Scicolone, J.V., Gurumuthy, L., Davé, R.N., 2015. Flow and bulk density enhancements of pharmaceutical powders using a conical screen mill: A continuous dry coating device. *Pharm. Part. Process.* 125, 209–224. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2014.05.038>.
- Israelachvili, Jacob N., 2011. In: *Intermolecular and Surface Forces*. Elsevier, pp. 107–132. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-375182-9.10006-5>.
- Israelachvili, J.N., 2011. Chapter 13 - Van der Waals Forces between Particles and. In: *Surfaces, in: Intermolecular and Surface Forces*. (Third Edition). Academic Press, San Diego, pp. 253–289. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-375182-9.10013-2>.
- Johnson, K.L., Kendall, K., Roberts, A.D., 1971. Surface energy and the contact of elastic solids. *Proc. R. Soc. Lond. Math. Phys. Sci.* 324, 301–313. <https://doi.org/10.1098/rspa.1971.0141>.
- Koynov, S., Glasser, B., Muzzio, F., 2015. Comparison of three rotational shear cell testers: Powder flowability and bulk density. *Powder Technol.* 283, 103–112. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2015.04.027>.
- Legoux, L., Gatamel, C., Milhé, M., Berthiaux, H., 2017. Characterizing powders in order to determine their flow behavior in a mixer: From small scale observations to macroscopic in-mixer rheology for powders of various flowabilities. *Powder Technol.* 322, 314–331. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2017.07.075>.
- Leturia, M., Benali, M., Lagarde, S., Ronga, I., Saleh, K., 2014. Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods. *Powder Technol.* 253, 406–423. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.11.045>.
- Levoguier, C.L., Williams, D.R., n.d. Measurement of the surface energies of pharmaceutical powders using a novel vapor adsorption method (No. Application note 17). Surface Measurement Systems Ltd, UK.
- Li, Q., Rudolph, V., Weigl, B., Earl, A., 2004. Interparticle van der Waals force in powder flowability and compactibility. *Int. J. Pharm.* 280, 77–93. <https://doi.org/10.1016/j.jipharm.2004.05.001>.
- Lifschitz, E.M., Hamermesh, M., 1992. In: *Perspectives in Theoretical Physics*. Elsevier, pp. 329–349. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-036364-6.50031-4>.
- Liu, L.X., Marziano, I., Bentham, A.C., Litster, J.D., White, E.T., Howes, T., 2008. Effect of particle properties on the flowability of ibuprofen powders. *Int. J. Pharm.* 362, 109–117. <https://doi.org/10.1016/j.jipharm.2008.06.023>.

- Mayer-Laigle, C., Gatamel, C., Berthiaux, H., 2015. Mixing dynamics for easy flowing powders in a lab scale Turbula® mixer. *Chem. Eng. Res. Des.* 95, 248–261. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2014.11.003>.
- Molerus, O., 1975. Theory of yield of cohesive powders. *Powder Technol.* 12, 259–275. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(75\)85025-X](https://doi.org/10.1016/0032-5910(75)85025-X).
- Norton, J., 2015. An introduction to sensitivity assessment of simulation models. *Environ. Model. Softw.* 69, 166–174. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2015.03.020>.
- Pianosi, F., Beven, K., Freer, J., Hall, J.W., Rougier, J., Stephenson, D.B., Wagener, T., 2016. Sensitivity analysis of environmental models: A systematic review with practical workflow. *Environ. Model. Softw.* 79, 214–232. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2016.02.008>.
- Podczek, F., Mia, Y., 1996. The influence of particle size and shape on the angle of internal friction and the flow factor of unlubricated and lubricated powders. *Int. J. Pharm.* 144, 187–194. [https://doi.org/10.1016/S0378-5173\(96\)04755-2](https://doi.org/10.1016/S0378-5173(96)04755-2).
- Rabinovich, Y.I., Adler, J.J., Ata, A., Singh, R.K., Moudgil, B.M., 2000. Adhesion between Nanoscale Rough Surfaces: I. Role of Asperity Geometry. *J. Colloid Interface Sci.* 232, 10–16. <https://doi.org/10.1006/jcis.2000.7167>.
- Rumpf, Hans, 1990. *Particle technology*. Chapman and Hall, London.
- Thomas, G., Ouabbas, Y., Grosseau, P., Baron, M., Chamayou, A., Galet, L., 2009. Modeling the mean interaction forces between powder particles. Application to silica gel–magnesium stearate mixtures. *Appl. Surf. Sci.* 255, 7500–7507. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2009.03.099>.
- Tisserand, C., Calvet, R., Patry, S., Galet, L., Dodds, J.A., 2009. Comparison of two techniques for the surface analysis of alumina (Al₂O₃): Inverse Gas Chromatography at Finite Concentration (IGC-FC) and Dynamic Vapor Sorption (DVS). *Powder Technol.* 190, 53–58. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2008.04.058>.
- Tomas, J., 2001. Assessment of Mechanical Properties of Cohesive Particulate Solids. Part 2: Powder Flow Criteria. *Part. Sci. Technol.* 19, 111–129. <https://doi.org/10.1080/02726350152772065>.
- Tomasetta, I., Barletta, D., Poletto, M., 2014. Correlation of powder flow properties to interparticle interactions at ambient and high temperatures. *Particuology* 12, 90–99. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2013.02.002>.
- Tsubaki, J.-I., 1984. A review of the investigation into powder bed mechanics based on a microscopic view in Japan. *KONA*, 78–86.
- Vesilind, P.A., 1980. The Rosin-Rammler particle size distribution. *Resour. Recovery Conserv.* 5, 275–277. [https://doi.org/10.1016/0304-3967\(80\)90007-4](https://doi.org/10.1016/0304-3967(80)90007-4).
- Vlachos, N., Chang, I.T.H., 2011. Investigation of flow properties of metal powders from narrow particle size distribution to polydisperse mixtures through an improved Hall-flowmeter. *Powder Technol.* 205, 71–80. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2010.08.067>.
- Xie, H.-Y., 1997. The role of interparticle forces in the fluidization of fine particles. *Powder Technol.* 94, 99–108. [https://doi.org/10.1016/S0032-5910\(97\)03270-1](https://doi.org/10.1016/S0032-5910(97)03270-1).
- Yu, W., Muteki, K., Zhang, L., Kim, G., 2011. Prediction of Bulk Powder Flow Performance Using Comprehensive Particle Size and Particle Shape Distributions. *J. Pharm. Sci.* 100, 284. <https://doi.org/10.1002/jps.22254>.

Glossary

Notation: Parameter [Usual units]

- ρ_s : True density [g.cm⁻³]
 s_A : Specific surface area [m².g⁻¹]
 γ_s^d : Dispersive surface energy [mN.m⁻¹]
 γ_l^d : Liquid surface tension [mN.m⁻¹]
 π_e : Equilibrium spreading pressure [mN.m⁻¹]
 θ : Contact angle between solid and liquid surfaces [°]
 w_{SL} : Work of adhesion between liquid and solid phases [mN.m⁻¹]
 D_0 : Cut off distance [nm]
 A : Hamaker constant [10⁻¹⁹.J]
 C : Surface electrostatic charge of a particle [μC.m⁻²]
 ϵ_0 : Vacuum dielectric constant [C².N⁻¹.m⁻²]
 ϵ_r : Relative dielectric constant of the medium [-]
 d : Particle diameter [μm]
 d_{asp} : Particle asperity size [nm]
 z_0 : Interparticle distance [Nm]
 g : Gravity constant [m.s⁻²]
 ϵ : Powder bed porosity [-]
 κ : Powder bed coordination number [-]
 $f_s(x)$: Surface fraction of size x [-]
 D_s : Sauter mean diameter [μm]
 $span$: Span distribution parameter [-]
 x_0 : Rosin-Rammler location parameter [-]
 n : Rosin-Rammler spread parameter [-]
 τ : Shear stress [kPa]
 σ : Normal stress [kPa]
 σ_c : Pre-consolidation stress [kPa]
 c : Cohesion parameter [kPa]
 ϕ : Angle of internal friction [°]
 μ : Friction coefficient [-]
 σ_1 : Major consolidation stress [kPa]
 σ_3 : Minor consolidation stress [kPa]
 f_c : Cohesion stress [kPa]

ffc : Flow index [-]

F_{el} : Electrostatic force [μ N]

F_{vdW} : Van der Waals force [μ N]

W : Weight [μ N]

Bo_g : Granular Bond number [-]

Bo_g : Mean granular Bond number [-]

Bo_G : Population dependent granular Bond number [-]