

ACADEMIE DE MONTPELLIER



**Centre International d'Etudes Supérieures en Sciences Agronomiques**

## **THESE**

pour obtenir le grade de

**Docteur du Centre International d'Etudes Supérieures  
en Sciences Agronomiques de Montpellier**

*Discipline* : Génie des Procédés

*Ecole Doctorale* : Sciences des Procédés – Sciences des Aliments

# **Génie des procédés d'agglomération de poudres alimentaires : éléments de phénoménologie des apports d'eau et d'énergie mécanique**

par

**Sandra MANDATO**

Soutenue le 17 Juillet 2012

**Devant le jury composé de :**

Mme Christine FRANCES	DR, LGC-CNRS, ENSIACET, Toulouse	Rapporteur
Mr Denis FLICK	Pr., UMR GENIAL, AgroParisTech, Paris	Rapporteur
Mr Henri BERTHIAUX	Pr., UMR RAPSODEE, Ecole des Mines, Albi	Examineur
Mr Hugo DE VRIES	Directeur UMR IATE, INRA Montpellier	Examineur
Mr Khashayar SALEH	Pr., UMR TIMR, UTC Compiègne	Examineur
Mr Bernard CUQ	Pr., UMR IATE, Montpellier SupAgro	Directeur de thèse
Mr Thierry RUIZ	Dr., UMR IATE, Université Montpellier 2	Co-Directeur de thèse



ACADEMIE DE MONTPELLIER



Centre International d'Etudes Supérieures en Sciences Agronomiques

## THESE

pour obtenir le grade de

**Docteur du Centre International d'Etudes Supérieures  
en Sciences Agronomiques de Montpellier**

*Discipline* : Génie des Procédés

*Ecole Doctorale* : Sciences des Procédés – Sciences des Aliments

# **Génie des procédés d'agglomération de poudres alimentaires : éléments de phénoménologie des apports d'eau et d'énergie mécanique**

par

**Sandra MANDATO**

Soutenue le 17 Juillet 2012

**Devant le jury composé de :**

Mme Christine FRANCES	DR, LGC-CNRS, ENSIACET, Toulouse	Rapporteur
Mr Denis FLICK	Pr., UMR GENIAL, AgroParisTech, Paris	Rapporteur
Mr Henri BERTHIAUX	Pr., UMR RAPSODEE, Ecole des Mines, Albi	Examinateur
Mr Hugo DE VRIES	Directeur UMR IATE, INRA Montpellier	Examinateur
Mr Khashayar SALEH	Pr., UMR TIMR, UTC Compiègne	Examinateur
Mr Bernard CUQ	Pr., UMR IATE, Montpellier SupAgro	Directeur de thèse
Mr Thierry RUIZ	Dr., UMR IATE, Université Montpellier 2	Co-Directeur de thèse



## REMERCIEMENTS

Je souhaiterais tout d'abord remercier les membres du jury pour leur enthousiasme et les échanges enrichissants que nous avons eus lors de la soutenance. Merci à Mr Khashayar SALEH d'avoir accepté la présidence du jury. Merci à Mme Christine FRANCES et à Mr Denis FLICK d'avoir rapporté cette thèse en apportant leur éclairage sur les problématiques abordées. Merci à Mr Henri BERTHIAUX et Mr Hugo DE VRIES d'avoir apporté leur point de vue sur mes travaux.

Je tiens à présent à remercier tout particulièrement mes deux (supers) directeurs de thèse : Bernard et Thierry. Dans un premier temps, merci à eux de m'avoir fait confiance et d'avoir cru en moi pour mener à bien ce projet de thèse. Je leur en suis très reconnaissante. Merci pour le temps et l'énergie qu'ils m'ont consacrée au quotidien, et ce, toujours avec beaucoup de gentillesse, de dynamisme et d'humour ! Ils ont su me communiquer leur passion et leurs compétences ainsi que faire preuve de patience et de générosité à mon égard. J'ai énormément appris à leur contact et j'espère avoir hérité de certaines de leurs qualités humaines et pédagogiques.

Je remercie sincèrement les membres du programme ANR Reactive Powder, grâce auxquels j'ai pu acquérir une vision d'ensemble des problématiques scientifiques et techniques liées aux poudres et milieux granulaires. Nos rencontres tri-annuelles ont été l'occasion de discussions constructives dans une ambiance chaleureuse. Merci particulièrement à Eric avec qui j'ai parcouru la France (d'Albi à Lille) pour la réalisation d'expérimentations. Sa patience, sa gentillesse et sa bonne humeur ont rendu le travail expérimental moins répétitif et plus agréable à mener.

Cette thèse a aussi été l'occasion pour moi de réaliser des enseignements ; ce qui a été rendu possible grâce à Mr Bernard CUQ, Mme Hélène ANGELLIER-COUSSY et Mme Emmanuelle GASTALDI. Je les en remercie.

Un grand merci aux permanents de l'UMR IATE. Merci à Christian et Roland pour leur formidable appui technique. Merci à l'équipe administrative (Laurence, Carole et Christophe) qui a su accompagner la réalisation de mes travaux et a rendu possible mes (nombreux) déplacements à l'étranger.

Je garderai un très agréable souvenir des stagiaires (Pauline, Linda, Maxence et Caio) et doctorants du laboratoire : les « anciens » et leur accueil chaleureux (Moustafa qui possède de formidables qualités humaines et...culinaires, Mariana, Fred), les doctorants « du début » (Mathilde, Célie, Amal, Natalia) et ceux qui soutiendront bientôt leur thèse (Adeline, Emna, Inès...). Nous avons passé d'excellents moments ensemble. Merci aussi d'avoir été présents pour les petits déboires de thèse !

Merci également à mes parents et ma famille pour le soutien et la générosité dont ils ont fait preuve durant toutes mes études. Vous avez été présents à chaque instant et je vous en suis extrêmement reconnaissante. Enfin, je remercie Julien qui a su faire preuve de beaucoup de patience et dont la présence au cours de ces trois années m'a « boostée » au quotidien.



# **Table des matières**

---

Table des matières .....	vii
Nomenclature.....	xi
Liste des tableaux .....	xv
Liste des figures .....	xvii

**I. INTRODUCTION.....1**

**II. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE.....11**

**II.1. L'agglomération humide des poudres alimentaires .....13**

II.1.1. Poudres : définitions et généralités.....13

II.1.2. Les poudres alimentaires.....13

II.1.3. Définitions et intérêts de l'agglomération des poudres en général, y compris des poudres alimentaires.....15

II.1.4. Technologies d'agglomération du couscous .....16

**II.2. Mécanismes d'agglomération humide : approches théoriques .....20**

II.2.1. Caractérisation des particules.....20

II.2.1.1. Distribution granulométrique .....21

II.2.1.2. Forme des particules.....22

II.2.1.3. Rugosité des particules .....23

II.2.1.4. Masses volumiques d'une poudre.....23

II.2.1.5. Porosité .....23

II.2.2. Approche traditionnelle de l'agglomération : les principaux mécanismes .....24

II.2.3. Approche plus récente selon trois étapes .....26

II.2.3.1. Mouillage et nucléation .....26

II.2.3.2. Consolidation et croissance .....30

II.2.3.3. Rupture et usure .....33

II.2.3.4. Carte de régimes d'agglomération.....33

II.2.4. Approche hydro-texturale .....35

**II.3. Procédés et équipements d'agglomération .....40**

II.3.1. Equipements de malaxage pour l'agglomération des poudres .....40

II.3.2. Equipements pour l'apport du liquide de mouillage .....44

II.3.3. Paramètres opératoires pour l'agglomération en mélangeur à faible taux de cisaillement.....46

II.3.3.1. Paramètres opératoires de l'apport d'eau.....46

II.3.3.2. Paramètres opératoires de l'apport d'énergie mécanique .....48

**II.4. Outils de suivi en ligne de l'agglomération humide des poudres.....49**

II.4.1. Suivi de l'agglomération par mesures de puissance.....49

II.4.2. Suivi de l'agglomération par spectroscopie proche infra-rouge.....52

**II.5. Outils d'analyse des écoulements granulaires (gravitaires ou forcés).....55**

II.5.1. Vélocimétrie par images de particules .....55

II.5.2. Autres techniques de caractérisation des écoulements granulaires en mélangeurs .....58

**II.6. Concepts de la physique des milieux granulaires.....60**

II.6.1. Quel(s) état(s) physique(s) de la matière en grains ? .....60

II.6.2. Phénomènes propres aux milieux granulaires .....61

**II.7. Conclusions .....67**

**III. MATERIELS ET METHODES .....71**

**III.1. Granular raw materials.....73**

**III.2. Analytical characterization of granular raw materials.....73**

**III.3. Static and dynamic behavior of granular materials under mechanical inputs .....74**

**III.4. Liquid materials, spraying systems, and drop size measurements .....78**

**III.5. Wet agglomeration experiments .....81**



III.5.1. Low shear mixers and probes.....	81
III.5.2. Protocols for wet agglomeration experiments.....	84
<b>III.6. Analytical methods to characterize the wet agglomerates .....</b>	<b>86</b>
<b><u>IV. RESULTATS ET DISCUSSION.....</u></b>	<b>89</b>
<b><u>IV.1. Atomisation d'un jet liquide en gouttelettes.....</u></b>	<b>91</b>
<b>IV.1.1. Liquids' atomization with two different nozzles: Modelling of the effects of some processing and formulation conditions by dimensional analysis .....</b>	<b>92</b>
IV.1.1.1. Abstract.....	92
IV.1.1.2. Introduction.....	92
IV.1.1.3. Materials and methods .....	95
IV.1.1.3.1. Atomizing systems .....	95
IV.1.1.3.2. Pulverized liquids .....	96
IV.1.1.3.3. Droplet size distribution measurement .....	98
IV.1.1.4. Results and discussions.....	98
IV.1.1.4.1. Liquid atomization with the single-fluid nozzles .....	98
IV.1.1.4.1.1. Influence of process parameters .....	99
IV.1.1.4.1.2. Influence of formulation parameters.....	100
IV.1.1.4.2. Liquid atomization with the two-fluid nozzles.....	101
IV.1.1.4.2.1. Influence of process parameters .....	101
IV.1.1.4.2.2. Influence of formulation parameters.....	103
IV.1.1.4.3. Comparison of single-fluid nozzles and two-fluid noozles .....	105
IV.1.1.4.4. Modelling using dimensional analysis.....	106
IV.1.1.5. Conclusions.....	109
<b><u>IV.2. Contraintes et écoulements granulaires d'un lit de particules en malaxeur expérimental .....</u></b>	<b>111</b>
<b>IV.2.1. What is Janssen's length doing in an agglomerator ? .....</b>	<b>112</b>
IV.2.1.1. Abstract.....	112
IV.2.1.2. Introduction.....	112
IV.2.1.3. Materials and methods .....	114
IV.2.1.3.1. Raw material.....	114
IV.2.1.3.2. Preparation of wet agglomerates .....	114
IV.2.1.3.3. Analytical methods.....	115
IV.2.1.4. Results and discussions.....	118
IV.2.1.4.1. Vertical stress profiles under static conditions .....	118
IV.2.1.4.2. Vertical stress profiles under dynamic conditions.....	123
IV.2.1.5. Conclusions.....	128
<b>IV.2.2. Experimental study of vertical stress profiles of a confined granular bed under static and dynamic conditions.....</b>	<b>130</b>
IV.2.2.1. Abstract.....	130
IV.2.2.2. Introduction.....	130
IV.2.2.3. Materials and methods .....	132
IV.2.2.3.1. Materials.....	132
IV.2.2.3.2. The uniaxial mixing cell.....	133
IV.2.2.3.3. Vertical stress measurements.....	134
IV.2.2.4. Results and discussions.....	135
IV.2.2.4.1. Global vertical stress profiles .....	135
IV.2.2.4.2. Local vertical stress profiles in the middle of the cell .....	137
IV.2.2.4.3. Horizontal uniformity of the static vertical stress ?.....	139
IV.2.2.4.4. Vertical stress profile under dynamic conditions .....	141
IV.2.2.5. Conclusions.....	143

<b>IV.2.3. Influence de la largeur du capteur et cartographie 2D des contraintes verticales.....</b>	<b>145</b>
IV.2.3.1. Profils locaux de la contrainte verticale au centre de la cellule, Influence de la largeur du capteur.....	145
IV.2.3.2. Cartographie de la contrainte verticale en statique .....	148
IV.2.3.3. Conclusions .....	152
<b>IV.2.4. Characterization of particles' motions in a granular bed under a mechanical sollicitation .....</b>	<b>154</b>
IV.2.4.1. Abstract.....	154
IV.2.4.2. Introduction .....	154
IV.2.4.3. Materials and methods.....	155
IV.2.4.3.1. Materials.....	155
IV.2.4.3.2. The uniaxial mixing cell .....	155
IV.2.4.3.3. Vertical stress measurements .....	156
IV.2.4.3.4. Experimental procedure for PIV measurements.....	156
IV.2.4.4. Results and discussions .....	157
V.2.4.5. Conclusions.....	165
<b><u>IV.3. Capteurs de l'agglomération en voie humide.....</u></b>	<b>166</b>
<b>IV.3.1. Power consumption profile analysis during wet agglomeration process: Energy approach of wheat powder agglomeration.....</b>	<b>167</b>
IV.3.1.1. Abstract.....	167
IV.3.1.2. Introduction .....	167
IV.3.1.3. Materials and methods.....	169
IV.3.1.3.1. Materials.....	169
IV.3.1.3.2. Methods.....	170
IV.3.1.4. Results and discussions .....	171
IV.3.1.5. Discussion.....	181
IV.3.1.6. Conclusion.....	182
<b>IV.3.2. In-line monitoring of durum wheat semolina wet agglomeration by near infrared spectroscopy for two different water supply conditions .....</b>	<b>184</b>
IV.3.2.1. Introduction .....	184
IV.3.2.2. Materials and methods.....	185
IV.3.2.2.1. Raw material and analytical methods.....	185
IV.3.2.2.2. Wet agglomeration protocol.....	186
IV.3.2.2.3. Physico-chemical properties of wet agglomerates .....	187
IV.3.2.2.4. On-line measurements by near infrared spectroscopy .....	187
IV.3.2.3. Results and discussions .....	189
IV.3.2.3.1. Size distribution of the wet agglomerates .....	189
IV.3.2.3.2. Agglomeration mechanisms during the water supply period .....	190
IV.3.2.3.3. Agglomeration mechanisms during the final mixing period .....	191
IV.3.2.3.4. Analysis of NIR spectra during wet agglomeration .....	193
IV.3.2.4. Conclusions .....	201
<b><u>V. DISCUSSION GENERALE.....</u></b>	<b>203</b>
<b>Références bibliographiques.....</b>	<b>215</b>
<b>Productions scientifiques personnelles.....</b>	<b>231</b>

# Nomenclature

---

*Latin letters*

$c$	Cohesion	[Pa]
$d_{10}$	Diameter of 10% in number of grains	[m]
$d_{32}$	Sauter mean diameter	[m]
$d_{43}$	De Brouckere mean diameter	[m]
$d_{50}$	Diameter of 50% in number of grains (median diameter)	[m]
$d_{90}$	Diameter of 90% in number of grains	[m]
$D_h$	Hydraulic diameter of the mixing cell	[m]
$D_{H(cohesion)}$	Heat dissipation due to cohesive effects	[W]
$D_{H(load)}$	Heat dissipation due to load effects	[W]
$D_{H(no load)}$	Heat dissipation at the motor level	[W]
$D_{M(motor)}$	Mechanical dissipation at the motor level	[W]
$D_{Mg(motor)}$	Magnetic dissipation at the motor level	[W]
$d_s^*$	Ratio between semolina true density and water true density	[-]
$g$	Gravity constant	[m.s <sup>-2</sup> ]
$h_p$	Height of the powder bed	[m]
$H$	Powder bed height	[m]
$h_v$	Height of the void volume	[m]
$K$	Janssen's redirection parameter	[-]
$L$	Length between nozzle tip and drop size measurement position	[m]
$l_j$	Janssen's length	[m]
$L_b$	Blade vertical influence length	[m]
$L_{b-max}$	Maximal value of $L_b$	[m]
$L_{b-min}$	Minimal value of $L_b$	[m]
$\delta L_b$	Extension of the fluctuating zone	[m]
$L_p$	Probe width	[m]
$m$	"Hydrostaticity" coefficient	[-]
$M_c$	Mass of the column of grains over the probe	[kg]
$m_s$	Solid mass	[kg]
$M_t$	Total mass of the powder sample in the cell	[kg]
$m_w$	Mass of water	[kg]
$n$	Model parameter	[-]

$P$	Perimeter of the column of grains	[m]
$P_G$	Relative gaz pressure	[Pa]
$P_{E(load)}$	Electric input power during load mixing	[W]
$P_{E(load+water)}$	Electric input power during load+water mixing	[W]
$P_{E(no load)}$	Electric input power during no-load mixing	[W]
$P_{M(blade)}$	Mechanical output power during no-load mixing	[W]
$P_{M(cohesion)}$	Mechanical output power during cohesion effects	[W]
$P_{M(load)}$	Mechanical output power during load mixing	[W]
$P_{M(load+water)}$	Mechanical output power during load+water mixing	[W]
$S$	Section area of the column of grains	[m <sup>2</sup> ]
$S_G$	Gas outlet area	[m <sup>2</sup> ]
$S_L$	Liquid outlet area	[m <sup>2</sup> ]
$S_p$	Surface area of the probe	[m <sup>2</sup> ]
$V_a$	Volume of the agglomerate	[m <sup>3</sup> ]
$v^*$	Characteristic speed	[-]
$v_b$	Blade speed	[m.s <sup>-1</sup> ]
$v_{liq}$	Outlet liquid speed	[m.s <sup>-1</sup> ]
$V_s$	Volume of the solid mass	[m <sup>3</sup> ]
$V_{sample}$	Volume of the powder sample in the cell	[m <sup>3</sup> ]
$w$	Water content	[% g water/g dry matter]
$w_{sat}$	Saturation water content of the agglomerates	[% g water/g dry matter]
$x$	Horizontal coordinate ( $x = 0$ in the middle of the cell)	[m]
$z$	Vertical coordinate	[m]
$z_c$	Critical height at which $L_b$ reaches the powder surface	[m]

*Greek letters*

$\alpha$	Angle of repose	[°]
$\alpha_{1-2,4-7}$	Model coefficients	[-]
$\beta_{3,8}$	Model coefficients	[-]
$\chi_a$	Volumic fraction of agglomerates	[-]
$\phi$	Bed bulk compactness	[-]
$\phi_a$	Agglomerate compactness	[-]

$\phi_c$	Critical compactness	[-]
$\lambda$	Characteristic depth	[m]
$\lambda_b$	Influence length of the bottom	[m]
$\lambda_c$	Critical length	[m]
$\lambda_j$	Janssen's length	[m]
$\lambda_s$	Influence length of the side walls	[m]
$\mu$	Static coefficient of friction between the wall and the grain	[-]
$\mu_G$	Gas viscosity	[Pa.s]
$\mu_L$	Liquid viscosity	[Pa.s]
$\pi_{1-8}$	Dimensionless groups	[-]
$\rho_a$	Agglomerate density	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_G$	Gas density	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_L$	Liquid density	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_p$	Intrinsic density of particles	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_s^*$	Solid true density	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_w^*$	Water true density	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\sigma_{hyd.}$	Hydrostatic stress value	[Pa]
$\sigma_L$	Liquid surface tension	[N.m <sup>-1</sup> ]
$\sigma_{xx}$	Horizontal stress	[Pa]
$\sigma_{zz}$	Vertical stress	[Pa]
$\tau$	Homogenization and agglomeration characteristic time	[s]
$\tau_{xz}$	Shear stress at the wall	[Pa]
$\theta$	Angle of wall friction	[°]
$\psi_a$	Dimensionless spray flux	[-]

# Liste des tableaux

---

<b>Tableau II.1.</b> Diamètres équivalents.	22
<b>Tableau II.2.</b> Influence des paramètres opératoires du mélangeur-granulateur sur les caractéristiques des agglomérats obtenus (adapté de Saleh et Guigon, 2009b, d'après Castel, 1996).	48
<b>Table III.1.</b> Principal dimensions of the three two-fluid atomizing systems used in the experiments.	79
<b>Table IV.1.</b> Principal dimensions of the three two-fluid atomizing systems used in the experiments.	96
<b>Table IV.2.</b> Composition and physico-chemical properties of the selected atomized liquids. (values of density are given $\pm 0.02$ ; values of viscosity are given $\pm 5\%$ )	97
<b>Table IV.3.</b> Definition of the starting variables and fundamental quantities used for the dimensional analysis of the liquid atomization.	106
<b>Table IV.4.</b> Parameters value of the Eq.IV.4 for the dimensional analysis of the liquid atomization, according to the spraying system.	108
<b>Table IV.5.</b> Influence of blade rotation speed on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power during mixing under no load conditions, at different blade rotation speeds.	172
<b>Table IV.6.</b> Influence of blade rotation speed on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power during the transitory period of the mixing of inert load, at different blade rotation speeds and different load masses.	173
<b>Table IV.7.</b> Influence of blade rotation speed on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power during the equilibrium period of the mixing of inert load, at different blade rotation speeds and different load masses.	174
<b>Table IV.8.</b> Influence of water addition level on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power by the agglomeration process during the mixing of the reactive load (semolina and water).	177
<b>Table IV.9.</b> Influence of water on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power after the agglomeration phase.	180
<b>Table IV.10.</b> Energy distribution during mixing agglomeration of durum wheat semolina in presence of water.	181



# Liste des figures

---

<b>Figure I.1.</b> Schématisation de la démarche de la thèse portant sur le procédé d'agglomération humide de poudres en mélangeur à pale, autour de quatre axes d'étude.	7
<b>Figure II.1.</b> Fabrication de couscous artisanal (adapté de Abecassis <i>et al.</i> , 2012).	17
<b>Figure II.2.</b> Schéma de fabrication industrielle du couscous (adapté de Abecassis <i>et al.</i> , 2012).	18
<b>Figure II.3.</b> Porosités inter- et intra-particulaires (a) pores fermés et (b) pores ouverts (adapté de Melcion et Ilari, 2003).	24
<b>Figure II.4.</b> Mécanismes de granulation (a) description traditionnelle, (b) approche moderne (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).	25
<b>Figure II.5.</b> Les différents mécanismes de nucléation : (a) mécanismes de distribution, (b) mécanismes d'immersion (Iveson <i>et al.</i> , 2001 adapted from Schaefer et Mathiesen, 1996).	27
<b>Figure II.6.</b> Mécanismes de nucléation (a) Diagrammes de régimes de nucléation (Hapgood <i>et al.</i> , 2003), (b) Zones de mouillage et nucléation (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).	29
<b>Figure II.7.</b> Régimes de mouillage d'un milieu granulaire (Iveson <i>et al.</i> , 2001 adapté de Newitt et Conway-Jones, 1958).	31
<b>Figure II.8.</b> Mécanismes de croissance (issu de Smirani, 2008, adapté de Iveson et Litster, 1998a)	33
<b>Figure II.9.</b> Carte des régimes d'agglomération (issu de Saleh et Guigon, 2009b adapté de Iveson et Litster, 1998a).	35
<b>Figure II.10.</b> Changement d'échelle du milieu pour une teneur en eau croissante pendant l'opération d'agglomération humide (adapté de Rondet, 2008).	35
<b>Figure II.11.</b> Représentation schématique d'un milieu granulaire humide constitué de trois phases associées (adapté de Saad, 2011).	36
<b>Figure II.12.</b> Représentation schématique du diagramme hydrotextural utilisé pour décrire l'agglomération humide d'un milieu granulaire (adapté de Saad, 2011).	38
<b>Figure II.13.</b> Evolution du diamètre médian ( $d_{50}$ ) de la semoule de blé dur après mouillage et malaxage en fonction de la teneur en eau du lit (adapté de Saad <i>et al.</i> , 2011).	39
<b>Figure II.14.</b> (a) Impact de la teneur en eau du lit sur les valeurs expérimentales de la fraction volumique solide à l'échelle du lit. (b) Impact de la teneur en eau des agglomérats sur les valeurs expérimentales de fraction volumique solide à l'échelle du grain (adaptés de Saad <i>et al.</i> , 2011).	39
<b>Figure II.15.</b> Evolution de la fraction volumique solide des agglomérats en fonction de leur dimension caractéristiques ( $d_{40}$ ), données expérimentales vs modèle fractal (Eq.II.18) (adapté de Saad <i>et al.</i> , 2011).	40
<b>Figure II.16.</b> (a) Représentation schématique du principe de l'agglomération humide en lit fluidisé, (b) Mécanismes de croissance lors de la granulation en lit fluidisé (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).	41
<b>Figure II.17.</b> Les différents types de lits fluidisés (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).	42
<b>Figure II.18.</b> Schéma de fonctionnement du plateau tournant (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).	42
<b>Figure II.19.</b> Principe du tambour rotatif (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).	43
<b>Figure II.20.</b> Exemples de mélangeurs (a) à fort taux de cisaillement (adapté de Saleh et Guigon, 2009b) et (b) à faible taux de cisaillement (mélangeur à spirale, VMI, France).	43
<b>Figure II.21.</b> (a) Schéma d'un atomiseur rotatif, (b) Schéma d'un atomiseur à pression – injecteur multi-trous (adapté de Liu, 2000 <i>in</i> Le Moyne, 2010).	45
<b>Figure II.22.</b> Atomiseur assisté en air (bi-fluide) (adapté de Liu, 2000 <i>in</i> Le Moyne, 2010)	45
<b>Figure II.23.</b> Profil typique de puissance consommée au cours de l'agglomération humide (Leuenberger <i>et al.</i> , 1979).	49
<b>Figure II.24.</b> Exemples de profils de consommation énergétique au cours des phases d'homogénéisation (mouillage par versement en une seule fois au démarrage) (adapté de Rondet, 2008).	50
<b>Figure II.25.</b> Comparaison de l'allure du phénomène de texturation à l'allure du profil de consommation énergétique pour du kaolin (adapté de Rondet, 2008).	51
<b>Figure II.26.</b> (a) Spectres-types bruts. (b) Spectres après dérivée seconde enregistrés pendant l'agglomération humide de la farine de blé (Kaddour et Cuq, 2009).	52
<b>Figure II.27.</b> 2 <sup>ème</sup> composante principale (CP2) en fonction de la 1 <sup>ère</sup> CP, obtenues après ACP sur l'ensemble des données spectrales (1000-2500 nm) (Alcalà <i>et al.</i> , 2009).	53
<b>Figure II.28.</b> Schéma de l'équipement expérimental pour l'acquisition de spectres proches infra-rouge (Kaddour et Cuq, 2009).	54

<b>Figure II.29.</b> Différentes étapes du traitement d'images par PIV (Schon <i>et al.</i> , 2007).	56
<b>Figure II.30.</b> Champs de vitesse et contours de l'intensité de la vitesse au cours de la vidange d'un silo de grains (Sielamowicz <i>et al.</i> , 2005).	57
<b>Figure II.31.</b> Représentation des vecteurs vitesse moyenne et des champs de température granulaire. (a) Vue de dessus d'un quart du mélangeur. (b) Vue de côté de la totalité du lit granulaire. (c) Image d'un quart du mélangeur vue de dessus. (d) Champs de vitesse instantanée correspondants à l'image et, indiquant un écoulement d'avalanche (Conway <i>et al.</i> , 2005)	58
<b>Figure II.32.</b> (a) Schéma d'écoulements granulaires secs en mélangeur planétaire (de type toroïdal). (b) Coupe transversale du bol de mélangeur planétaire pour un mélange de milieux granulaires secs (à gauche) et humides (à droite) (adapté de Laurent, 2005).	59
<b>Figure II.33.</b> Comportements des milieux granulaires selon le mode de sollicitation (Pouliquen, 2001).	60
<b>Figure II.34.</b> Principe de dilatance pour des grains soumis à un cisaillement (Pouliquen, 2001).	61
<b>Figure II.35.</b> Expériences de photoélasticité (Travers <i>et al.</i> , 1987 in Pouliquen, 2002).	63
<b>Figure II.36.</b> (a) Allure du profil de pression en fonction de la profondeur dans une colonne de grains. (b) Profils de pression à la base d'un tas de sable, selon la position ( $x = 0$ au centre du tas). Tas obtenu par versement en pluie ( <i>gauche</i> ) et par versement à partir d'un point source ( <i>droite</i> ) (Ovarlez, 2002).	63
<b>Figure III.1.</b> Schematic representations of the experimental set-up. (a) Glass cell. (b) Blade (not to scale). (c) Picture of the empty cell with the blade fixed to the rod.	75
<b>Figure III.2.</b> Schematic representation of the small blade positions in the cell for static stress measurements.	75
<b>Figure III.3.</b> Picture of the single-fluid atomization nozzle (Spraying Systems Co., France).	78
<b>Figure III.4.</b> Pictures of the external two-fluid atomization equipment (Spraying Systems Co., France).	79
<b>Figure III.5.</b> Sketch of the specific atomization experiments to evaluate droplet size by laser diffraction.	80
<b>Figure III.6.</b> Labo 25, Mahot (VMI, France) low shear mixer equipped with the atomization system.	81
<b>Figure III.7.</b> Low shear mixer SPI10 (VMI, France) equipped with a spiral blade and the atomization system (Spraying Systems Co., France).	82
<b>Figure III.8.</b> Schematic representation of the experimental set-up used for the in-line monitoring of the wet agglomeration of durum wheat semolina by NIR spectroscopy.	83
<b>Figure III.9.</b> Kenwood Major 1200 (Kenwood, United Kingdom) low shear mixer used for energetical measurements and equipped with a K blade.	83
<b>Figure III.10.</b> Typical examples of the two conditions for water addition rates (slow and rapid rates) during the agglomeration process experiments (to reach a final water content of 40%).	85
<b>Figure III.11.</b> Sieving device used for the size distribution measurements of wet agglomerates.	86
<b>Figure IV.1.</b> Picture of the single-fluid atomization nozzle (Spraying Systems Co., France).	95
<b>Figure IV.2.</b> Pictures of the external two-fluid atomization equipment (Spraying Systems Co., France).	95
<b>Figure IV.3.</b> Sketch of the atomization experiment.	98
<b>Figure IV.4.</b> Droplet size distributions after atomization of pure water using single-fluid nozzles of 0.66 mm inside diameter at outlet liquid speed of 26.6 m/s and 20.9 m/s, and 0.28 mm inside diameter at outlet liquid speed of 15.4 m/s.	99
<b>Figure IV.5.</b> Influence of liquid outlet speed on droplet diameters ( $d_{32}$ (○●), $d_{50}$ (□■), and $d_{43}$ (△▲)) after atomization of pure water using two different single-fluid nozzles, at 0.28 mm (white symbols) or at 0.66 mm (black symbols) inside diameters.	99
<b>Figure IV.6.</b> Influence of liquid surface tension on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different viscosities (1 mPa.s (△), 25 mPa.s (●), and 72 mPa.s (▲)) using a single-fluid nozzle (0.66 mm inside diameter) at liquid outlet speed of 26.6 m.s <sup>-1</sup> .	100
<b>Figure IV.7.</b> Influence of liquid viscosity on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different surface tensions (42 mN.m <sup>-1</sup> (△), 49 mN.m <sup>-1</sup> (▲), and 62.5 mN.m <sup>-1</sup> (●)) using a single-fluid nozzle (0.66 mm inside diameter) at liquid outlet speed of 26.6 m.s <sup>-1</sup> .	100
<b>Figure IV.8.</b> Droplet size distributions after atomization of pure water using a two-fluid	101

pneumatic nozzle (0.41 mm inside diameter) for two different liquid flow rates and two different atomizing air pressures.	
<b>Figure IV.9.</b> Influence of relative air pressure on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of pure water at $10 \text{ m.s}^{-1}$ using three different two-fluid nozzles, at 0.41 mm ( $\triangle$ ), at 0.46 mm ( $\blacktriangle$ ), or at 0.51 mm ( $\bullet$ ) inside diameters.	102
<b>Figure IV.10.</b> Influence of liquid outlet speed on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of pure water using three different two-fluid nozzles, at 0.41 mm ( $\triangle$ ), at 0.46 mm ( $\blacktriangle$ ), or at 0.51 mm ( $\bullet$ ) inside diameters, for an atomizing relative air pressure of 1.5 bar.	103
<b>Figure IV.11.</b> Influence of liquid surface tension on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different viscosities (1 mPa.s ( $\triangle$ ), 127 mPa.s ( $\blacktriangle$ ), and 259 mPa.s ( $\bullet$ )) using a two-fluid nozzle (0.41 mm inside diameter) at $10 \text{ m.s}^{-1}$ and a relative air pressure of 1.5 bar.	104
<b>Figure IV.12.</b> Influence of liquid viscosity on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different surface tensions (42 mN.m $^{-1}$ ( $\triangle$ ), 49 mN.m $^{-1}$ ( $\blacktriangle$ ), and 62.5 mN.m $^{-1}$ ( $\bullet$ )) using a two-fluid nozzle (0.41 mm inside diameter) at $10 \text{ m.s}^{-1}$ and a relative air pressure of 1.5 bar.	104
<b>Figure IV.13.</b> Predicted versus experimental dimensionless droplet diameters for the single- (grey triangles) and the two-fluid (black triangles) nozzles. The droplet size measurement was carried out with a laser beam placed at a fixed distance $L = 14 \text{ cm}$ from the extremity of the nozzle. Validation points of the model are shown in white circles.	108
<b>Figure IV.14.</b> Schematic representations of (a) the glass cell and (b) the blade (not to scale). (c) Picture of the glass cell filled with semolina during the vertical blade motion ( $\vec{v}$ is the blade speed).	117
<b>Figure IV.15.</b> Vertical stress profile of the laterally confined semolina bed under static conditions.	119
<b>Figure IV.16.</b> Main characteristics of durum wheat semolina and wet agglomerates: (a) Variations in $d_{50}$ according to the water content, (b) Variations in the solid volume fraction of the bed bulk at saturation ( $\phi_{sat}$ ), in the agglomerate compactness ( $\phi_a$ ), in the bed bulk compactness ( $\phi$ ) and in the volumic fraction of agglomerates ( $\chi_a = \phi/\phi_a$ ) according to the water content (adapted from Saad <i>et al.</i> (2011)).	121
<b>Figure IV.17.</b> Vertical stress profile of a laterally confined bed of agglomerates (46 g water / 100 g dry mass) and of the semolina bed under static conditions.	121
<b>Figure IV.18.</b> Variations of the characteristic length ( $\lambda$ ) according to the water content of the granular media for semolina and for the wet agglomerates.	123
<b>Figure IV.19.</b> Vertical stress profiles under dynamic conditions for semolina at different blade speeds	124
<b>Figure IV.20.</b> Picture of the glass cell filled with semolina.	124
<b>Figure IV.21.</b> Vertical stress profiles under dynamic conditions for wet agglomerates of five different water contents (% dry basis) at a blade speed of $30 \text{ mm.s}^{-1}$ .	127
<b>Figure IV.22.</b> Variations of the cohesion and friction of agglomerates and the maximum stress value at first peak obtained for wet agglomerates at a blade speed of $30 \text{ mm.s}^{-1}$ according to the water content. Dotted lines represent general tendencies.	128
<b>Figure IV.23.</b> Schematic representations of the experimental set-up. (a) Glass cell, (b) Blade (not to scale) and (c) Measurement procedure of the vertical stress $\sigma_{zz}$ (front view of the cell).	133
<b>Figure IV.24.</b> Vertical stress profiles under static conditions (a) for the glass beads and (b) for the semolina particles: comparison between local and global measurements.	136
<b>Figure IV.25.</b> Horizontal profiles of vertical stress (kPa) at 3, 11 and 14 cm depths for a bed of semolina particles laterally confined in the cell (height of the bed = 14 cm).	140
<b>Figure IV.26.</b> Schematic representation of the shapes of the obtained experimental data. (a) Under a mechanical solicitation. (b) Under static conditions for local and global measurements, as defined in this work. The shapes of the static profiles are in accordance with the numerical observations made by Ovarlez and Clément (2005).	141
<b>Figure IV.27.</b> Vertical stress profiles under dynamic conditions for glass beads and semolina at blade speeds of 20, 30 and 40 mm/s.	142
<b>Figure IV.28.</b> Picture of the glass cell filled with (a) glass beads and (b) semolina during the vertical upward motion of the blade ( $\alpha$ is the slope angle).	143

<b>Figure IV.29.</b> Profils des contraintes verticales en fonction de la profondeur dans un lit de semoule confiné latéralement (pour des capteurs de 0,5 ; 1 et 2 cm de largeur). Le profil de contraintes mesuré à l'échelle globale ( <i>i.e.</i> similaire à l'expérience de Janssen) est aussi présenté.	145
<b>Figure IV.30.</b> Profils des contraintes verticales en fonction de la profondeur dans un lit de semoule confiné latéralement (pour des capteurs de 0,5 ; 1 et 2 cm de largeur). Le profil de contraintes mesuré à l'échelle globale ( <i>i.e.</i> similaire à l'expérience de Janssen) est aussi présenté.	146
<b>Figure IV.31.</b> Influence du rapport entre la largeur du capteur et la largeur de la cellule sur la contrainte maximale et la force maximale correspondante obtenues par mesures locale au centre de la cellule.	148
<b>Figure IV.32.</b> Cartographie des iso-contraintes au sein de la semoule latéralement confinée.	149
<b>Figure IV.33.</b> Profils locaux des contraintes verticales en fonction de la profondeur sur l'axe central de la cellule ( $x = 0$ cm) et à la périphérie ( $x = 4$ cm) pour un capteur de 1 cm de largeur.	151
<b>Figure IV.34.</b> Schematic representations of the experimental set-up. (a) Glass cell, (b) Blade (not to scale).	156
<b>Figure IV.35.</b> Vertical stress profiles during the blade vertical rise in the semolina at $v^*$ from 0.05 to 0.75 (corresponding to a blade speed from 2.5 to 40 mm/s).	158
<b>Figure IV.36.</b> (a) Instantaneous velocity fields obtained by PIV analysis when the blade is moving vertically at 5 mm/s. Velocity norm values below 0.0004 m/s are represented in white. (b) Picture of the mixing cell filled with semolina during the vertical rise of the blade.	159
<b>Figure IV.37.</b> (a) Variations of the velocity norm (m/s) measured in the vertical direction above the blade at $x = 0$ according to the height in the powder bed for three different positions of the blade during its vertical rise in the bed of semolina particles. (b) Typical curve showing the variations of $L_b$ according to the position of the blade in the powder bed during its vertical rise at $v^* = 0.19$ . Different parameters are shown ( $L_{b-max}$ , $L_{b-min}$ , $\delta L_b$ , and $z_c$ ). $H$ corresponds to the height of the powder bed ( $H = 14$ cm).	161
<b>Figure IV.38.</b> Variations of the vertical stress (kPa) perceived by the blade and the length of influence of the blade ( $L_b$ ) according to the height of the blade in the powder bed during its vertical rise at six different $v^*$ (from 0.05 to 0.75).	162
<b>Figure IV.39.</b> Representation of instantaneous velocity fields for two different heights of the blade during its vertical rise in semolina at $v = 40$ mm/s ( <i>right</i> ) and scheme of the different zones and patterns observed in PIV, including the associated characteristic parameters ( $\gamma$ , $\beta$ , $\theta_r$ , $z_c$ , $L_{b-min}$ and $L_{b-max}$ ) ( <i>left</i> ).	163
<b>Figure IV.40.</b> Variations of (a) $H-z_c$ and (b) $L_{b-min}$ , $L_{b-max}$ and $\delta L_b$ according to $v^*$ .	164
<b>Figure IV.41.</b> Typical curve for the electrical input power that was recorded during mixing experiments under no-load (for 60 min), after semolina addition (for 60 min), and after water addition (for 60 min).	171
<b>Figure IV.42.</b> Changes in the mass proportion of the different particles types during agglomeration process of durum wheat semolina at 27% water content.	176
<b>Figure IV.43.</b> Mixing power curve of wheat semolina after water addition (at 32% water content). Experimental results versus model (solid line) calculated using Eq. IV.5.	178
<b>Figure IV.44.</b> Impact of water addition level on the calculated values of the characteristic time ( $\tau$ ) for homogenization and agglomeration mechanisms, during agglomeration of durum wheat semolina.	178
<b>Figure IV.45.</b> Impact of water addition level on the electric input power overconsumption due to the agglomeration process of durum wheat semolina.	179
<b>Figure IV.46.</b> Impact of water addition level on energy repartition during agglomeration of durum wheat semolina in presence of water.	182
<b>Figure IV.47.</b> Typical examples of the two conditions for water addition rates (slow and rapid) during the agglomeration process experiments (to reach a final water content of 40%).	186
<b>Figure IV.48.</b> Schematic representation of the experimental set-up used for the in-line monitoring of the wet agglomeration of durum wheat semolina by NIR spectroscopy.	188
<b>Figure IV.49.</b> Mass frequency of agglomerate size fractions for the two conditions of water supply ( <i>i.e.</i> rapid or slow), when measured respectively at 3 min or 2 min of mixing time after the end of water supply period. The dotted lines represent the diameter transition between identified size fractions.	189

- Figure IV.50.** Changes in the relative mass content and water content distribution of the three particle populations (fine, medium, and coarse), respectively under slow (a-b) or rapid (c-d) water supply conditions, as a function of the mixing time during the agglomeration process. The vertical dotted lines represent the end of the water supply period. 190
- Figure IV.51.** Typical NIR raw spectra (*top*) and spectra after second derivative (*down*) during wet agglomeration of durum wheat semolina according to the two conditions of water supply. 193
- Figure IV.52.** Changes in NIR principal component scores  $PC_1$ ,  $PC_2$ , and  $PC_3$  (a, b, and c) as a function of mixing time and the respective spectra loadings (d, e, and f) calculated on raw spectra between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration according to slow water supply condition. Arrows identified the most important peaks. 196
- Figure IV.53.** Changes in NIR principal component scores  $PC_1$ ,  $PC_2$ , and  $PC_3$  (a, b, and c) as a function of mixing time and the respective spectra loadings (d, e, and f) calculated on raw spectra between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration according to the rapid water supply condition. Arrows identified the most important peaks. Dotted lines show general tendencies. 197
- Figure IV.54.** Changes in NIR principal component scores  $PC_1$  and  $PC_2$  as a function of mixing time calculated on spectra after second derivative treatment, between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration. (a, b) Slow water addition condition (c, d) Rapid water addition condition. Dotted lines show general tendencies. 200
- Figure IV.55.** Changes in NIR spectra loadings calculated on raw spectra between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration according to the (a) Slow water addition rate condition (b) Rapid water addition rate condition. Arrows identified the most important peaks. 201
- Figure V.1.** Schématisation de l'expérience de mesures de la contrainte verticale à une échelle locale dans le lit de grains mise au point dans ce manuscrit et de la courbe-type obtenue (haut) et de l'expérience traditionnelle de Janssen (bas). 207
- Figure V.2.** Cartographie 2D des iso-contraintes verticales (gauche) et coupes selon x à différentes profondeurs mettant en évidence la longueur critique ( $\lambda_c$ ) et l'influence des parois ( $\lambda_b$  et  $\lambda_s$ ). 208
- Figure V.3.** Courbes-types de la contrainte verticale mesurée au niveau de la pale et de la longueur d'influence de la pale dans le lit de particules ( $L_b$ ) lors de la remontée de la pale dans la semoule de blé dur ( $v^* = 0.05$ ). Les champs de vitesse instantanés obtenus par PIV pour différentes positions de pale sont aussi représentés. 209

# **Chapitre I. Introduction Générale**

---





Les poudres occupent une place universelle dans le monde actuel et participent fortement à construire notre environnement immédiat. Deuxième classe de matériaux exploités après l'eau (Claudin, 1999), elles rassemblent des produits à faible (*e.g.* sables et graviers en génie civil, alimentation animale) ou plus forte valeurs ajoutées (*e.g.* industries pharmaceutique, cosmétique, chimie fine, alimentation humaine, bétons hautes performances) et présentent une grande diversité de domaines d'utilisation (Durand, 1996). Les milieux granulaires sont présents aussi bien dans la nature (sable et terres) que dans l'industrie, sous des formes, des tailles, et des propriétés mécaniques et chimiques extrêmement variées : des grains (riz, blé, café) en agro-alimentaire, aux granulés (pilules, sphéroïdes médicamenteux, poudres granulées) dans l'industrie pharmaceutique par exemple. Le traitement des matériaux granulaires représentait environ 10 milliards de tonnes par an il y a une dizaine d'années. Aujourd'hui il mobilise à peu près 10 % des moyens énergétiques dédiés à l'industrie et mis en œuvre sur la planète.

Dans l'industrie agro-alimentaire, les poudres sont utilisées en tant que produits alimentaires intermédiaires (farine, semoule, colorants, arômes, *etc.*) entrant dans la fabrication d'aliments, et sous la forme de produits finis consommés en l'état (chocolat en poudre, poudre de lait, sucre, graine de couscous, semoule, *etc.*). Les poudres alimentaires se caractérisent par une forte réactivité au contact de l'eau, qui peut se définir comme la capacité à réagir sous l'influence de contraintes extérieures combinées. Cette réactivité n'est pas encore parfaitement comprise aujourd'hui. Elle exprime les caractéristiques fonctionnelles des particules, qui dépendent de leurs caractéristiques intrinsèques et des conditions environnementales (Saad, 2011). Complexes et diverses par nature, les poudres alimentaires sont soumises à des traitements hydriques, thermiques et/ou mécaniques (broyage, concassage, mélange et malaxage), dont la maîtrise pose encore bien des problèmes au niveau industriel.

L'agglomération de poudres par voie humide consiste à coupler une opération unitaire d'agitation d'un lit de particules solides à une opération unitaire d'apport d'eau ou d'un liant, pour former des structures granulaires de taille supérieure. Il s'agit d'un procédé utilisé dans des domaines d'application très variés, pour lesquels les enjeux relatifs à une amélioration des performances et à un contrôle accru des caractéristiques du produit fini sont capitaux. De nombreuses ressources bibliographiques (livres, publications et thèses de doctorat) sont disponibles et résument l'état de l'art sur l'agglomération humide (*e.g.* Rumpf, 1962; Leuenberger *et al.*, 1979; Kristensen *et al.*, 1985, 1987; Ennis *et al.*, 1991; Pietsch, 1991; Hoornaert *et al.*, 1998; Iveson *et al.*, 2001). Les mécanismes qui concourent à la formation des

agglomérats, ainsi que les effets des variables opératoires de formulation et de procédé ont été largement étudiés cette dernière décennie, surtout dans les configurations de granulateurs à fort taux de cisaillement. Pour ces conditions technologiques, les mécanismes identifiés sont : le mouillage et la nucléation, la consolidation et la croissance, et la rupture et l'attrition (Iveson *et al.*, 2001). A cette description, s'ajoute une approche récente, basée sur la mise en œuvre du diagramme hydro-textural, qui consiste à caractériser les états des agglomérats au cours de leur élaboration à partir de quatre grandeurs, *i.e.* la teneur en eau et la taille, auxquelles s'ajoutent la compacité et le degré de saturation (Rondet *et al.*, 2008). Les grandeurs hydro-texturales (teneur en eau, compacité et degré de saturation) sont mesurées aux échelles du lit et des agglomérats associée à une représentation dans un diagramme compacité-teneur en eau. L'étude des phénomènes d'agglomération liés aux liaisons capillaires qui se développent au cours de l'élaboration de milieux humides non saturés dans des malaxeurs à faible taux de cisaillement a ainsi permis de mettre en évidence un processus de croissance des agglomérats de type fractal (Rondet *et al.* 2008; Saad *et al.*, 2011). Bien que ce processus fractal ne soit pas très surprenant (car bien des systèmes de particules réactives pourvues d'une mobilité se structurent en agrégats fractaux : colloïdes, floccs bactériens, macromolécules, *etc.*), il est toutefois controversé par la seule décade qui sépare les deux longueurs de coupures, basse 100-200 $\mu\text{m}$  (taille des particules natives) et haute 1-2 mm (taille des plus gros agglomérats). Toutefois, les aspects théoriques de l'agglomération ne sont pas suffisamment compris pour permettre de prédire quantitativement l'effet des propriétés physico-chimiques et des conditions opératoires sur la qualité des grains, le taux de croissance et le mécanisme prépondérant.

Dans l'industrie céréalière, la fabrication de la graine de couscous à partir de la semoule de blé dur s'appuie sur les mécanismes et les technologies de l'agglomération humide. Impliquant une succession d'opérations unitaires, que sont les étapes de mouillage, mélange, roulage et tamisage, le procédé d'agglomération de la graine de couscous est encore aujourd'hui considéré comme un art (parfaitement maîtrisé à l'échelle domestique) plutôt que comme une science, en témoigne le degré d'empirisme avec lequel il est conduit au niveau industriel (Abecassis *et al.*, 2012). Un gain considérable en énergie pourrait être assuré en améliorant les rendements instantanés d'agglomération par la réduction des quantités d'agglomérats hors spécifications (*i.e.* agglomérats trop gros ou trop petits) qui doivent être réintégrés via des flux de recyclage dans le circuit de fabrication. Dans la mesure où peu de publications et de brevets portant sur le procédé de fabrication du couscous sont disponibles à ce jour, industriels et scientifiques s'accordent sur la nécessité d'aller plus en avant dans la génération de connaissances nécessaires à une meilleure maîtrise du procédé d'agglomération.

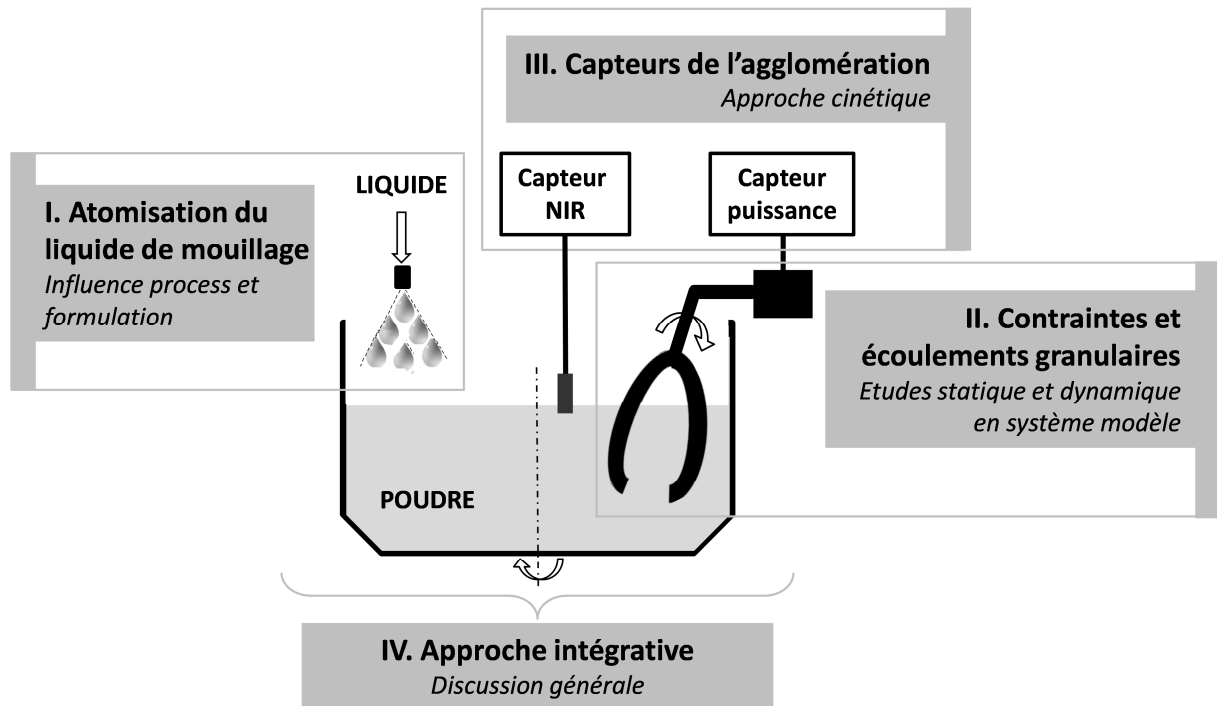
Face à ces enjeux, les mécanismes d'agglomération et les procédés associés, ainsi que plus largement l'ensemble des disciplines s'intéressant à la matière en grains, font l'objet d'un intérêt grandissant au sein de la communauté scientifique depuis une dizaine d'années. Il s'agit d'un vaste domaine d'étude transversal faisant appel à la fois à des disciplines appliquées comme la géotechnique, la galénique, ou les sciences des aliments et à des disciplines académiques telles que le génie des procédés, la physico-chimie et la physique des milieux granulaires. L'étude de la physique des milieux granulaires a vu le jour avec des physiciens de renom tels que Coulomb (1773), Faraday (1831) ou encore Reynolds (1885), ainsi que de nombreux autres chercheurs qui se sont intéressés aux propriétés des systèmes granulaires, classées comme intermédiaires entre celles des états fondamentaux solide, liquide et gazeux (Jaeger & Nagel, 1996). La compréhension des comportements sous sollicitation mécanique, hydrique, thermique, chimique ou encore biologique de ces milieux granulaires, constitués d'un ensemble dense de grains solides, reste de nos jours un problème ouvert. La dilatance, la ségrégation, les effets de voûtes, le "trou du tas" et l'effet Janssen font partie des phénomènes remarquables de ces milieux. Ils s'expliquent par un mode particulier de transmission des forces, qui s'établit via les points de contact entre grains. Le désordre statistique qui caractérise la distribution de ces points de contact (induit par la nature des grains, leur distribution de taille, la topologie et la réactivité de surface, et l'histoire de la construction de leur empilement) génère une anisotropie de la répartition des forces dans les empilements granulaires. Cette anisotropie est à l'origine de l'effet mémoire : *"on ne peut prédire le comportement d'un milieu granulaire sans connaître son histoire"*. Un nombre important de travaux a concerné les matériaux secs frictionnels avec et surtout sans cohésion, et dans une moindre mesure les milieux hydratés "non saturés". Ces travaux concernent d'une part l'étude de l'état statique d'un milieu granulaire qu'il soit sous forme de tas ou confiné en silo (*e.g.* Janssen, 1895; Vanel, 1999; Ovarlez, 2002; Tixier *et al.*, 2004; Bratberg *et al.*, 2005; Di Felice *et al.*, 2010; Qadir *et al.*, 2010), et d'autre part l'étude du comportement de grains mis en mouvement, qu'ils s'agissent d'écoulements gravitaires (plans inclinés à surface libre, vidange d'un silo, écoulements à travers un orifice, *etc.*) ou d'écoulements "forcés" en réponse au déplacement d'un objet (*e.g.* une pale) dans un lit de grains (*e.g.* Savage et Hutter, 1989; Azanza *et al.*, 1999; Ancey, 2002; Jop *et al.*, 2006; Gravish *et al.*, 2010). D'un point de vue fondamental, les physiciens ont cherché à établir les relations entre les propriétés individuelles des particules et leur comportement collectif. Plusieurs difficultés liées aux propriétés même des poudres s'ajoutent à l'"effet mémoire". Tout d'abord, les matériaux granulaires sont constitués d'un grand nombre de particules athermiques dans le sens où l'énergie liée à l'agitation thermique d'un grain est très faible face à son énergie

potentielle. De plus, aux échelles microscopique et macroscopique des milieux granulaires, s'ajoute une échelle intermédiaire dite "mésoscopique", de l'ordre de quelques dizaines de grains, sur laquelle se déroulent des phénomènes liés aux "effets de voûtes" (cisaillement, avalanches de grains, voûtes résistantes, *etc.*). A travers ces phénomènes se manifeste le caractère dissipatif de la matière en grains via la friction et les collisions inélastiques. Malgré le manque de lois de comportement (équivalent de la rhéologie des fluides) permettant de décrire l'écoulement des milieux granulaires de façon univoque, trois régimes d'écoulement secs ont été identifiés : le régime quasi-statique, le régime dense et le régime collisionnel (Pouliquen & Chevoir, 2002; Rajchenbach, 2003). Sans théorie unifiée capable de rendre compte de toute la phénoménologie propre à la matière en grains, différentes approches de type mécanique des milieux continus (état solide), mécanique des fluides (état liquide) et théorie cinétique (état gazeux), existent pour décrire et tenter de modéliser les milieux granulaires (Guyon, 1994; Durand, 1996; de Gennes, 1999; Rahmoun, 2006). A titre d'exemple, la théorie de Janssen utilise une approche de type mécanique des milieux continus pour modéliser le profil vertical des pressions à la base d'un lit de grains latéralement confiné.

La maîtrise du procédé d'agglomération humide en mélangeur à pales exige d'avoir accès à une meilleure description du comportement de la poudre pendant son écoulement, et de l'effet de l'ajout d'un liant sur cet écoulement. Dans ce procédé, les particules sont en contact direct entre elles, et le comportement du milieu est gouverné par la friction et les forces inter-particulaires, la cohésion (liée en partie aux forces capillaires dans le cas d'un milieu granulaire humide), la gravité et les forces induites par le déplacement contre les parois (friction particule-paroi) (Condotta, 2005). Différentes techniques, incluant le suivi d'une particule émettrice de positrons et la vélocimétrie par images de particules, permettent d'accéder au comportement de la poudre en mouvement par l'étude de champs de vitesse et de trajectoires des particules. Ces techniques de visualisation des écoulements présentent un fort potentiel pour l'étude de la contribution des apports mécaniques et hydriques aux écoulements granulaires et aux mécanismes de l'agglomération.

L'objectif de ce travail de recherche est d'investiguer l'opération d'agglomération de poudres réactives au contact de l'eau pour apporter une contribution (*i*) à la compréhension des phénomènes impliqués et (*ii*) au suivi et à la maîtrise de la conduite du procédé. Il s'agit de mettre en place une démarche de type génie des procédés afin d'étudier le rôle des grandeurs caractéristiques des équipements de malaxage (à faible cisaillement) dans les mécanismes d'agglomération, et de proposer à terme des critères de design de malaxeurs dédiés à

l'agglomération. Cette étude est réalisée dans le cas particulier des poudres alimentaires, et plus spécifiquement de la fabrication de grains de couscous à partir de semoule de blé dur.



**Figure I.1.** Schématisation de la démarche de la thèse portant sur le procédé d'agglomération humide de poudres en mélangeur à pale, autour de quatre axes d'étude.

Pour répondre à cet objectif, nous avons mis au point des expériences spécifiques guidées par une stratégie de découplage entre l'apport d'eau et l'apport d'énergie mécanique, pour les étudier séparément dans un premier temps, puis de manière combinée dans un second temps (Figure I.1). L'étude des apports d'eau consiste à évaluer les facteurs qui gouvernent la taille des gouttes pulvérisées. L'étude de l'apport d'énergie mécanique permet de qualifier l'impact du déplacement d'une pale sur la génération de champs de contraintes et de champs de vitesses dans un milieu granulaire. Le couplage de ces deux apports consiste à combiner les apports d'eau et d'énergie mécanique pour évaluer l'impact des conditions opératoires sur les dynamiques d'agglomération, dans le cas spécifique de la fabrication de grains de couscous à partir de la semoule de blé dur. Volontairement pluridisciplinaire et transversal, ce travail de recherche s'appuie sur les concepts de la physique des milieux granulaires et du génie des procédés d'agglomération.

Pour l'étude des apports d'eau, deux types de systèmes de pulvérisation (mono-fluide et bi-fluide) ont été utilisés dans de larges gammes de paramètres opératoires (débit, pression) et de formulation du liquide (tension de surface, viscosité). Nous avons étudié l'influence de ces

paramètres sur la taille des gouttes, car la taille des gouttes est supposée gouverner la taille des premiers assemblages formés (*i.e.* les nuclei) (Iveson *et al.*, 2001). Pour l'étude des apports mécaniques, un équipement modèle de malaxage simulant le déplacement de la pale dans un malaxeur a été développé. L'étude de la distribution des contraintes verticales dans le lit de grain non humidifié et l'analyse des champs de vitesse par acquisition d'images ont été réalisées. L'étude couplée des apports d'eau et d'énergie mécanique est conduite dans des équipements pilotes d'agglomération. Le suivi de l'agglomération est réalisé par l'utilisation de capteurs en ligne de spectroscopie proche infra-rouge et par des mesures de puissance. Cette approche cinétique est discutée en références aux variations de l'état hydro-textural du lit de particules en fonction de la teneur en eau.

Ce travail de recherche a débuté en novembre 2009 dans le cadre du programme Réactive Powder (ANR ALIA 2008), qui s'attache à comprendre la dynamique de génération des contacts cohésifs entre les particules des poudres alimentaires humidifiées. Ce programme de recherche est coordonné par l'équipe de l'UMR IATE (Ingénierie des Agropolymères et Technologies Emergentes) basée à Montpellier et implique plusieurs partenaires académiques français : UMR GENIAL (Massy), Unité LiBIO (Nancy), UMR STLO (Rennes), et UMR RAPSODEE (Albi). Afin de mieux appréhender le procédé d'agglomération, qui dépend de paramètres opératoires, liés aux réglages des équipements, et de paramètres de formulation liés à la nature des produits, une approche multi-échelles a été conduite : (i) à l'échelle de la particule afin d'en déterminer les caractéristiques et la réactivité de surface ainsi que leurs contributions à l'agglomération (action 1), (ii) à l'échelle des mécanismes afin de comprendre les dynamiques de structuration des agglomérats (action 2), (iii) à l'échelle des procédés (action 3) et enfin, (iv) un travail d'intégration des connaissances acquises aux différentes échelles (action 4). Mon travail de thèse correspond à la réalisation de l'action 3 du programme ANR Réactive Powder.

Ce travail de recherche a été réalisé au sein de l'Unité 1208 Mixte de Recherche Ingénierie des Agropolymères et Technologies Emergentes (IATE) qui regroupe des agents du CIRAD, de l'INRA, de Montpellier SupAgro et de l'Université Montpellier 2. Les activités de recherche de l'UMR IATE sont regroupées autour de cinq axes complémentaires. Mon projet de recherche est inscrit au sein de l'axe 2, intitulé "Structuration sous contrainte des agropolymères et réactivité des poudres". Mon travail de thèse a été réalisé sous la direction du Dr. Thierry RUIZ (Université Montpellier 2) et du Pr. Bernard CUQ (Montpellier SupAgro).

Le manuscrit de thèse est construit autour de cinq chapitres et est rédigé dans un format mixte qui s'appuie pour partie sur le texte intégral de quatre publications, soumises ou acceptées, ainsi que de trois autres en préparation.

Le **Chapitre II** est une revue bibliographique qui aborde les poudres alimentaires, les procédés et équipements de l'agglomération et les concepts de physique associée. Une première partie introduit l'agglomération humide des poudres alimentaires, puis aborde le cas particulier du procédé de fabrication du couscous et se termine par une discussion autour des enjeux industriels et de l'intérêt scientifique qu'ils soulèvent. Une seconde partie présente les approches théoriques des mécanismes de l'agglomération humide de poudres (alimentaires ou non). La revue bibliographique se poursuit par une présentation des procédés et équipements d'agglomération, des outils de suivi en ligne de l'agglomération humide et des outils d'analyse des écoulements de poudre. Ce chapitre se poursuit par une explication des concepts de physique des milieux granulaires, puis se termine par une synthèse de l'étude bibliographique.

Le **Chapitre III** (Matériels et Méthodes) présente une synthèse exhaustive (pour l'ensemble des travaux) des matières premières, des méthodes utilisées pour les procédés d'agglomération humide et pour la caractérisation analytiques des agglomérats formés. A noter que des parties matériels et méthodes spécifiques sont également présentées dans le texte de chacun des articles du chapitre résultats et discussions (Chapitre IV).

Le **Chapitre IV** rassemble les résultats de ce travail de recherche qui sont présentés sous la forme de 7 publications (acceptée, soumise ou en préparation, en anglais ou en français) regroupées en trois parties. La première partie présente une étude préliminaire des facteurs (process et formulation) gouvernant la taille de gouttes pulvérisées sur un lit de poudre. La deuxième partie présente l'ensemble des résultats de l'étude expérimentale de la distribution des contraintes dans un lit de grains (*i*) à l'état statique et (*ii*) sous sollicitation dynamique, à laquelle s'ajoute une description phénoménologique des dynamiques de déplacement des grains. Enfin, une étude de la faisabilité d'un suivi en ligne de l'agglomération (*i*) par mesures de puissance et (*ii*) par utilisation de la spectroscopie proche infra-rouge est présentée dans la troisième partie.

Le **Chapitre V** est une discussion générale qui présente une synthèse de l'ensemble des résultats de ce travail de recherche. Nous discutons la pertinence d'une approche pluridisciplinaire et transversale appliquée à l'agglomération humide de poudres, en particulier pour l'établissement de cartes de régimes de fonctionnement comme outils d'aide à la conduite du procédé. Nous présentons aussi quelques perspectives de ce travail de recherche.





## **Chapitre II. Etude bibliographique**

---



## II.1. L'agglomération humide des poudres alimentaires

### II.1.1. Poudres : définitions et généralités

Un matériau granulaire est un matériau composé d'une assemblée de grains, multitude d'éléments solides en interaction, *i.e.* qui restent, la plupart du temps, en contact. Cette définition exclut tout ce qui concerne les lits fluidisés, les suspensions et autres milieux peu concentrés en matériaux granulaires (Duran, 1996). Suivant la taille du matériau granulaire, on distingue (*i*) les poudres, matériaux granulaires de tailles inférieures à 100  $\mu\text{m}$  et regroupant les poudres granulaires (10 à 100  $\mu\text{m}$ ), les poudres superfines (1 à 10  $\mu\text{m}$ ) et les poudres ultrafines (0,1 à 1  $\mu\text{m}$ ), (*ii*) les solides granulaires, matériaux composés de granulés dont la taille se situe entre 100 et 3000  $\mu\text{m}$  et enfin, (*iii*) les solides divisés, matériaux granulaires dont la plupart des particules ont des tailles supérieures à 3 mm (Brown et Richards, 1970). Toutefois, dans ce manuscrit, nous emploierons aussi bien les termes "poudres" et "milieux granulaires" pour désigner des assemblées de grains dont la taille est comprise entre 10 et 3000  $\mu\text{m}$ .

Au niveau industriel, de nombreux secteurs manipulent des milieux granulaires : bâtiment et génie civil (ballasts, béton, remblais, bitume, *etc.*), industries chimiques (combustibles et catalyseurs), pharmaceutiques (gélules, comprimés, ingrédients, *etc.*) et agroalimentaires (sucre, céréales, lait, café, aliments pour animaux, *etc.*), activités minières, *etc.* Les problèmes liés au transport, stockage, mélange, séparation, transformation et conditionnement de ces matériaux se posent aux industries qui ont développé des procédés astucieux pour y répondre (en partie) mais très souvent de façon empirique. De nombreuses problématiques, souvent liées aux propriétés propres à la matière en grains, restent à résoudre.

### II.1.2. Les poudres alimentaires

Les poudres alimentaires représentent une part importante des produits alimentaires disponibles en industrie agro-alimentaire : des matières premières et ingrédients (farines, épices, *etc.*) jusqu'aux produits finis (poudre de lait, café instantané, *etc.*) (Barbosa-Canovas *et al.*, 2005). Les poudres alimentaires se distinguent non seulement par leur composition et leur microstructure, mais aussi par leur distribution de taille, leurs propriétés chimiques et physiques, et leur fonctionnalité.

Les deux principales spécificités des poudres alimentaires résultent de leur origine biologique et du fait qu'elles sont destinées à être consommées par les humains (et les animaux). La principale raison à l'origine de la production de poudre est simplement de prolonger la durée de vie du produit en réduisant sa teneur en eau. La fonction majeure de la forme « poudre » est de maintenir la stabilité des fonctionnalités jusqu'à l'utilisation (souvent par ajout d'eau). La plupart des poudres alimentaires ne sont pas directement consommées en l'état. Elles sont généralement mélangées à de l'eau (*e.g.* hydratation de la semoule de blé dur pour la fabrication de pâtes) et peuvent subir d'autres traitements technologiques avant d'être consommées. Pour certains procédés alimentaires, le produit est maintenu sous forme de poudres tout au long des étapes de fabrication, au cours desquelles sont appliqués des traitements hydriques, mécaniques et thermiques (*e.g.* fabrication du couscous).

Certains problèmes relatifs aux poudres alimentaires sont très importants à l'échelle industrielle. Ils incluent la capacité à manipuler et à transporter les poudres, le vieillissement, l'émission de poussières nocives, les risques d'explosion, les problèmes allergiques, la création de propriétés souhaitées et l'aptitude des poudres à être dissoutes si besoin. La plupart de ces enjeux sont communs à l'ensemble des poudres (alimentaires ou non). L'industrie des poudres alimentaires doit encore s'enrichir de l'expérience et du savoir-faire des autres industries utilisatrices des poudres. Même si le degré de généralité reste encore à définir, il est clair qu'aujourd'hui s'élabore progressivement une science des poudres et milieux granulaires, qui à terme devrait permettre l'extension de la science des fluides complexes à ces systèmes.

Le fort potentiel des poudres alimentaires repose sur leur réactivité lorsqu'elles sont soumises à des contraintes thermiques et/ou hydriques. Les poudres alimentaires sont des matériaux complexes de par leur origine agricole qui confère une grande diversité et une importante variabilité à leur comportement et à leurs propriétés (physique, chimique et de structure) (Aguilera, 2005; Ubbink *et al.*, 2008). Les caractéristiques des particules jouent un rôle central dans les mécanismes impliqués pendant les étapes de production et leur utilisation. Parce qu'ils impliquent des systèmes dissipatifs et des phénomènes de changement de phases, les procédés utilisés dans les industries sont très consommateurs en énergie.

Depuis les années 80, les industriels, les fournisseurs d'équipements et les scientifiques sont devenus conscients de la pertinence d'une approche globale (de type ingénierie des poudres) pour répondre aux enjeux de l'élaboration et de l'utilisation des poudres (Fitzpatrick et Ahrné, 2004; Barbosa-

Canovas *et al.*, 2005; Palzer, 2009b; Sun *et al.*, 2009; Cuq *et al.*, 2011). Depuis peu, l'étude des poudres alimentaires a rejoint le champ des problématiques de la matière molle et de la matière en grains. Malgré tout, les poudres alimentaires restent encore peu connues, avec des procédés et des fonctionnalités à optimiser.

### **II.1.3. Définitions et intérêts de l'agglomération des poudres en général, y compris des poudres alimentaires**

L'agglomération, aussi appelée granulation, est définie selon Ennis et Litster (1997) comme le procédé au cours duquel des particules primaires d'un matériau pulvérulent sont assemblées pour former des grains ou des agglomérats plus gros, dans lesquels la particule originale peut encore être distinguée. Les méthodes d'agglomération peuvent être classées en deux catégories selon que le procédé est réalisé à sec (par technologies d'extrusion, de pressage, *etc.*) ou par voie humide, en présence d'un liant de granulation (Litster et Ennis, 2004). La granulation à sec est notamment préférée quand le produit est sensible à l'humidité. Cette technique peut être conduite par application d'une pression sur des particules fortement cohésives comme des colloïdes ou des poudres fines. L'intérêt est d'éviter l'étape de séchage souvent simultanée ou consécutive à l'étape d'agglomération par voie humide. Dans le mode d'agglomération par voie humide, le mouillage des particules solides est réalisé lors de leur agitation dans un lit d'air fluidisé, un mélangeur à faible ou fort taux de cisaillement, ou d'autres équipements similaires. Le liant de granulation est dispersé par contact et transfert dans un champ de cisaillement créé mécaniquement ou pneumatiquement (Hapgood, 2000). Des liaisons inter-particulaires se forment par la combinaison de forces capillaires et visqueuses jusqu'à ce qu'un lien plus durable se crée par séchage, ou par réaction chimique avec le substrat solide (Iveson *et al.*, 2001; Brauman *et al.*, 2007). L'apparition de produits agglomérés à plus forte valeur ajoutée pour de nombreux domaines industriels (pharmaceutique, alimentaire, chimique, *etc.*) a fait de l'agglomération un enjeu technologique majeur et a renforcé l'intérêt d'une meilleure maîtrise de ce procédé. Les grains ou agglomérats doivent répondre aux besoins des consommateurs et donc posséder des propriétés fonctionnelles et d'usage. L'agglomération permet d'améliorer l'écoulement, de réduire les poussières (et donc de minimiser les pertes), les risques d'explosion et les risques d'atteinte des personnels par inhalation de fines particules, d'améliorer le stockage (prévient la prise en masse et réduit le volume de stockage), d'améliorer la qualité du mélange par l'atténuation des risques de ségrégation, l'apparence du produit, le contrôle de sa dispersion, la solubilité, et la libération contrôlée de principes actifs, *etc* (Iveson *et al.*, 2001).

L'enjeu de la maîtrise de l'agglomération est fortement économique puisque tous les secteurs pourvoyeurs de matière agglomérée sont extrêmement concurrentiels. Il s'agit des industries minérales, agroalimentaires, pharmaceutiques et chimiques où 60% des matières premières sont manipulées sous forme de particules (Rondet, 2008). La valeur annuelle des produits agglomérés est estimée à 1 milliard de dollars rien qu'en ce qui concerne les Etats-Unis (Ennis et Litster, 1997). L'enjeu final des études scientifiques et techniques sur la granulation repose sur l'aptitude à pouvoir conduire le procédé d'un état d'équilibre (particules natives) à un autre (agglomérats répondant aux critères du cahier des charges) en un minimum de temps et en consommant le moins d'énergie et le moins de matière première possible (Wang *et al.*, 2006).

Malgré sa large utilisation, son importance économique et le fort intérêt des chercheurs pour l'agglomération (surtout depuis ces vingt dernières années), ce procédé souffre encore de l'absence d'une méthodologie formelle pour la réalisation des opérations de mouillage - malaxage.

#### **II.1.4. Technologies d'agglomération du couscous**

L'industrie du blé est au coeur de la consommation alimentaire humaine, dont les produits traditionnels à base de blé comme le pain, les pâtes, les nouilles asiatiques ou le couscous, représentent une part importante. De nombreux investissements scientifiques et techniques ont permis d'améliorer les caractéristiques des matières premières et des équipements, la conduite des procédés et les qualités du produit fini. Toutefois, il n'est pas encore possible de maîtriser la forte réactivité des particules à base de blé (*i.e.* farine, semoule, couscous). Par exemple, la production de couscous est encore basée sur un relatif "empirisme" dans le design et le management des usines de production ; ce qui conduit à restreindre le potentiel d'innovation.

Le couscous est un produit alimentaire très ancien, inventé il y a environ 3 000 ans par les Berbères en Afrique du Nord (Abecassis *et al.*, 2012). Aujourd'hui, le couscous est consommé en Afrique du Nord et Centrale, en Europe et aux Etats-Unis. Les français sont les premiers consommateurs de couscous industriel avec environ deux tiers de la production industrielle mondiale. Le Codex Alimentarius (Codex Standard 202-1995) définit le couscous comme étant le produit préparé à partir de semoule de blé dur (*Triticum durum*) fine et grosse, qui est agglomérée par addition d'eau potable et subit ensuite des traitements physiques et thermiques. Le couscous est un aliment de base de l'alimentation française, qui rentre dans la composition de différents plats, du traditionnel couscous aux salades de taboulé. La simplicité de préparation du

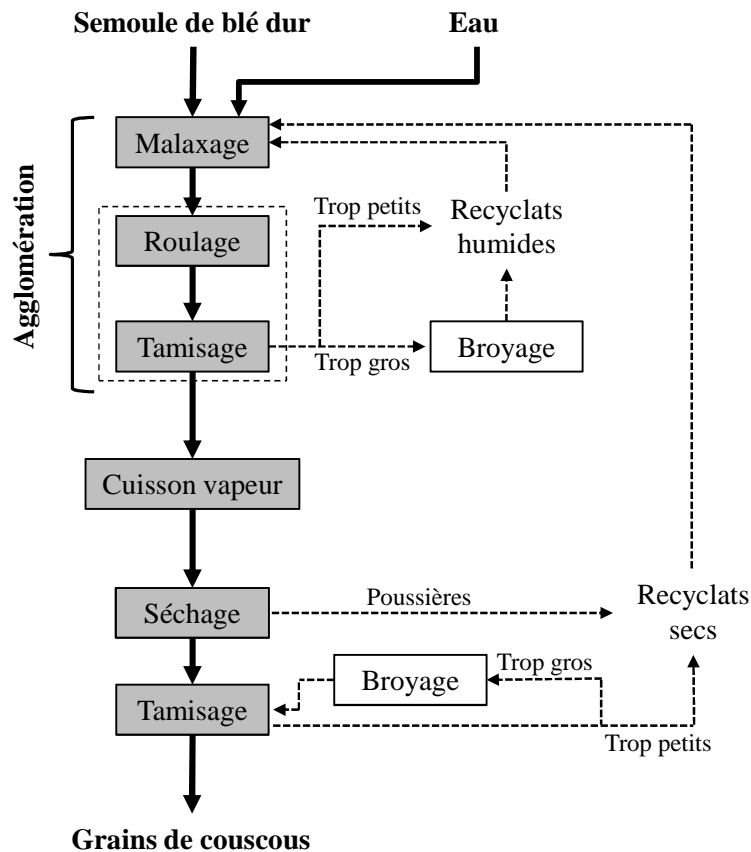
couscous, sa haute valeur nutritionnelle et son faible prix en font un produit très populaire (Abecassis *et al.*, 2012).

L'industrie du couscous est localisée dans les pays méditerranéens avec peu de fabricants industriels et une forte compétition du couscous artisanal préparé par malaxage de la semoule à la main en présence d'eau dans de larges récipients jusqu'à ce que la teneur en eau souhaitée soit atteinte (Kaup et Walker, 1986). Le lit de grains est ensuite frictionné entre la paume des mains pour former des grains sphériques, les agglomérats (Figure II.1). Ces agglomérats sont mis en forme par passage à travers des tamis qui entraînent aussi une diminution de leur taille. Les grains obtenus sont ensuite pré-cuits à la vapeur puis séchés au soleil jusqu'à ce que la teneur en eau atteigne 13% (base sèche).



**Figure II.1.** Fabrication de couscous artisanal (adapté de Abecassis *et al.*, 2012).

La fabrication industrielle de couscous a débuté en 1953 en Afrique du Nord et la première ligne industrielle de couscous a été mise en place en Tunisie, à Sfax, en 1979 (Seiler, 1982). Le design des équipements industriels pour la production de couscous est basé sur les mêmes techniques que celles utilisées de façon artisanale (Kaup et Walker, 1986; Fabriani, 1988). Le procédé de fabrication industrielle du couscous est présenté à la figure II.2. Il comprend trois étapes majeures.



**Figure II.2.** Schéma de fabrication industrielle du couscous (adapté de Abecassis *et al.*, 2012).

Agglomération humide – La semoule de blé dur est mise en contact avec de l'eau en présence d'énergie mécanique dans un premier équipement de **malaxage**, afin de promouvoir l'agglomération humide et de former les agglomérats. Cette opération est souvent conduite en mélangeur horizontal à pales plates et l'apport d'eau se fait par versement en petits filets liquides à proximité des parois du mélangeur. La teneur en eau ajoutée à la semoule doit être comprise entre deux limites : une limite basse en-deçà de laquelle la teneur en eau sera trop faible pour permettre une totale gélatinisation de l'amidon à la cuisson, et une limite haute (*i.e.* la limite de transition agglomérats-pâte) au-delà de laquelle il y a formation d'une pâte continue. La teneur en eau nécessaire à une "bonne" agglomération est d'environ 34% base sèche (Méot, 2006). Les agglomérats hydratés subissent ensuite une étape de **roulage** qui confère aux particules une forme sphérique. Deux techniques de roulage existent et renvoient à l'utilisation soit d'un plansichter (succession verticale de tamis vibrants), soit d'un tambour rotatif. Dans les deux cas, les grains de couscous humides sont **tamisés**, c'est-à-dire séparés en fonction de leur taille pour ne retenir que la fraction correspondant au calibre commercial. Guezlane (1993) a indiqué que le taux d'hydratation devait être ajusté en fonction des conditions de roulage. Un taux d'hydratation



légèrement supérieur est requis pour le tambour rotatif par rapport au plansichter. De façon générale, les grains de couscous formés par roulage en tambour rotatif sont plus sphériques et denses que ceux obtenus en plansichter. Guezlane (1993) précise aussi que le choix de la technique de roulage peut influencer le rendement au tamisage. A l'échelle laboratoire, l'utilisation d'un plansichter semble favoriser une plus faible proportion de grains trop gros. L'étape de roulage est très importante car elle contrôle l'efficacité du procédé entier. Elle ne doit pas générer trop de produits à recycler.

Cuisson vapeur – Ce traitement hydro-thermique consiste à mettre les grains de couscous humides en présence de vapeur dans le but de gélatiser l'amidon afin de rendre le produit digestible et de lui conférer sa capacité de gonflement lors de son utilisation finale. La cuisson contribue également à renforcer la cohésion interne des agglomérats et leur résistance mécanique.

Séchage – L'objectif du séchage est d'augmenter la durée de vie du produit en le stabilisant à une teneur en eau qui assure une bonne conservation des propriétés organoleptiques et microbiologiques. Une dernière étape de **tamisage** a lieu afin de ne garder que les produits dont la taille répond au cahier des charges. Les grains de couscous secs sont ainsi classés en fonction de leur taille : boules ( $\geq 2,5$  mm), gros couscous (2 – 2,5 mm), couscous moyen (1 – 2 mm), couscous fin (0,65 – 1 mm) et poudres fines ( $\leq 0,65$  mm) (Hébrard, 2002; Méot, 2006). Le couscous fin et le couscous moyen sont commercialisés. Les particules trop fines sont directement recyclées en début de ligne de production alors que les boules et le gros couscous sont broyés avant d'être tamisés à nouveau. A noter que les étapes de tamisages à la fin de l'opération d'agglomération humide et de l'opération de séchage sont à l'origine de flux de matière à recycler.

Parmi les trois étapes du procédé de fabrication du couscous, l'agglomération de la semoule est l'étape critique qui contrôle la taille et la forme des particules (Hébrard, 2002). Les agglomérats formés sont hétérogènes en taille. Le taux de particules, qui ne sont pas suffisamment agglomérées, reste élevé à l'échelle industrielle. Les produits recyclés à l'issue de l'étape d'agglomération contribuent à la forte hétérogénéité des propriétés physico-chimiques (teneur en eau, état de structuration, *etc.*) et à la polydispersité de taille du mélange à agglomérer (*i.e.* semoule et produits recyclés). Les différences de propriétés entre les produits recyclés et la semoule s'ajoutent aux difficultés qu'ont les opérateurs à maîtriser la première étape

d'agglomération. Il est par exemple nécessaire d'ajuster la teneur en eau du mélange en fonction du pourcentage de produits recyclés en début de ligne.

La conduite du procédé d'agglomération est encore fortement basée sur l'empirisme, l'expertise technologique et les savoir-faire des opérateurs. Peu de travaux scientifiques et techniques (moins de vingt publications et brevets sont disponibles) discutent du procédé de fabrication du couscous (*e.g.* Debbouz *et al.*, 1994; Debbouz et Donnelly, 1996; Hébrard, 2002 ; Saad *et al.*, 2011; Abecassis *et al.*, 2012). A l'échelle industrielle, les enjeux se situent au niveau de la réduction du taux de recyclage, qui peut atteindre jusqu'à trois fois le flux initial de semoule (Abecassis *et al.*, 2012). Le fort recyclage conduit à une surconsommation énergétique qui sert (i) à produire du couscous non conforme aux critères de qualité exigés, (ii) à casser les gros grains de couscous et (iii) à transporter les produits recyclés en début de ligne de production. Un gain considérable en énergie pourrait donc être atteint si le procédé d'agglomération humide était mieux compris et mieux maîtrisé. Hébrard (2002) a étudié l'agglomération humide de la semoule en investiguant plus particulièrement l'influence des caractéristiques intrinsèques des produits recyclés sur leurs propriétés d'hydratation et leur aptitude à l'agglomération. L'impact des paramètres de l'agglomération (*e.g.* taux d'hydratation, modes d'apport d'eau, taux de recyclage, *etc.*) sur les caractéristiques (taille) des agglomérats a été étudié à l'échelle pilote. De même, Saad (2011) a récemment mené une étude à l'échelle pilote dont l'objectif était de proposer un protocole expérimental permettant de produire du couscous à l'échelle pilote et d'estimer l'impact des conditions (taille des particules de semoule et taux d'hydratation) d'agglomération humide pour 35% d'hydratation (base sèche) sur le rendement de l'agglomération et la qualité finale du couscous (couleur, taille, aptitude au gonflement, *etc.*). Ils ont montré que la production de couscous à l'échelle pilote présente un faible rendement par rapport au couscous commercial. De plus, la modification des conditions d'agglomération a un impact sur le rendement d'agglomération et également sur les caractéristiques du couscous.

## **II.2. Mécanismes d'agglomération humide : approches théoriques**

### **II.2.1. Caractérisation des particules**

Cette partie présente les caractéristiques des particules, qui sont traditionnellement étudiées et dont certaines seront plus particulièrement utilisées dans la partie expérimentale de ce travail. Les propriétés comportementales qui reflètent à l'échelle macroscopique les interactions existantes au sein du milieu granulaire ne seront pas détaillées ici.

### II.2.1.1. Distribution granulométrique

Pour une poudre, la taille est sûrement le paramètre le plus recherché car elle a un lien direct avec la surface spécifique et le nombre de particules par unité de volume. La caractérisation de la taille d'une particule est d'autant plus aisée que la particule présente une forme simple (sphère ou cube). Une seule grandeur suffit alors : respectivement, le diamètre ou la longueur du côté. La définition d'une taille caractéristique se complique dès lors que le nombre de particules ayant une taille non identique augmente et que la forme des particules se complexifie. Les poudres sont généralement composées de particules solides présentant une hétérogénéité de taille et de forme. Ainsi, dès que la forme s'éloigne d'une sphère, le nombre de paramètres nécessaires à la description morpho-granulométrique augmente. La détermination de la taille de particules aux formes irrégulières nécessite de définir une grandeur pertinente qui fait référence à une taille caractéristique liée à une méthode de mesure. La pratique courante consiste à représenter la taille d'une particule par son diamètre équivalent, qui correspond au diamètre qu'aurait une sphère hypothétique, appelée sphère équivalente, ayant soit une même caractéristique (surface, volume, surface spécifique, *etc.*), soit un même comportement (à la sédimentation par exemple) que la particule d'intérêt (Saleh et Guigon, 2009a). Le tableau II.1 présente les diamètres équivalents les plus couramment employés.

L'analyse granulométrique d'une poudre consiste à déterminer la taille d'un ensemble significatif et représentatif de particules, puis à représenter les résultats obtenus sous forme d'une distribution granulométrique. En effet, le diamètre moyen ne suffit pas toujours pour caractériser le mélange granulaire. Il est trop réducteur de s'affranchir de la connaissance de la distribution de taille car l'arrangement granulaire et le nombre de contacts entre particules dépendent de cette distribution. Les particules sont réparties en classes granulométriques selon leur taille et la fraction de particules de chaque classe est affectée à la classe correspondante. La distribution de taille peut être représentée en fréquence ou en cumulé, sous la forme d'un tableau, d'un histogramme ou par des lois de distribution. Selon l'étendue du domaine de taille et la technique utilisée, le découpage en classes granulométriques peut être effectué à pas constants (intervalles réguliers) ou à pas variables. Cela dépend de la finesse du traitement statistique que l'on souhaite. Enfin, les principales techniques utilisées pour déterminer la distribution granulométrique d'une poudre sont le tamisage, l'analyse d'images, la diffraction et la diffusion d'un faisceau laser (Saleh et Guigon, 2009a).

**Tableau II.1.** Diamètres équivalents.

Appellation	Définition	Formule
Diamètre volume équivalent	Diamètre d'une sphère ayant le même volume que la particule	$d_v = \left(\frac{6V_{grain}}{\pi}\right)^{1/3}$
Diamètre surface équivalent	Diamètre d'une sphère ayant la même surface que la particule	$d_s = \left(\frac{S_{grain}}{\pi}\right)^{1/2}$
Diamètre surface-volume équivalent	Diamètre d'une sphère ayant le même rapport surface/volume que la particule	$d_{sv} = \frac{d_v^3}{d_s^2}$
Diamètre de tamisage	Ouverture carrée minimale du tamis à travers laquelle la particule peut passer	$d_t$
Diamètre périmétrique	Diamètre d'un cercle ayant le même périmètre que la projection du contour de la particule	$d_{Pr} = \frac{Pr_{grain}}{\pi}$

A partir de la distribution granulométrique, il est possible de déduire les diamètres moyens et la dispersion autour de la valeur moyenne. Les diamètres moyens les plus courants sont (i) les  $d_{10}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{90}$ , qui correspondent respectivement à 10, 50 et 90% de la fréquence cumulée en nombre, masse ou volume, (ii) le  $d_{4,3}$  qui est le diamètre moyen en volume, et (iii) le  $d_{3,2}$  (diamètre de Sauter) qui correspond au diamètre moyen en volume et en surface, et est représentatif de la surface spécifique des particules.

### II.2.1.2. Forme des particules

Après la taille, la morphologie des particules est le facteur le plus important car elle agit sur la porosité inter-granulaire, les forces inter-particulaires et les phénomènes de friction. La notion de forme est souvent exprimée par le facteur de forme, un nombre sans dimension qui peut être défini par rapport à la surface ou par rapport au volume (Saleh et Guigon, 2009a). Le facteur de forme caractérise l'écart d'une particule à une particule de référence. Ces facteurs de forme sont nombreux et varient selon la forme de référence choisie. Dans le cas des diamètres de sphères équivalentes, on parle de coefficients de sphéricité. Plusieurs définitions existent (Waldell, 1935) :

$$\psi_V = \frac{\text{surface de la sphère de même volume que le grain}}{\text{surface du grain}} \quad (\text{Eq.II.1})$$

$$\psi_A = \frac{\text{volume de la sphère de la même surface que le grain}}{\text{volume du grain}} \quad (\text{Eq.II.2})$$

$$\psi_a = \frac{\text{volume de la sphère de la même surface spécifique que le grain}}{\text{volume du grain}} \quad (\text{Eq.II.3})$$

### II.2.1.3. Rugosité des particules

La rugosité représente l'ensemble des irrégularités de la surface d'une particule. Le microscope à force atomique (AFM) est utilisé pour établir la topographie de la surface des particules à une échelle très fine (de l'ordre de  $\mu\text{m}^2$ ) et pour en caractériser la rugosité (Saleh et Guigon, 2009a). La rugosité influence la distance minimale de contact entre deux particules et modifie l'aire de contact et donc, les forces cohésives (Bocquet, 2002).

### II.2.1.4. Masses volumiques d'une poudre

La masse volumique vraie ( $\rho_s^*$ ) d'une poudre est égale à la masse sèche des particules ( $m_s$ ) divisée par le volume total de solide ( $V_s$ ) (toute forme de porosité est exclue de ce volume) (Eq.II.4). Elle peut être déterminée à partir d'un essai au pycnomètre à hélium.

$$\rho_s^* = \frac{m_s}{V_s} \quad (\text{Eq.II.4})$$

La masse volumique apparente ( $\rho_s$ ) est égale au rapport de la masse sèche des particules ( $m_s$ ) sur le volume total de la poudre ( $V_T$ ) (Eq.II.5). Ce volume comprend le volume de solide ( $V_s$ ), l'espace entre les grains ( $V_p$ ) et une éventuelle porosité intra-particulaire.

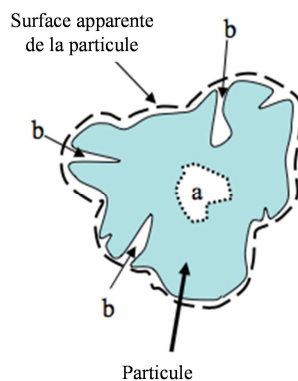
$$\rho_s = \frac{m_s}{V_T} = \frac{m_s}{V_s + V_p} \quad (\text{Eq.II.5})$$

Elle peut être « tassée » si le récipient contenant la poudre a subi une série de vibrations ou de chocs verticaux avant la mesure du volume de particules, « aérée » juste après avoir versé la poudre dans le récipient, ou correspondre à la moyenne des masses volumiques tassées et aérées. Elle est bornée par (i) la masse volumique apparente minimale qui correspond à l'arrangement minimum entre grains pour maintenir un réseau de contacts connexe et dont la valeur est donnée par la limite de fluidisation du lit de poudre, et (ii) la masse volumique apparente maximale qui rend compte de l'encombrement maximum des grains (le système granulaire est alors dans une configuration bloquée, dite de jamming).

### II.2.1.5. Porosité

Le volume d'un matériau correspond à la somme du volume de solide et du volume de vide qu'il contient. La porosité se définit comme le rapport entre le volume des espaces vides (*i.e.* les

pores) et le volume total du matériau. Dans le cas d'un matériau pulvérulent, il est nécessaire de distinguer deux types de porosité : la **porosité intra-particulaire** qui rend compte de l'espace vide dans les particules ou agglomérats et la **porosité inter-particulaire** qui rend compte de l'espace vide entre les particules ou les agglomérats. La porosité intra-particulaire dépend de la nature chimique mais aussi des différents traitements (thermique, mécanique, chimique, *etc.*) que la particule ou l'agglomérat subit lors de sa production alors que la porosité inter-particulaire dépend du mode de préparation de l'ensemble des particules (éboulement, chute, tassement, vibration, compression, *etc.*), de la forme, la distribution de taille et de l'aspect de surface des particules. La porosité est dite continue si les pores sont interconnectés entre eux, ouverte si les pores débouchent à l'extérieur, et fermée si ce n'est pas le cas (Figure II.3). Nous détaillerons plus précisément dans la suite du manuscrit l'expression mathématique de la porosité. Indiquons aussi, que l'on travaillera préférentiellement avec la compacité, grandeur complémentaire de la porosité et qui se réfère plus directement à la phase solide.

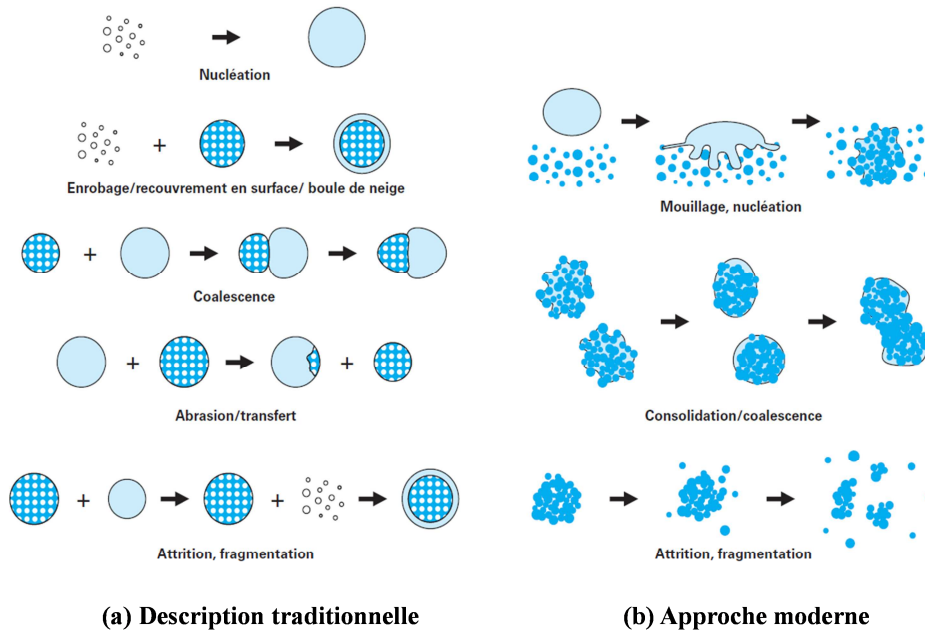


**Figure II.3.** Porosités inter- et intra-particulaires (a) pores fermés et (b) pores ouverts (adapté de Melcion et Ilari, 2003).

### II.2.2. Approche traditionnelle de l'agglomération : les principaux mécanismes

L'agglomération humide est un procédé complexe qui met en jeu un grand nombre de paramètres de nature mécanique et physico-chimique, si bien que de nombreux auteurs ont d'abord cherché à décrire ce procédé de façon qualitative avant de le modéliser. Ces auteurs se sont pour la plupart intéressés à l'agglomération en mélangeur à fort taux de cisaillement, mais de nombreuses autres études concernent aussi les mélangeurs à faible taux de cisaillement, les tambours rotatifs, et les lits fluidisés. Une première description du procédé d'agglomération a été

proposée par Sastry et Fuerstenau (1973) et fait intervenir cinq mécanismes simultanés présentés à la figure II.4a.



**Figure II.4.** Mécanismes de granulation (a) description traditionnelle, (b) approche moderne (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).

Les mécanismes décrits peuvent être considérés comme une alternance de phénomènes de coalescence et de rupture dont le résultat dépend de la taille des agglomérats et de la disponibilité en liquide à leur surface. Les cinq phases sont :

- (1) La nucléation qui résulte du rassemblement de particules élémentaires humides par attraction capillaire pour former des premières structures : les « nuclei ».
- (2) Le recouvrement en surface par effet boule de neige : les agglomérats déjà formés jouent le rôle d'amorces sur lesquelles sont collectées les particules élémentaires mouillées ou les nuclei. Ce mécanisme produit une augmentation continue de la taille des grains, une diminution du nombre de particules fines sans augmentation du nombre de grains.
- (3) La coalescence qui conduit à la formation de structures de taille importante.
- (4) Le transfert par abrasion lors d'un choc ou d'une collision sans aboutir à la cassure du grain.
- (5) Le transfert par fragmentation-enrobage au cours duquel il y a formation de fragments redistribués sur d'autres grains.

Cette description amène à considérer les conditions d'agitation de la poudre comme l'élément déterminant dans la constitution des grains. En effet, selon que ces conditions favorisent l'adhésion ou la cassure des grains, les phases de nucléation/boule de neige/coalescence ou

d'abrasion/transfert/atriton seront respectivement favorisées (Smirani, 2008). Selon les conditions d'agitation et de mélange, les grains devraient posséder des tailles et structures différentes. Toutefois, cette description s'est révélée insuffisante pour la maîtrise du procédé d'agglomération (Ennis et Litster, 1997). En effet, un inconvénient est le rôle insuffisant accordé au liquide et à sa distribution au sein du milieu granulaire, alors même que ce sont les interactions physico-chimiques qui sont à l'origine de la formation des granulés (Saleh et Guigon, 2009b).

### II.2.3. Approche plus récente selon trois étapes

Les différentes phases de l'agglomération sont déterminées par un rapport de force mettant en jeu les forces attractives d'une part, qui tendent à assurer la cohésion des agglomérats, et les forces d'inertie d'autre part, qui tendent à déstructurer l'agglomérat (Smirani, 2008). Une approche plus récente a été proposée afin de mieux considérer la qualité de dispersion de la phase liquide et le rôle joué par le liquide de mouillage dans l'attraction des particules élémentaires et des agglomérats entre eux.

Trois mécanismes principaux sont distingués (Tardos *et al.*, 1997; Ennis et Litster, 1997; Mort et Tardos, 1999; Iveson *et al.*, 2001) : (i) le **mouillage** et la **nucléation** durant lesquels le liquide est mis en contact avec la poudre sèche et distribué dans le lit, (ii) la **consolidation** et la **croissance** au cours desquelles les collisions entre deux agglomérats, entre les agglomérats et la poudre sèche ou entre les agglomérats et l'équipement entraînent leur compaction et leur croissance, et enfin (iii) la **rupture** et **l'usure** au cours desquelles les agglomérats mouillés ou secs se rompent sous l'effet des contraintes mécaniques induites par l'agitation ou suite aux chocs avec d'autres agglomérats (Figure II.4b).

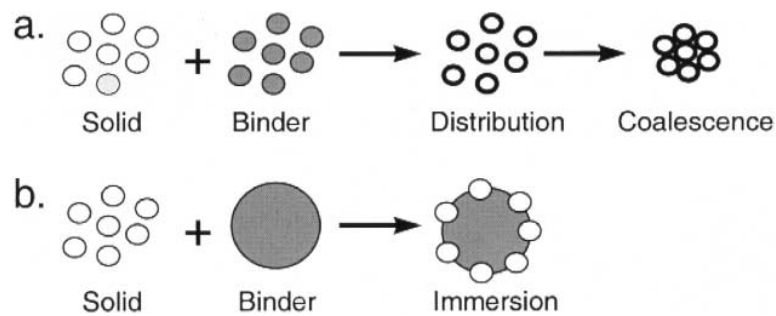
#### II.2.3.1. Mouillage et nucléation

Cette opération consiste à apporter le liquide au contact de la poudre sèche et à la distribuer de façon homogène au sein de cette poudre. Les premières structures (*i.e.* les nuclei) ne sont formées que si les conditions opératoires et l'affinité entre les particules et le liant le permettent. Ainsi, deux étapes sont importantes : la distribution du liquide de mouillage et la formation des nuclei.



### Le mécanisme de nucléation

Selon la taille relative des gouttes par rapport à celle des particules élémentaires, deux mécanismes de nucléation sont proposés (Schaefer et Mathiesen, 1996; Scott *et al.*, 2000; Schaefer, 2001; Abberger *et al.*, 2002; Knight, 2004; Vilhelmsen et Schaefer, 2005) (Figure II.5). Lorsque la taille des gouttes est plus petite que la taille des particules, la nucléation se ferait de façon privilégiée par distribution. Les nuclei sont alors formés par coalescence suite à la collision des particules mouillées entre elles, et possèdent une structure poreuse contenant de l'air emprisonné (Figure II.5a). Lorsque la taille des gouttes est grande par rapport à celle des particules, la nucléation se ferait préférentiellement par immersion. Les nuclei alors formés ont leurs pores saturés de liquide (Figure II.5b). Enfin, lorsque la taille des gouttes est identique à celle des particules, les phénomènes de distribution et d'immersion sont susceptibles d'intervenir de façon concomitante et équilibrée.



**Figure II.5.** Les différents mécanismes de nucléation : (a) mécanismes de distribution, (b) mécanismes d'immersion (Iveson *et al.*, 2001 adapté de Schaefer et Mathiesen, 1996).

Les travaux d'Abberger *et al.* (2002) montrent bien l'influence du rapport entre la taille des gouttes et la taille des particules élémentaires sur les mécanismes d'agglomération. Dans le cadre d'essais où la taille des particules est toujours supérieure à celle des gouttes, une réduction de la taille des gouttes ne modifie pas le diamètre final des agglomérats obtenus. En effet, ils sont toujours formés par dispersion du liant à la surface des particules. En revanche, lorsque la taille des particules est toujours inférieure à celle des gouttes, la variation de la taille des gouttes est un paramètre majeur puisqu'un nucleus est supposé être créé à partir d'une goutte (Gluba, 2003).

### La distribution du liquide de mouillage

Cette distribution a lieu à deux échelles : (i) à l'**échelle macroscopique** où la distribution du liant est principalement fonction des paramètres procédé qui déterminent l'homogénéité et la finesse de la distribution du liquide, et (ii) à l'**échelle microscopique** où la distribution du liant

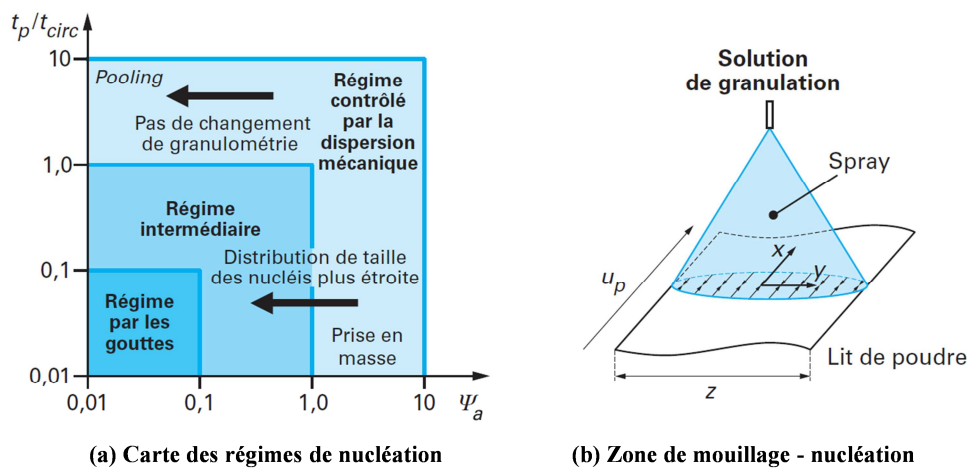
se fait par capillarité suite aux interactions physico-chimiques entre les phases en contact (Saleh et Guigon, 2009b). Ainsi, on peut distinguer deux modes de distribution du liant de granulation : le versement et la pulvérisation. Quelle que soit la méthode de distribution du liant, Knight *et al.* (1998), Wauters *et al.* (2002) et Ax *et al.* (2008) ont montré que la distribution du liquide de mouillage évolue d'un état très hétérogène en début d'agglomération à un état relativement homogène en fin de procédé. Il y a toujours une phase, plus ou moins longue, au cours de laquelle la distribution de taille des particules constituant le lit de grains est bimodale (Knight *et al.*, 1998). Une distribution du liquide de mouillage instantanément uniforme est impossible. Un mélange efficace et suffisamment long est nécessaire pour assurer la dispersion du liquide de mouillage. Le temps nécessaire pour atteindre une distribution homogène augmente avec la taille des gouttes de liquide lorsque celui-ci est pulvérisé en gouttelettes (Ax *et al.*, 2008), ou lorsque le liquide est versé en une fois (Knight *et al.*, 1998; Ax *et al.*, 2008). L'hétérogénéité en début d'agglomération se caractérise par un taux de liquide très supérieur dans les agglomérats de grande taille par rapport à ceux de petite taille. Smirani *et al.* (2007) ont en effet montré en mélangeur-granulateur à fort taux de cisaillement que, quel que soit le mode de distribution du liant, la formation d'entités sursaturées est dans un premier temps favorisée au détriment du maintien de particules non agglomérées. Un processus de redistribution du liquide de mouillage à partir des grains de grande taille vers les grains de petite taille peut se mettre en place (Ramaker *et al.*, 1998; Bouwman *et al.*, 2006). Il s'agirait à la fois du liquide de mouillage et de morceaux de grains qui seraient échangés entre particules.

#### Maîtrise de l'étape de nucléation

Les paramètres influents de la nucléation ont longtemps souffert d'un manque de précision dans leur description tant et si bien qu'il était difficile de reproduire les essais dans le cadre d'un changement d'équipement ou d'un transfert d'échelle. Tardos *et al.* (1997) et Watano *et al.* (1997) ont été les premiers à standardiser la description de la zone de nucléation en comparant le débit de distribution du liant, à la taille de la zone de nucléation et au flux de poudre la traversant. L'augmentation de ces deux derniers paramètres réduit la distribution de taille des agglomérats et améliore l'homogénéité de répartition du liant au sein du milieu. Litster *et al.* (2001) ont mis au point une grandeur adimensionnelle afin de maîtriser au mieux les conditions opératoires relatives à la zone de mouillage. Il s'agit du nombre de recouvrement, aussi appelé flux d'atomisation adimensionné, dont l'expression est la suivante (Eq.II.6) :

$$\Psi_a = \frac{3\dot{V}}{2\dot{A}d_d} \quad (\text{Eq.II.6})$$

où  $\dot{V}$  ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) est le débit volumique de la buse de pulvérisation,  $\dot{A}$  ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) est le flux surfacique de poudre traversant la zone de mouillage et  $d_d$  (m) est la taille moyenne des gouttes produites par la buse. Ce critère adimensionnel permet d'évaluer à la fois la qualité de la distribution du liquide juste après le mouillage (Knight, 2004) mais aussi la distribution de taille des nuclei puisque la proportion de gouttes formant directement un nucleus est uniquement fonction de  $\Psi_a$  (Hapgood *et al.*, 2004). Des valeurs faibles de  $\Psi_a$  ( $< 0.1$ ) entraînent une bonne dispersion du liant. Dans ces conditions, une goutte tend à former un nucleus (en régime d'immersion) et la distribution de taille des nuclei est resserrée. Des valeurs élevées de  $\Psi_a$  ( $> 1$ ) correspondent à un débit de distribution du liant supérieure à celui de la poudre et donc à une nucléation plus difficile à contrôler. Toutefois, une valeur faible de  $\Psi_a$  est une condition nécessaire mais non suffisante pour se situer dans le régime de nucléation contrôlée. Il est nécessaire de tenir compte des phénomènes microscopiques résultant des interactions liquide-solide et de la rapidité avec laquelle ces phénomènes se produisent (Saleh et Guigon, 2009b). En fonction du rapport entre le temps de pénétration d'une goutte de liquide ( $t_p$ ) et le temps de circulation de la particule dans la zone de mouillage ( $t_c$ ), Hapgood *et al.* (2003) ont introduit une cartographie des régimes de nucléation (Figure II.6).



**Figure II.6.** Mécanismes de nucléation (a) Diagrammes de régimes de nucléation (Hapgood *et al.*, 2003), (b) Zones de mouillage et nucléation (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).

Trois régimes de nucléation sont identifiés : un régime contrôlé par la goutte, un régime contrôlé par la dispersion mécanique et enfin un régime intermédiaire. Dans le régime contrôlé par la goutte, le liquide pénètre dans le réseau poral entre les particules de la poudre presque instantanément et la distribution de taille des nuclei reflète celle des gouttes. Ces conditions sont

réalisées lorsque le flux de poudre à travers la zone de nucléation est élevé et que le rapport  $t_p/t_c$  est faible (Ax *et al.*, 2008). Un flux de poudre élevé au travers de la zone de mouillage permet une distribution plus uniforme du liant en éloignant les constituants les plus humides et en assurant un approvisionnement constant de poudre fraîche dans cette zone.

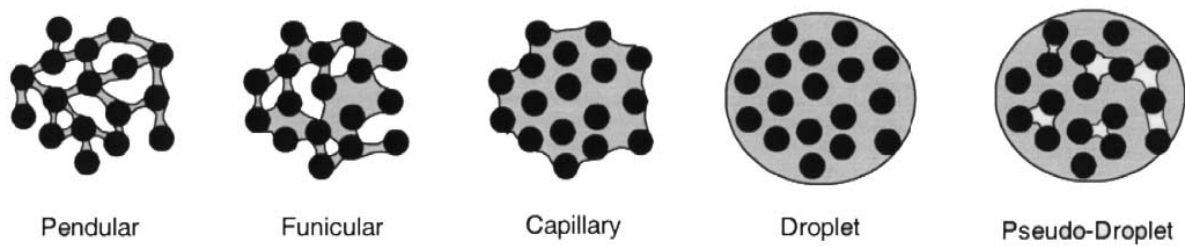
Dans le régime intermédiaire, plus difficile à contrôler, la dynamique de pénétration de la goutte et les forces de cisaillement générant la dispersion ont une importance égale sur la nucléation. La relation entre la distribution de la taille des gouttes et la distribution de taille des nuclei disparaît progressivement jusqu'au régime de dispersion mécanique ( $\Psi_a > 1$ ) où la nucléation et la dispersion du liquide de mouillage interviennent grâce à l'agitation. La méthode choisie pour la distribution du liquide de mouillage n'a alors plus d'effets sur les propriétés des nuclei, caractérisés par une large distribution de taille. Les gouttes, même finement dispersées, ont tendance à coalescer avant d'avoir le temps de pénétrer dans les pores. Cette cartographie présente l'avantage de s'approcher d'une relation fonctionnelle faisant intervenir des variables opératoires directement ajustables (*e.g.* vitesse d'agitation, débit de liquide, angle de pulvérisation du liquide, *etc.*) (Smirani, 2008). Toutefois, de par le manque de données quantitatives, les limites précises entre les différents régimes sont actuellement inconnues.

Afin de pouvoir mieux contrôler la phase de nucléation, Wildeboer *et al.* (2007) ont proposé le développement d'un mélangeur-granulateur au sein duquel les phases de nucléation et de croissance sont physiquement séparées. La zone de nucléation est constituée d'une fine couche de poudre circulant, par convoyage, sous le jet d'un générateur de gouttes monodisperses. La modification de la vitesse de passage de la poudre sous le jet et des caractéristiques de la buse rend possible l'optimisation de la phase de nucléation tant sur le plan de la productivité que sur le plan de la qualité des nuclei formés (taille et répartition granulométrique maîtrisée). Néanmoins, même dans ces conditions optimales, les nuclei formés sont souvent issus de plus d'une goutte à cause de leur coalescence lors de leur mise en contact avec la poudre.

### II.2.3.2. Consolidation et croissance

Au cours de la phase de consolidation et croissance, le processus d'agglomération est dominé par les caractéristiques mécaniques du mélangeur (Ax *et al.*, 2008). A la suite des impacts entre eux ou avec les pales et la paroi du mélangeur, les caractéristiques hydro-texturales des agglomérats évoluent et leur degré de saturation en eau s'accroît. Ce phénomène est amplifié par les ajouts d'eau successifs. L'eau prend ainsi différents états au sein des agglomérats, tels que définis par

Newitt et Conway-Jones (1958) : hygroscopique, pendulaire, funiculaire et capillaire (Figure II.7).



**Figure II.7.** Régimes de mouillage d'un milieu granulaire (Iveson *et al.*, 2001 adapté de Newitt et Conway-Jones, 1958).

### Consolidation et forces inter-particulaires

Lors des impacts, la porosité des agglomérats décroît, entraînant une diminution de leur taille et l'éjection d'air emprisonné ou de liquide à leur surface. Cette étape du processus d'agglomération est nommée « phase d'induction ». L'effet de la consolidation sur la croissance des agglomérats est complexe et dépend des caractéristiques du liant et de la poudre. D'une part, la consolidation entraîne une augmentation de la saturation des pores des agglomérats, augmentant la disponibilité en liquide à leur surface et donc leur aptitude à la coalescence après contact (Holm *et al.*, 1985). D'autre part, elle affecte également les propriétés mécaniques des agglomérats avec une diminution de leurs possibilités de déformation, réduisant ainsi leur aptitude à la coalescence après contact. Ainsi, le rapprochement des particules élémentaires provoqué par la consolidation de l'agglomérat induit une augmentation de la résistance de l'agglomérat (Bika *et al.*, 2001). Cette résistance manifeste l'expression de différents types de forces inter-particulaires (Rumpf, 1962; Schubert, 1975; Scherington et Oliver, 1981; Iveson et Litster, 1998b) :

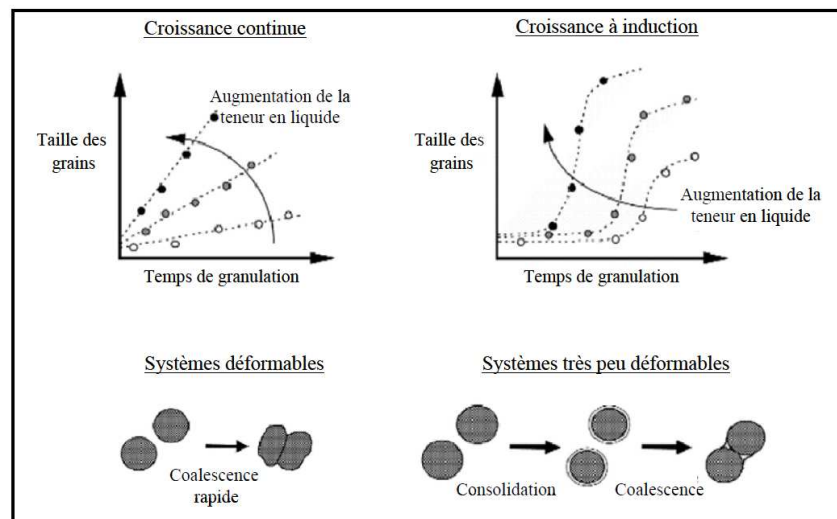
- Les forces de contact et de frottement : la force frictionnelle est une force qui s'oppose au mouvement relatif de deux corps en contact. Cette force prend de l'importance si la forme des particules élémentaires s'éloigne de la sphéricité. On observe dans ce cas une augmentation de la résistance au cisaillement (Schulze, 2008).
- Les forces attractives (électrostatiques, magnétiques, et de Van der Waals) entre particules.
- Les forces visqueuses dont l'intensité est étroitement liée à la nature du liant. Elles ne s'expriment qu'en dynamique lorsque deux particules élémentaires vont entrer en contact et faire se chevaucher le film liquide présent à leur surface.
- Les forces capillaires qui sont les forces prépondérantes au sein d'un milieu granulaire humide insaturé. Elles s'expriment en statique et dépendent de la tension superficielle du liquide et de la

succion générée par le pont capillaire ainsi mis en place. Le rapprochement des particules élémentaires, suite à l'action des forces capillaires qui génèrent une force normale, accentue les forces frictionnelles inter-particulaires. La résistance des agglomérats va ainsi augmenter avec la teneur en eau jusqu'à ce que l'ensemble du réseau poral soit saturé et que les ponts liquides entre particules disparaissent.

### Mécanismes de croissance

La croissance des agglomérats dépend de leur capacité à se déformer, à résister aux collisions et au broyage par la pale et le bol et enfin, de la disponibilité en liquide à leur surface. Deux principaux phénomènes sont susceptibles d'entraîner la croissance des agglomérats. Le **layering** consiste en l'adhésion de particules ou de petits agglomérats à la surface d'un agglomérat de plus grande taille. La **coalescence** correspond à la rencontre de deux entités du même ordre de taille. Deux grands types de croissance peuvent être observés suivant la nature du liant de granulation, les caractéristiques des particules formant les agglomérats et les propriétés mécaniques de ces derniers (Iveson et Litster, 1998a) : les systèmes à **croissance continue** où la taille de l'agglomérat augmente linéairement avec le temps et les systèmes à **croissance après induction** où il existe une période durant laquelle la croissance ne se manifeste que faiblement (Figure II.8). Au cours de la croissance, une collision entre agglomérats ne peut conduire à leur coalescence que si l'énergie cinétique de collision est complètement dissipée lors de l'impact (choc non-élastique). Ce mécanisme peut avoir deux sources : (i) une dissipation visqueuse suite aux déplacements des agglomérats dans la couche liquide et (ii) une déformation plastique des agglomérats au moment de la collision, au point de contact solide-solide. Iveson et Litster (1998a) ont introduit un nombre adimensionnel de déformation des agglomérats qui a permis ensuite d'établir un modèle de croissance basé sur des régimes de coalescence qui prennent en compte les deux phénomènes de dissipation évoqués dans le cas d'agglomérats déformables (Liu *et al.*, 2000). Quant au modèle d'Ennis *et al.* (1991), il s'intéresse à la coalescence d'agglomérats non-déformables. Ces modèles de croissance permettent de prédire la taille maximale accessible aux agglomérats en fin de procédé et l'effet des différentes variables sur leur croissance. Cependant, aucun d'entre eux n'est utilisé industriellement pour contrôler le procédé d'agglomération (Iveson *et al.*, 2001). Ceci est lié à la difficulté de la définition de leurs paramètres, tout particulièrement ceux relatifs à la rhéologie des milieux, à la fréquence ainsi qu'à la vitesse des impacts. Bien que les apports théoriques des différents travaux cités précédemment soient majeurs pour l'amélioration de la compréhension des phénomènes, il est

nécessaire de mettre en place des modèles plus réalistes et conceptuellement plus simples à manipuler.



**Figure II.8.** Mécanismes de croissance (issu de Smirani, 2008, adapté de Iveson et Litster, 1998a)

### II.2.3.3. Rupture et usure

Lors de collisions successives, les agglomérats se fragmentent si les forces de rupture dépassent les force de liaisons des agglomérats. La phase de rupture des agglomérats est une étape importante puisque c'est durant cette période que le liquide, rarement dispersé de manière homogène à l'issue du mouillage, va pouvoir se redistribuer entre les différentes classes de taille d'agglomérats (Knight, 2004). La rupture peut influencer ou contrôler la distribution granulométrique finale (Reynolds *et al.*, 2005), la taille maximale des agglomérats (Schaefer *et al.*, 1990a; Watano *et al.*, 1995; Knight *et al.*, 2000) ainsi que leur résistance (Van der Dries *et al.*, 2003). Les conditions de rupture sont cependant complexes et restent difficiles à prédire quantitativement. Outre le rapport entre les forces conservatrices et les forces dissipatives, l'aptitude des agglomérats à se déformer est aussi un facteur très important à prendre en compte (Saleh et Guigon, 2009b).

### II.2.3.4. Carte de régimes d'agglomération

Iveson et Litster (1998a) ont proposé un diagramme de régimes d'agglomération en fonction de la saturation maximale des pores en liquide liant (Eq.II.7) et de l'étendue de la déformation des agglomérats au cours de l'impact (Eq.II.8).

$$S_{max} = \frac{w\rho_s^*(1-\varepsilon_{min})}{\rho_l^*\varepsilon_{min}} \quad (\text{Eq.II.7})$$

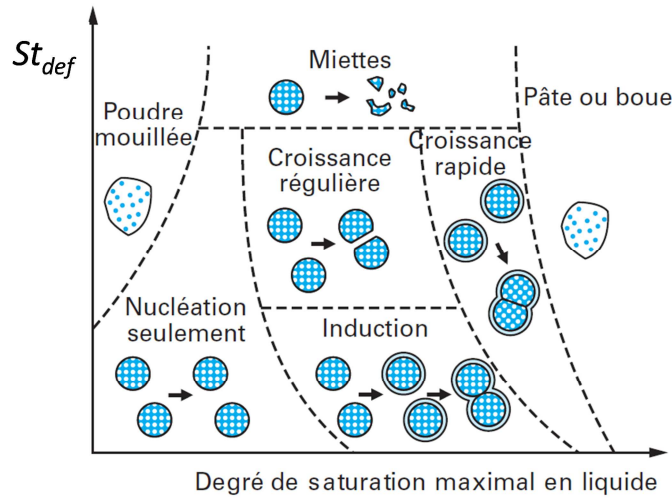
$$St_{def} = \frac{\rho_g U_c^2}{2Y_g} \quad (\text{Eq.II.8})$$

Dans l'équation II.7,  $w$  représente la teneur massique en liquide,  $\rho_s^*$  et  $\rho_l^*$  sont respectivement la densité du solide et du liquide et  $\varepsilon_{min}$  est la porosité minimale des agglomérats pour des conditions opératoires données. Dans l'équation II.8, le nombre de Stokes lié à la déformation,  $St_{def}$ , est le rapport entre l'énergie cinétique due à l'impact et l'énergie absorbée par l'agglomérat suite à sa déformation plastique.  $U_c$  représente la vitesse des collisions au sein du mélangeur-granulateur.  $\rho_g$  et  $Y_g$  représentent respectivement la densité des agglomérats et le seuil de contrainte dynamique. Ces deux dernières grandeurs sont mesurées lorsque l'agglomérat atteint sa porosité minimale  $\varepsilon_{min}$ . Les différents types de régimes de croissance peuvent être représentés en fonction des valeurs de  $S_{max}$  et  $St_{def}$  sur la carte du régime de croissance (Iveson et Litster, 1998a) (Figure II.9). Cette carte permet de représenter le régime de croissance après induction et le régime de croissance continue. Il apparaît également une zone au taux de saturation faible, où seule la nucléation peut avoir lieu. La zone correspondant aux « miettes » renvoie à des agglomérats trop fragiles pour former des structures permanentes. Enfin, pour des teneurs en liant très élevées, la carte du régime de croissance met en évidence une zone de sur-mouillage où le système va se présenter sous la forme d'une pâte. Cette représentation permet de décrire qualitativement la croissance des agglomérats et d'expliquer les effets de différents paramètres sur leur croissance.

Cette approche réclame des données pour délimiter avec précision les différentes zones de croissance. La connaissance préliminaire des valeurs de  $S_{max}$  et  $St_{def}$  fait de cette représentation un outil plus descriptif que prédictif. Cette carte de régime de croissance décrit de manière simplifiée les phénomènes. (i) Le comportement rhéologique des agglomérats n'est décrit que par un modèle de déformations élasto-plastiques alors que le comportement des agglomérats est plutôt visco-élasto-plastique. (ii) La carte de régime de croissance ne prend pas en compte la viscosité du liant comme paramètre indépendant. (iii) Il reste difficile de connaître avec précision la vitesse des impacts au sein du malaxeur. Le caractère discontinu des milieux granulaires



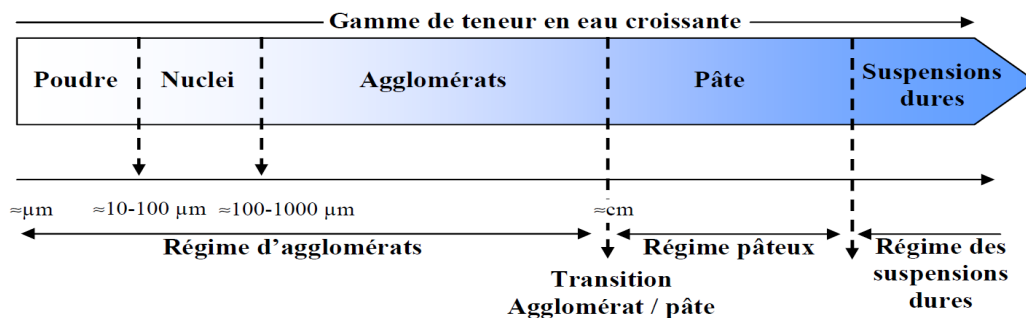
empêche d'utiliser directement les lois de comportement des milieux continus et donc de déterminer les profils de vitesse théoriques dans le mélangeur.



**Figure II.9.** Carte des régimes d'agglomération (issu de Saleh et Guigon, 2009b adapté de Iveson et Litster, 1998a).

#### II.2.4. Approche hydro-texturale

Un apport croissant d'eau dans une poudre initialement sèche se traduit par des changements d'échelle de l'"élément représentatif" qui caractérise la structure de base du système granulaire (Rondet, 2008). Selon la teneur en eau, différentes structures se succèdent (Figure II.10) : la poudre initiale, les nuclei, les agglomérats, la pâte et enfin, pour des teneurs en eau supérieures à la limite de liquidité du produit, les suspensions dures. Les deux derniers régimes sont caractérisés par une réelle continuité du milieu à l'échelle globale.

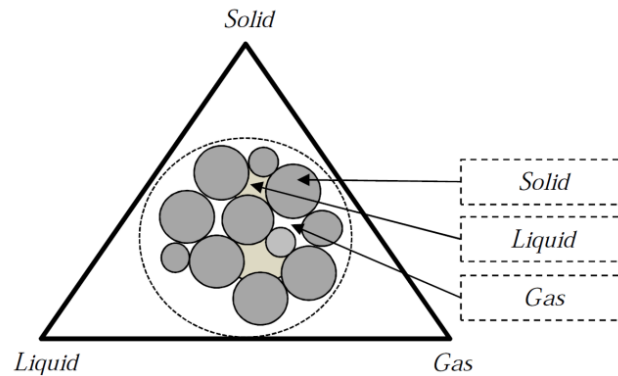


**Figure II.10.** Changement d'échelle du milieu pour une teneur en eau croissante pendant l'opération d'agglomération humide (adapté de Rondet, 2008).

Le procédé d'agglomération humide par mouillage et malaxage d'un milieu granulaire induit des changements qui peuvent être qualitativement et quantitativement étudiés grâce au suivi des

propriétés morpho-granulométriques (*i.e.* distribution de taille et forme) et hydro-texturales (*i.e.* teneur en eau et porosité) des structures présentes (particules natives, nuclei, agglomérats, morceaux de pâte) à deux échelles : à l'échelle d'une entité constitutive (*i.e.* les agglomérats) et à l'échelle du lit. Ruiz *et al.* (2005) ont développé une approche pour décrire les variations de taille, compacité et teneur en eau d'un milieu granulaire humide au cours de l'agglomération en mélangeur à faible cisaillement. Cette approche est basée sur la construction du diagramme hydro-textural, qui représente les variations de la fraction volumique solide du milieu granulaire (aux deux échelles identifiées) en fonction de la teneur en eau du milieu et permet ainsi de décrire l'étape de croissance et consolidation du procédé d'agglomération humide.

Les milieux granulaires humides sont des matériaux triphasiques constitués de trois phases associées : des particules solides, une phase liquide (*e.g.* eau), et une phase gazeuse (*e.g.* mélange d'air et de vapeur d'eau), comme représentées à la figure II.11.



**Figure II.11.** Représentation schématique d'un milieu granulaire humide constitué de trois phases associées (adapté de Saad, 2011).

Les paramètres décrivant l'état macroscopique d'une poudre humide ont été définis par Ruiz *et al.* (2005). Les variables d'état classiques qui caractérisent les milieux granulaires humides sont utilisées sous les hypothèses restrictives suivantes. Les particules constituant la phase solide sont supposées parfaitement insolubles et ne peuvent pas former de réseau après mouillage, et sont considérées comme intrinsèquement indéformables au regard de la déformabilité de l'ensemble. La phase liquide est supposée incompressible et assimilée à l'eau pure. La phase gazeuse est en équilibre thermodynamique avec la phase liquide (la dissolution d'air et la vaporisation d'eau sont négligées). Sous ces hypothèses, la variation de volume de l'ensemble est seulement due à la variation du volume des vides.

A température fixée, lorsque les densités réelles du liquide de mouillage  $\rho_w^*$  (Eq.II.9) et des particules solides  $\rho_s^*$  (Eq.II.4) sont connues et en négligeant la masse de la phase gazeuse ( $m_g \ll$

$m_s$  et  $m_w$ ), trois grandeurs non redondantes permettent de décrire entièrement les aspects extensifs du système. Ces trois grandeurs sont accessibles à la mesure : le volume représentatif du milieu granulaire ( $V$ ), la masse d'eau ( $m_w$ ) et la masse solide ( $m_s$ ). Leur connaissance permet de déduire les variables usuellement utilisées en science des milieux poreux : la teneur en eau  $w$  (Eq.II.11), la fraction volumique solide  $\phi$  (Eq.II.12), la porosité  $n$  (Eq.II.13), l'indice des vides  $e$  (Eq.II.14) et le degré de saturation  $S$  (Eq.II.15).

$$\rho_w^* = \frac{m_w}{V_w} \text{ (Eq.II.9)} \quad d_s^* = \frac{\rho_s^*}{\rho_w^*} \quad \text{(Eq.II.10)}$$

$$w = \frac{m_w}{m_s} \text{ (Eq.II.11)} \quad \phi = \frac{V_s}{V} = \frac{m_s}{\rho_s^* V} \text{ (Eq.II.12)} \quad n = \frac{V_v}{V} = \frac{V - V_s}{V} = 1 - \phi \text{ (Eq.II.13)}$$

$$e = \frac{V_v}{V_s} = \frac{V - V_s}{V_s} = \frac{1 - \phi}{\phi} \quad \text{(Eq.II.14)} \quad S = \frac{V_w}{V_v} = \frac{V_w}{V - V_s} \quad \text{(Eq.II.15)}$$

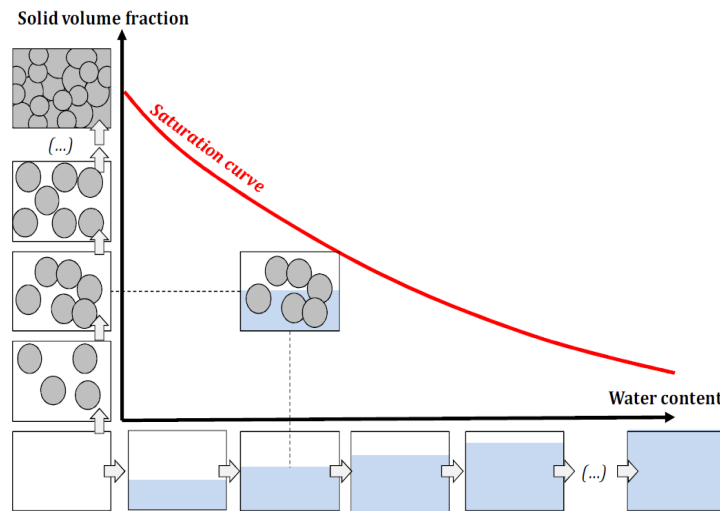
Dans les équations 9 à 15,  $V_s$ ,  $V_w$  et  $V_v$  représentent respectivement les volumes occupés par les phases solides, liquides et gazeuses et  $d_s^*$  est la densité du solide. A l'échelle d'un volume élémentaire représentatif fixé  $V$ , deux grandeurs extensives (ou deux ratios de grandeurs extensives) sont nécessaires et suffisantes pour décrire l'évolution des caractéristiques macroscopiques du milieu (Ruiz *et al.*, 2005; Rondet, 2008). Le suivi des variables ( $\phi$ ,  $w$ ) sur le diagramme hydro-textural permet alors de connaître l'influence du mouillage sur l'évolution de la fraction volumique du solide, et donc sur la compacité du milieu (Figure II.12). Ce diagramme est borné dans sa partie supérieure par la courbe de saturation, au-delà de laquelle le milieu n'a plus de réalité physique en tant que mélange. La courbe de saturation caractérise la teneur en eau pour laquelle un milieu de compacité donnée voit ses pores complètement remplis par la phase liquide (*i.e.* le solide est « saturé » par le liquide). Au-delà d'une valeur de saturation égale à 100%, une séparation des différentes phases a lieu. Une équation théorique (Eq.II.16) lie la fraction volumique solide, la teneur en eau et le degré de saturation. Cette relation est définie pour les milieux strictement humides ( $0 < S \leq 1$ ). A saturation,  $w$  est égal à la teneur en eau  $w_{sat}$  et le degré de saturation est égal à 1, d'où l'expression de la courbe de saturation (Eq.II.17).

$$\phi(w, S) = \frac{V_s}{V} = \frac{V_s}{V_s + V_v} = \frac{1}{1 + d_s^* w S} \quad \text{(Eq.II.16)}$$

$$\phi_{sat}(w) = \phi(w, 1) = \frac{1}{1 + d_s^* w_{sat}} \quad \text{(Eq.II.17)}$$

Pour un volume et une teneur en eau fixés, l'augmentation de la fraction volumique solide du milieu granulaire signifie que le milieu incorpore du solide et expulse du gaz (Figure II.12). Pour

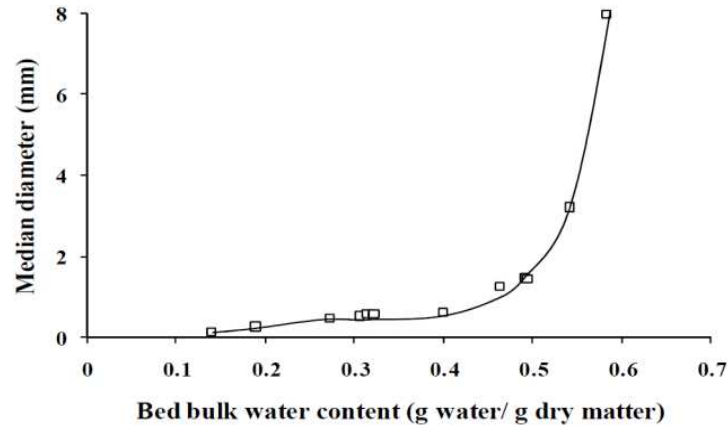
un volume fixé et une fraction volumique solide fixée, le degré de saturation  $S$  d'un milieu granulaire augmente avec l'augmentation de la teneur en eau : la phase gazeuse est expulsée du milieu granulaire.



**Figure II.12.** Représentation schématique du diagramme hydrotextural utilisé pour décrire l'agglomération humide d'un milieu granulaire (adapté de Saad, 2011).

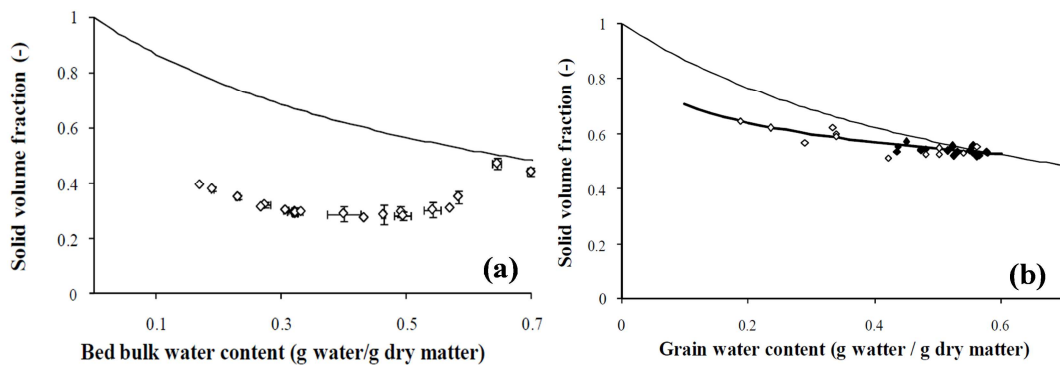
Ruiz *et al.* (2005) ont démontré que la fraction volumique solide et la teneur en eau sont suffisantes pour décrire l'évolution de l'état hydro-textural du milieu granulaire pendant l'agglomération humide. Le diagramme hydro-textural a été utilisé par Rondet (2008) et Saad *et al.* (2011) pour décrire l'agglomération humide en mélangeur à faible taux de cisaillement, respectivement pour des matériaux granulaires utilisés en galénique et pour de la semoule de blé dur. Saad *et al.* (2011) ont ainsi étendu le champ d'application du diagramme hydro-textural aux poudres réactives céréaliers. L'évolution des diamètres des structures agglomérées (nuclei, agglomérats et morceaux de pâtes) suit une croissance continue associée à l'expansion de leur structure interne (Rondet, 2008; Saad *et al.*, 2011) (Figure II.13).

**A l'échelle du lit**, une phénoménologie de structuration en trois régimes en fonction de la teneur en eau a été mise en évidence (Rondet, 2008; Saad *et al.*, 2011) : (i) une phase d' **expansion** qui correspond à une décroissance de la fraction volumique solide et s'explique par une augmentation de l'air piégé entre les particules natives constituant les structures agglomérées et/ou entre les structures agglomérées, (ii) une phase de **densification** qui correspond à une augmentation de la fraction volumique solide et (iii) une phase de **dilution** qui correspond à une décroissance de la fraction volumique solide pour un milieu saturé par le liquide (sur la courbe de saturation) (Figure II.14a).



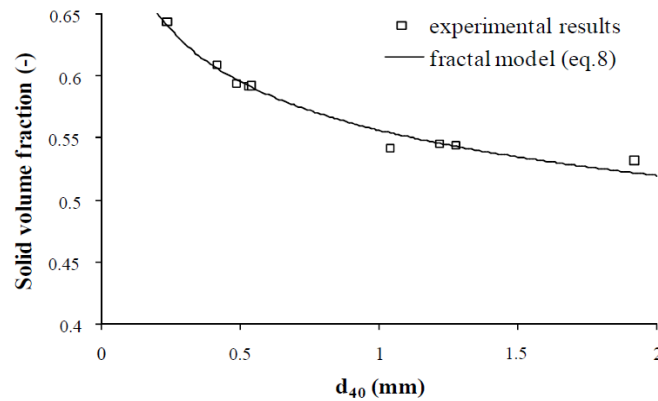
**Figure II.13.** Evolution du diamètre médian ( $d_{50}$ ) de la semoule de blé dur après mouillage et malaxage en fonction de la teneur en eau du lit (adapté de Saad *et al.*, 2011).

**A l'échelle des agglomérats**, la fraction volumique solide est située juste sous la courbe de saturation (Figure II.14b). Ainsi, il reste de l'air piégé dans les agglomérats. La fraction volumique solide des agglomérats décroît avec la teneur en eau jusqu'à atteindre la courbe de saturation pour une teneur en eau ( $w$ ) égale à la limite de plasticité ( $w_p$ ). Les agglomérats se saturent en liquide de façon progressive à mesure que la teneur en eau augmente : l'air est progressivement remplacé par de l'eau (Rondet, 2008; Saad *et al.*, 2011).



**Figure II.14.** (a) Impact de la teneur en eau du lit sur les valeurs expérimentales de la fraction volumique solide à l'échelle du lit. (b) Impact de la teneur en eau des agglomérats sur les valeurs expérimentales de fraction volumique solide à l'échelle du grain (adaptés de Saad *et al.*, 2011).

Rondet (2008) et Saad *et al.* (2011) ont montré que la description de la phase d'agglomération peut être envisagée comme un processus de type fractal. Avec l'augmentation de teneur en eau, les agglomérats incorporent de plus en plus de vide alors que leur diamètre et leur volume augmentent. Ils ont mis en évidence expérimentalement que l'agglomération obéit à une loi puissance applicable aux **structures fractales** (Figure II.15).



**Figure II.15.** Evolution de la fraction volumique solide des agglomérats en fonction de leur dimension caractéristique ( $d_{40}$ ), données expérimentales vs modèle fractal (Eq.II.18) (adapté de Saad *et al.*, 2011).

Comme pour des poudres non réactives (Rondet, 2008), Saad *et al.* (2011) ont montré que la diminution de la fraction volumique solide des agglomérats avec un diamètre caractéristique peut être assimilée à une croissance fractale et modélisée par une loi puissance dans le cas de l’agglomération humide de la semoule :

$$\phi_a = A_i d_i^{D_f - 3} \quad (\text{Eq.II.18})$$

avec  $\phi_a$  la fraction volumique solide des agglomérats,  $d_i$  une longueur caractéristique qui correspond à un des fractiles de la distribution de taille,  $A_i$  un préfacteur qui caractérise l’amplitude du phénomène qui dépend des caractéristiques des nuclei (taille et compacité) et  $D_f$  la dimension fractale massique (Figure II.15). Dans le cas où  $d_i = d_{40}$ , Saad *et al.* (2011) ont obtenu des valeurs de  $A_i$  et  $D_f$  respectivement égales à 0,56 et 2,89 par calage du modèle sur leurs données expérimentales ( $R^2 = 0,98$ ). L’équation proposée a ensuite permis de prédire les caractéristiques des structures formées par agglomération humide de la semoule, révélant le fort potentiel de l’approche hydro-texturale pour le contrôle l’agglomération humide.

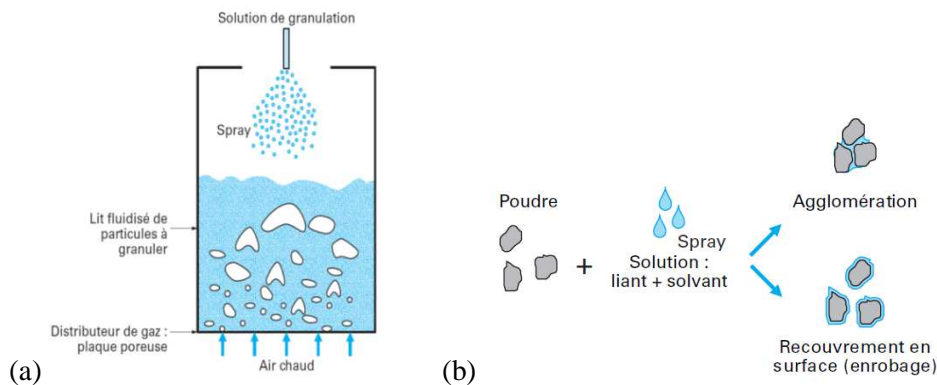
### II.3. Procédés et équipements d’agglomération

#### II.3.1. Equipements de malaxage pour l’agglomération des poudres

Cette partie présente de façon succincte les différentes technologies employées industriellement pour l’agglomération par voie humide. Toute technique d’agglomération humide repose sur la mise en mouvement et l’agitation des particules, suivies de l’introduction du liquide de

mouillage. A l'origine utilisés pour le mélange des poudres, les équipements d'agglomération humide se différencient principalement par le mode de mise en contact des particules et par l'intensité des contraintes exercées. On distingue ainsi : (i) l'agitation pneumatique pour les lits fluidisés et leurs dérivés (lit à jet, Wurster, sécheur-granulateur, *etc.*) avec des faibles taux de cisaillement, (ii) l'agitation par rotation des parois (assiette tournante et tambours rotatifs) avec des taux de cisaillement modérés, et (iii) l'agitation par mobile mécanique (mélangeur-granulateur) à fort taux de cisaillement (Saleh et Guigon, 2009b). Toutefois, selon les paramètres opératoires choisis, l'intensité des contraintes exercées est variable pour un même équipement. A titre d'exemple, il existe des mélangeurs-granulateurs à faible taux de cisaillement (qui font l'objet de l'étude expérimentale de ce manuscrit).

La **granulation en lit fluidisé** consiste à pulvériser un liquide de mouillage au sein d'un lit de particules solides mises en suspension par un courant d'air chaud. Plusieurs mécanismes simultanés et compétitifs se déroulent au sein de l'appareil (mouillage, mélange, séchage, et pelliculage) et permettent l'agglomération, la mise en forme, le séchage et la classification par taille des agglomérats (Figure II.16).



**Figure II.16.** (a) Représentation schématique du principe de l'agglomération humide en lit fluidisé, (b) Mécanismes de croissance lors de la granulation en lit fluidisé (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).

L'agglomération en lit fluidisé a lieu par coalescence des particules mouillées. Par évaporation, les ponts liquides se transforment ensuite en ponts solides. Un autre mécanisme de croissance existe et consiste en l'enrobage individuel de particules (croissance par couches) (Figure II.16b) (Jimenez, 2007; Saleh et Guigon, 2009b). Le mécanisme prépondérant dépend du bilan des forces de liaison (fortement dépendantes des propriétés physico-chimiques des matériaux) et des forces de rupture (fortement dépendantes des paramètres du procédé) qui s'exercent sur les particules. De façon générale, l'agglomération en lit fluidisé conduit à des agglomérats poreux et

de forme irrégulière. Les principales variantes d'un granulateur à lit fluidisé sont présentées à la figure II.17. Notons que la pulvérisation du liquide de mouillage peut se faire par le haut, par le bas ou par le milieu. D'un point de vue énergétique, cette technique reste très onéreuse.

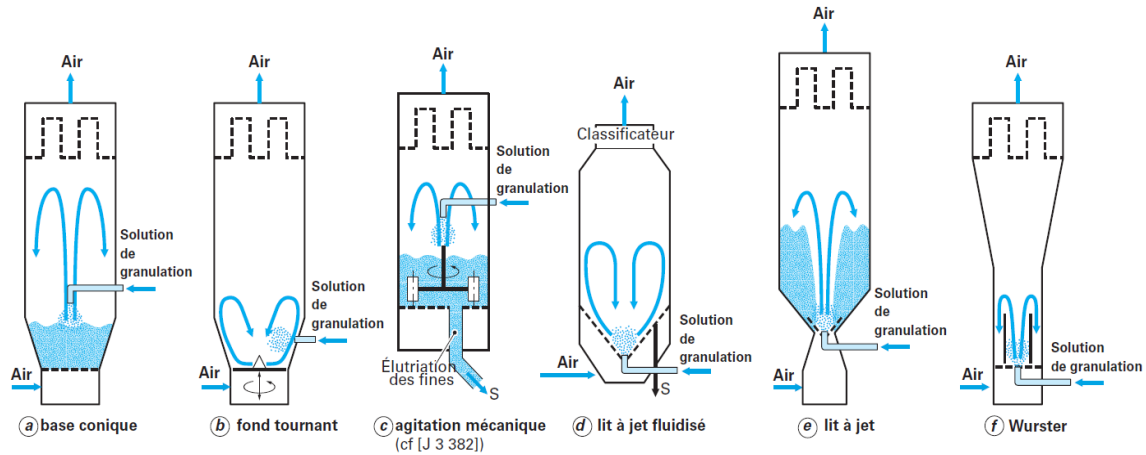


Figure II.17. Les différents types de lits fluidisés (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).

Le **plateau tournant** et l'**assiette granulatrice** fonctionnent souvent en continu et permettent d'effectuer simultanément une mise en forme d'agglomérats par roulement et une classification par ségrégation centrifuge des agglomérats (Figure II.18). Ainsi, la distribution granulométrique des agglomérats est serrée et leur forme bien sphérique. Il s'agit de la technique la plus simple à mettre en œuvre, même s'il reste difficile de contrôler à la fois la taille et la compacité des produits. L'équipement traditionnel est constitué d'un plateau circulaire à rebord, de faible élancement ( $H/D < 0,2$ ) tournant autour de l'axe central et incliné de 30 à 70° par rapport à l'horizontale. Les particules sont chargées dans le plateau et le liquide de mouillage est dispersé sur les particules en mouvement. La formation d'agglomérats a lieu selon différents mécanismes : nucléation, coalescence et recouvrement en surface (Saleh et Guigon, 2009b).

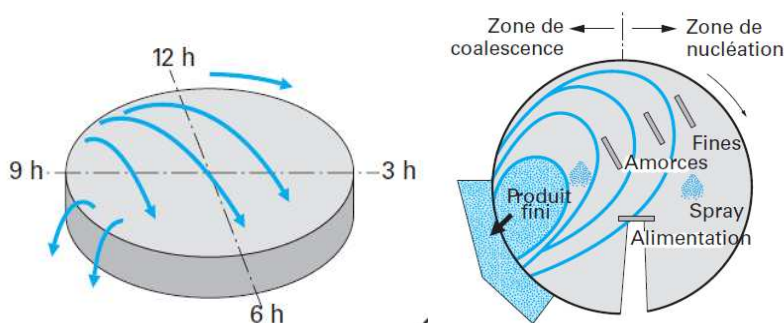
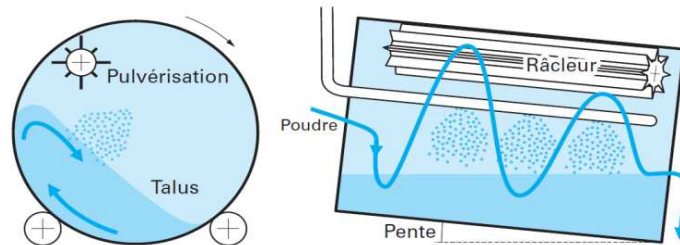


Figure II.18. Schéma de fonctionnement du plateau tournant (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).

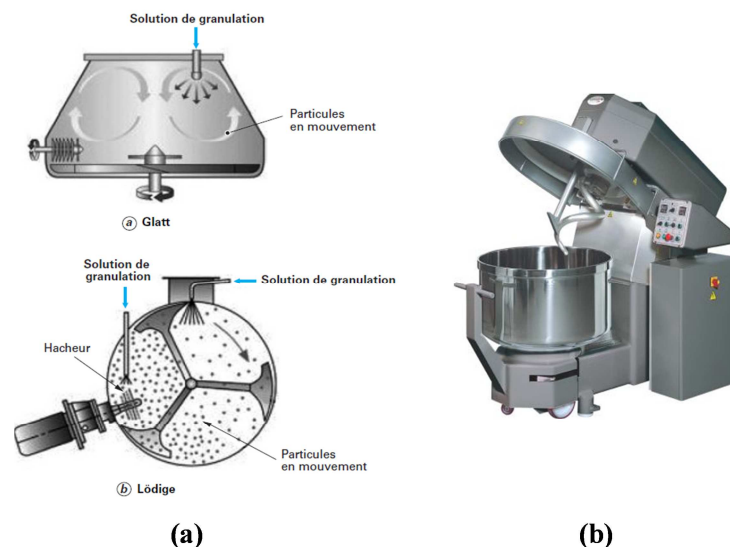


Le **tambour rotatif** est constitué d'une enveloppe cylindrique tournant sur des supports et inclinée de quelques degrés par rapport à l'horizontale (Figure II.19). La longueur du tambour varie entre 4 à plus de 10 fois son diamètre, qui peut atteindre jusqu'à 4 m (Saleh et Guigon, 2009b).



**Figure II.19.** Principe du tambour rotatif (adapté de Saleh et Guigon, 2009b).

Le produit à granuler est introduit à l'extrémité la plus élevée et progresse dans le tambour sous l'effet de l'inclinaison et de la rotation. Le liant est généralement ajouté par pulvérisation progressive le long du tambour. Cet équipement est recommandé pour une production importante et continue d'agglomérats. Les agglomérats obtenus sont sphériques mais moins denses que ceux obtenus en mélangeur à fort taux de cisaillement. La distribution de taille est étalée et une étape de tamisage est indispensable.



**Figure II.20.** Exemples de mélangeurs (a) à fort taux de cisaillement (adapté de Saleh et Guigon, 2009b) et (b) à faible taux de cisaillement (mélangeur à spirale, VMI, France).

Les **malaxeurs** peuvent fonctionner avec des poudres de distribution granulométrique très étendue et permettent une bonne distribution des liants très visqueux (Knight *et al.*, 1998). La

vitesse de rotation des mobiles est élevée pour les malaxeurs à fort taux de cisaillement ( $> 10 \text{ m.s}^{-1}$ ) et faible pour les malaxeurs à faible taux de cisaillement (Figure II.20). De nombreux types de malaxeurs sont utilisés industriellement (Castel, 1996). Le mode de fonctionnement du malaxeur dépend de la position de l'axe principal de malaxage (Charonnat, 1999) : verticale, horizontale ou inclinée. La cuve du malaxeur peut être fixe ou animée d'un mouvement de rotation. Les pales sont soit montées sur des bras tournant autour d'un axe, soit fixées directement sur la cuve du malaxeur alors animée d'un mouvement de rotation.

### II.3.2. Equipements pour l'apport du liquide de mouillage

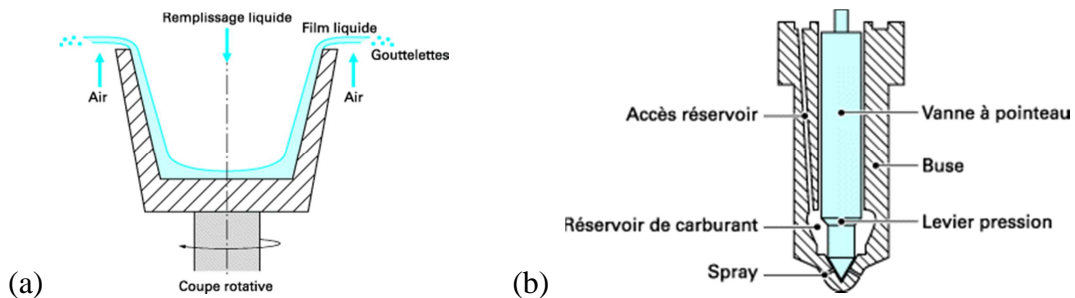
Les systèmes de pulvérisation sont utilisés pour disperser un jet de liquide, former des gouttelettes, et les pulvériser sur les particules de poudre. Au moment du passage du liquide au niveau de la buse de pulvérisation, le mécanisme de pulvérisation crée des forces de friction à la surface du liquide provoquant sa désintégration en fines gouttes. La distribution de taille des gouttes formées, les formes du jet et de la zone de mouillage sont des paramètres importants pour la maîtrise du procédé d'agglomération (Waldie, 1991). Ces paramètres sont fortement liés au type de buse utilisé ainsi qu'aux paramètres formulation (tension de surface, viscosité, *etc.*) et procédé (position de la buse par rapport au lit, débit de liquide, pression d'air, *etc.*) (Hede *et al.*, 2008).

Il existe différents types de systèmes de pulvérisation.

(i) **Les atomiseurs à turbine.** Le liquide est introduit au centre d'un disque rotatif perforé. Sous l'effet de la force centrifuge, le liquide suit le trajet jusqu'au bord du disque, où il est désintégré en gouttes (Figure II.21a). L'inertie seule du liquide suffit à vaincre les forces de cohésion (viscosité et tension de surface) pour aboutir à la rupture et à la formation de gouttes (Le Moyne, 2010). Le diamètre moyen des gouttes produites est de 1 à 600  $\mu\text{m}$ .

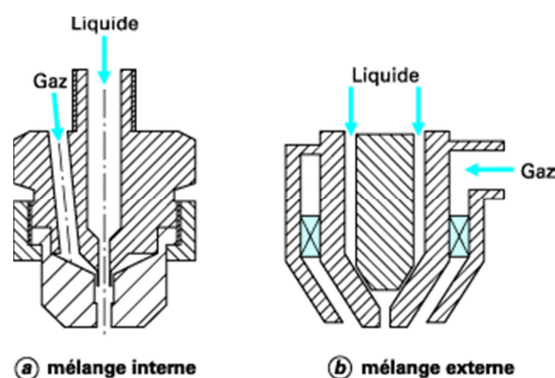
(ii) **Les atomiseurs à pression (mono-fluide).** Le jet se forme par conversion de l'énergie de pression en énergie cinétique quand le liquide traverse la buse sous pression (5 à 7 MPa) (Figure II.21b). Il s'agit de l'équipement de pulvérisation le plus répandu, car le plus simple. Il consiste à introduire sous une forte pression un liquide à travers un orifice de taille réduite. En fonction des applications, le diamètre de l'orifice d'injection varie de quelques dizaines jusqu'à plusieurs centaines de micromètres (*e.g.* pour les injecteurs de moteurs Diesel). La taille des gouttes créées dépend jusqu'à un certain point de la taille de l'orifice d'injection et du niveau de pression d'injection (Le Moyne, 2010). Des variantes existent avec des géométries d'orifice allongées (*i.e.*

des fentes) permettant d'obtenir des nappes planes d'atomisation (Le Moyne, 2010). Du point de vue pratique, le débit des injecteurs peut être efficacement interrompu par l'obstruction de l'orifice d'injection et régulé par le niveau de la pression d'alimentation. La plage de débits accessibles est limitée, à cause d'une atomisation dégradée (*i.e.* formation de grosses gouttes) aux faibles débits, et à cause des niveaux de pression atteints aux forts débits (Le Moyne, 2010).



**Figure II.21.** (a) Schéma d'un atomiseur rotatif, (b) Schéma d'un atomiseur à pression – injecteur multi-trous ( adapté de Liu, 2000 *in* Le Moyne, 2010).

(iii) Les **atomiseurs pneumatiques (bi-fluides)**. Dans les atomiseurs assistés en air, des jets d'air peuvent être dirigés vers le liquide injecté avec une forte incidence dans la zone d'atomisation pour augmenter les contraintes exercées sur le liquide et obtenir une atomisation plus efficace avec des gouttes plus fines (Figure II.22). Cela permet en particulier de garder des niveaux modérés de pression liquide et des orifices de dimensions acceptables pour générer des gouttes de taille très faible (Le Moyne, 2010).



**Figure II.22.** Atomiseur assisté en air (bi-fluide) (adapté de Liu, 2000 *in* Le Moyne, 2010).

Ils permettent d'obtenir différentes formes de jet, à cône creux, à cône plein ou à jet plat. L'angle du jet de pulvérisation est compris entre  $20^\circ$  et  $60^\circ$  selon les caractéristiques de la buse. La dispersion du liquide en fines gouttes (5 à 300  $\mu\text{m}$ ) est assurée par les forces de cisaillement exercées par l'air (ou par un gaz) d'atomisation sur la phase liquide. Deux catégories de buses

sont distinguées selon l'endroit de mélange des flux d'air et de liquide. Pour les buses à mélange interne (Figure II.22a), la désintégration du liquide se fait à l'intérieur de la chambre de la buse. Pour les buses à mélange externe (Figure II.22b), les phases air et liquide se rencontrent à la sortie de l'orifice.

D'autres types d'atomiseurs sont aussi utilisés pour des applications spécifiques, à savoir les atomiseurs à swirl, à effervescence, les systèmes soniques, électrostatiques et flashing (Liu, 2000; Le Moyne, 2010).

### **II.3.3. Paramètres opératoires pour l'agglomération en mélangeur à faible taux de cisaillement.**

Les mécanismes de croissance sont fortement dépendants des technologies utilisées, des paramètres opératoires et des caractéristiques des matières premières. Les principaux paramètres opératoires susceptibles d'influencer le procédé d'agglomération par voie humide concernent le mode d'apport du liquide de mouillage et l'intensité de l'agitation. Nous allons décrire l'influence des paramètres opératoires dans le cas d'un mélangeur à faible taux de cisaillement (ce qui correspond au type d'équipement utilisé dans la partie expérimentale de ce manuscrit).

#### II.3.3.1. Paramètres opératoires de l'apport d'eau

Le **mode d'apport du liquide de mouillage** est susceptible d'influencer la qualité du mélange solide – liquide dans la mesure où une bonne distribution induit un mouillage uniforme et une nucléation contrôlée. Il existe deux grandes méthodes d'apport d'eau, soit par versement direct du liquide sur le lit de poudre, soit par pulvérisation de fines gouttelettes sur le lit de poudre. La modalité d'apport du liquide de mouillage modifie la taille des nuclei de départ et le mode de croissance des agglomérats (Knight *et al.*, 1998). La méthode par versement génère une inhomogénéité de répartition du liquide créant des zones d'humidité élevée au niveau desquelles la croissance est préférentielle (Knight *et al.*, 1998). La méthode par pulvérisation permet une répartition plus homogène du liquide. L'effet des modalités d'apport d'eau sur les mécanismes d'agglomération (nucléation et croissance) dépend surtout de la valeur du flux de pulvérisation adimensionné ( $\Psi_a$ ). Dans le régime de dispersion mécanique, le mode d'apport d'eau n'a pas d'effet sur les propriétés des nuclei.

La **taille des gouttes** est un paramètre clé qui a fait l'objet de nombreuses études dans le cas du procédé d'agglomération humide avec apport de liquide par pulvérisation. La taille des gouttes joue un rôle sur le temps de pénétration au sein du lit de poudre (Ax *et al.*, 2008), sur la répartition de liquide au sein du mélangeur pendant la phase de nucléation, sur la durée de la phase de consolidation (Gluba, 2003) et sur la cinétique de croissance des agglomérats (Waldie, 1991; Nienow, 1995). Le paramètre de taille des gouttes est d'autant plus influent que la granulation s'effectue dans des mélangeurs-granulateurs à faibles taux de cisaillement où la taille de la goutte est conservée jusqu'à ce qu'elle arrive en contact des particules primaires de poudre. Dans ces conditions, il est montré qu'une goutte tend à former un agglomérat, selon la relation suivante :

$$d_g = d_d^n \quad (\text{Eq.II.19})$$

où  $d_g$  est le diamètre de l'agglomérat,  $d_d$  est le diamètre de la goutte et  $n$  est une constante dépendant de la nature du liant et de la poudre humide (Waldie, 1991; Schaafsma *et al.*, 1998). L'augmentation de la distribution de taille des gouttes induit également un élargissement de la distribution de taille des nuclei, surtout lorsque la nucléation s'effectue par le mécanisme d'immersion (Ceylan et Kelbaliyev, 2001; Abberger *et al.*, 2002; Vilhelmsen et Schaefer, 2005). Scott *et al.* (2000) et Gluba (2003) ont étudié la cinétique de nucléation en fonction de la taille des gouttes dans les mélangeurs-granulateurs à forts ou à faibles taux de cisaillement. Ainsi, ils montrent que la cinétique de nucléation est d'autant plus rapide que la taille des gouttes est grande. La pulvérisation du liquide de mouillage en fines gouttelettes formerait des nuclei peu résistants, ce qui ralentirait la cinétique de nucléation.

Dans la mesure où la taille des gouttes formée varie avec la distance par rapport au nez de la buse, la **hauteur de la buse** par rapport au lit de poudre constitue un paramètre opératoire important, qui gouverne la taille des gouttes, mais également la surface de poudre mouillée. **L'angle formé par le jet de pulvérisation** conditionne également la taille et la forme de la zone de nucléation.

Le **débit de liquide mouillant** influence la cinétique d'agglomération et les propriétés des agglomérats. Ainsi, la vitesse de croissance des agglomérats et la taille des agglomérats augmentent avec le débit de liquide (Schaafsma *et al.*, 1999). Cependant, l'augmentation du débit de liquide s'accompagne souvent d'une augmentation de taille des gouttes pouvant être à l'origine de l'augmentation de taille des agglomérats.

II.3.3.2. Paramètres opératoires de l'apport d'énergie mécanique

Le nombre et l'efficacité des collisions entre les particules dépend directement des gradients de vitesse des particules. La vitesse de cisaillement est ainsi un paramètre opératoire pertinent. Les travaux de Knight (1993) et Saleh *et al.* (2005) montrent que l'augmentation de la vitesse d'agitation accroît le diamètre médian grâce à une augmentation de la fréquence de collision (qui accroît la probabilité de rencontre entre les particules et/ou les grains) et à une augmentation de l'énergie de collision (qui engendre des coalescences efficaces). L'augmentation du diamètre moyen avec la vitesse d'agitation n'est valable que pour des grains déformables (Iveson *et al.*, 2001). Pour des grains non déformables, l'augmentation de la vitesse d'agitation entraîne une diminution du diamètre moyen des grains par rupture des agglomérats (Ramaker *et al.*, 1998; Knight *et al.*, 2000). A débit de liquide constant, une augmentation de la vitesse de cisaillement augmente le flux de poudre au niveau de la zone de nucléation ; ce qui diminue la quantité de liquide disponible par volume de poudre et facilite donc la dispersion du liquide de mouillage (Iveson *et al.*, 2001). De plus, la force de cisaillement exercée au sein du malaxeur influe sur la structure interne (porosité) et sur la forme des agglomérats. L'augmentation de la vitesse d'agitation favorise les mécanismes de consolidation et induit une réduction de la porosité (Oulahna *et al.*, 2003; Saleh *et al.*, 2005; Ohno *et al.*, 2007), du taux de friabilité (Oulahna *et al.*, 2003) et du taux de fines (Chevalier *et al.*, 2007).

Les données de la littérature montrent qu'il reste encore très difficile d'identifier l'influence spécifique des variables opératoires sur le mécanisme d'agglomération. La formation d'agglomérats résulte de l'effet couplé de ces variables. Le tableau II.2 proposé par Castel (1996) résume l'effet de certains paramètres opératoires sur les caractéristiques des agglomérats obtenus.

**Tableau II.2.** Influence des paramètres opératoires du mélangeur-granulateur sur les caractéristiques des agglomérats obtenus (adapté de Saleh et Guigon, 2009b, d'après Castel, 1996).

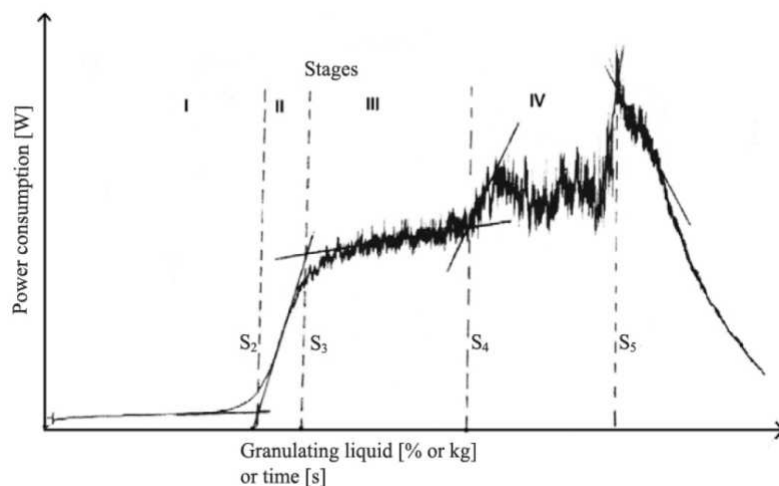
Paramètre	Caractéristiques					
	Taille des agglomérats	Resserrement granulométrique	Compacité solidité	Sphéricité	Vitesse de granulation	Maîtrise de la granulométrie
Vitesse d'agitation	↘	↗↗	↗↗	↗	↗↗	↗
Température	↗	↘↘	↗		↘	↗↗
Taux de liant	↗↗	↘↘	↗↗	↗	↗↗	↘↘
Taille des particules	↘	↘	↘	↘	↗	

Notations : les deux propriétés considérées varient :  
 - dans le même sens : ↗ peu, ↗↗ beaucoup  
 - en sens contraire : ↘ peu, ↘↘ beaucoup

## II.4. Outils de suivi en ligne de l'agglomération humide des poudres

### II.4.1. Suivi de l'agglomération par mesures de puissance

La nature dispersée de la matière en grains rend le suivi de l'agglomération particulièrement délicat à réaliser. La mesure du couple développé par la pale ou de la puissance consommée par le moteur du mélangeur ont constitué les premières méthodes en ligne de suivi du procédé d'agglomération (Lindberg *et al.*, 1974; Travers *et al.*, 1975). Ces méthodes restent aujourd'hui encore les plus développées. Les mesures de puissance et de couple peuvent être effectuées en fonction du taux de liquide de mouillage ou du temps d'agglomération et constituent un moyen simple et peu coûteux pour caractériser l'aptitude à l'agglomération d'un milieu granulaire humide (Faure, 2001; Betz, 2003, 2004; Gluba, 2005). Les mesures de puissance et de couple sont reliées à la résistance, à la taille et à la compacité des agglomérats. Le profil typique de la puissance consommée en fonction de la quantité de liquide ajoutée, est composé de cinq phases, séparées par 4 taux de saturation caractéristiques (Figure II.23) (Leuenberger *et al.*, 1979; Betz, 2003). Les différences de comportement observées au niveau des cinq phases ont été corrélées aux différents régimes du mouillage d'un milieu granulaire (Goldszal, 2001; Betz, 2003, 2004; Cazacliu, 2008).

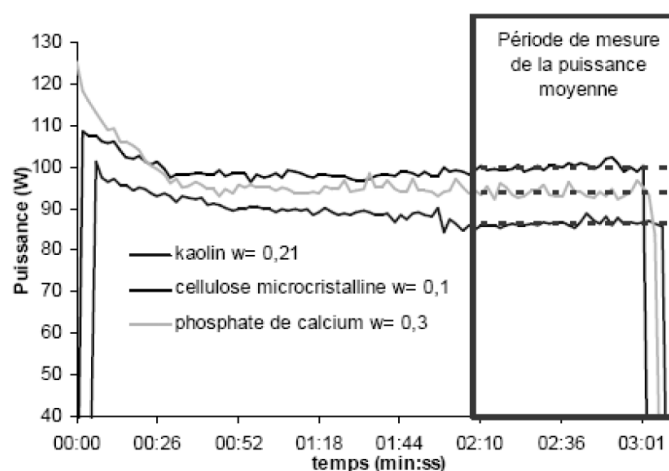


**Figure II.23.** Profil typique de puissance consommée au cours de l'agglomération humide (Leuenberger *et al.*, 1979).

Au cours de la **phase I**, la puissance consommée est constante et identique à celle mesurée dans la poudre sèche. Le liquide apporté s'adsorbe ponctuellement sur les particules solides. La quantité ajoutée est trop faible pour créer des ponts liquides et initier l'agglomération. Cette phase correspond à la "nucléation" dans la description d'Ennis et Litster (1997). Au cours de la

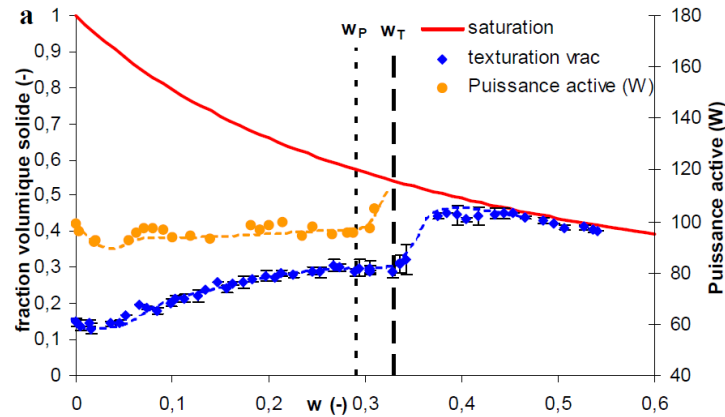
**phase II**, la puissance consommée croît fortement et rapidement. Les grains se forment et la courbe atteint (au point S3) le début de l'état pendulaire. C'est la phase de "croissance". Au cours de la **phase III**, la puissance consommée croît faiblement et tend à se stabiliser, ce qui indique le passage de l'état pendulaire à l'état funiculaire. Il est admis que cette phase correspond à la phase de "consolidation-croissance", avec un équilibre entre la croissance et la rupture d'agglomérats (Ennis et Litster, 1997). La **phase IV** correspond à l'état capillaire, marquée par une augmentation modérée de la puissance consommée. L'apparition d'oscillations montre que le milieu est hétérogène, avec des zones sursaturées en liquide et d'autres partiellement saturées (Parker, 1990; Goldszal, 2001; Cazacliu, 2008). La **phase V** est visible par la chute brutale de la puissance consommée et indique la transition vers un état de suspension.

Les mesures de puissance répondent à plusieurs objectifs : caractériser l'évolution du produit au cours de l'agglomération, contribuer à la compréhension des mécanismes, contrôler l'efficacité du procédé, proposer des critères pour le changement d'échelle, *etc.* (Malamataris et Kiortsis, 1997; Faure *et al.*, 2001; Knight, 2001; Leuenberger, 2001 ; Bardin *et al.*, 2004). Le profil de puissance consommée dépend de paramètres du procédé comme la géométrie du mélangeur et la vitesse de rotation de la pale (Knight, 2003 ; Demeyre *et al.*, 2007), du taux de saturation liquide (Holm *et al.*, 1985), de la résistance mécanique des agglomérats (Betz *et al.*, 2003), de la porosité intra-particulaire (Ritala *et al.*, 1988), et des forces de friction inter-particulaires (Pepin *et al.*, 2001). Ainsi, les mesures de puissance consommée peuvent être utilisées pour calculer l'énergie mécanique dépensée et les caractéristiques des agglomérats comme la résistance mécanique, la cohésion, la taille des agglomérats ou le taux de consolidation.



**Figure II.24.** Exemples de profils de consommation énergétique au cours des phases d'homogénéisation (mouillage par versement en une seule fois au démarrage) (adapté de Rondet, 2008).





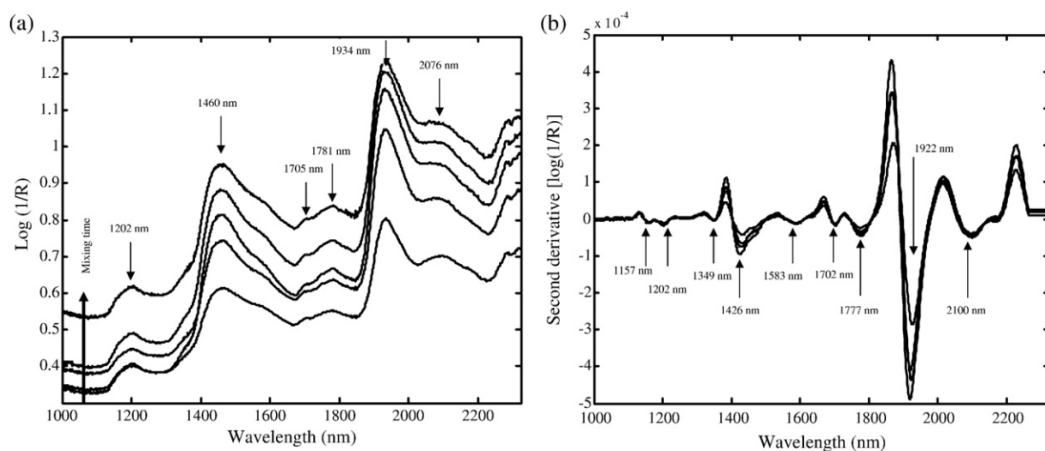
**Figure II.25.** Comparaison de l'allure du phénomène de texturation à l'allure du profil de consommation énergétique pour du kaolin (adapté de Rondet, 2008).

Concernant l'allure du profil de puissance consommée, Rondet (2008) a identifié un pic initial au démarrage du mélangeur. La puissance consommée se stabilise après quelques minutes et atteint un plateau dont la valeur dépend de la teneur en eau et de la fraction volumique solide du lit de poudre (Figure II.24). De plus, Rondet (2008) montre une corrélation entre la puissance active mesurée au plateau pour différentes teneurs en eau, et la courbe de texturation du lit (Figure II.25). Cavinato *et al.* (2010) ont utilisé des mesures de couple en ligne pour proposer une description de la première étape du procédé d'agglomération dans un mélangeur-granulateur à fort taux de cisaillement, et particulièrement le début de croissance significative, identifié comme étant le point de démarrage de l'agglomération. Ils ont montré que ce démarrage de l'agglomération peut être identifié comme une augmentation brutale du couple dès lors que la quantité de liquide de mouillage dépasse un certain niveau indiqué comme le volume de liquide minimum. Ils ont aussi déterminé l'influence de la vitesse de la pale sur les profils de couple et la distribution de taille des agglomérats finaux à formulation constante. La mesure de couple peut aussi être utilisée pour décrire le comportement rhéologique du milieu dans la mesure où la vitesse de rotation de la pale est assimilable au taux de déformation et la puissance consommée traduit la contrainte qu'oppose le matériau au mouvement de la pale (Ferraris, 2001).

La littérature portant sur l'étude du couple ou de la puissance consommée pendant l'opération d'agglomération est vaste mais la compréhension de la consommation énergétique au cours du procédé d'agglomération reste encore un enjeu scientifique d'actualité (Mort, 2009; Palzer, 2011).

### II.4.2. Suivi de l'agglomération par spectroscopie proche infra-rouge

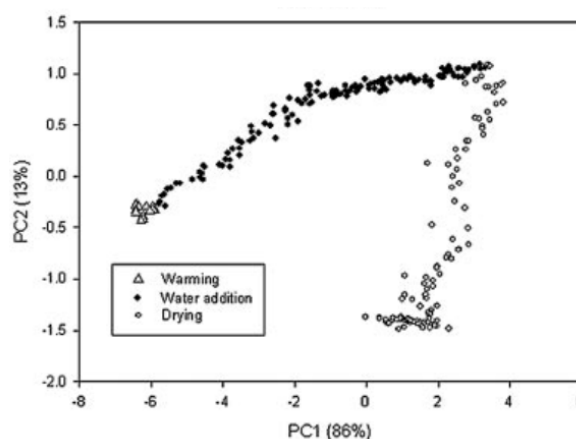
La spectroscopie proche infra-rouge (PIR) est une technique non invasive qui s'est beaucoup développée ces quarante dernières années pour des mesures quantitatives permettant de déterminer en routine la teneur en constituants de divers produits pharmaceutiques et agroalimentaires. La spectroscopie PIR est basée sur l'absorption de radiations électromagnétiques à des longueurs d'ondes comprises entre 800 et 2500 nm. La nature de l'information spectrale dans le PIR rend possible l'enregistrement de l'information vibratoire des liaisons chimiques (O-H, N-H, C-H et S-H) impliquées dans la structure des molécules organiques. Les concentrations en constituants comme l'eau, les protéines, les lipides et les glucides peuvent être déterminées à partir de l'analyse des spectres PIR, dont les bandes d'absorption correspondent aux combinaisons et harmoniques des bandes de vibration fondamentales. La mesure des spectres d'absorption PIR peut être conduite en transmission, réflexion ou dans une combinaison de ces deux modes. Trois principaux facteurs compliquent l'analyse des spectres PIR. (i) Les interactions entre constituants créent de nouvelles bandes d'absorption et modifient les longueurs d'onde auxquelles les bandes d'absorption sont supposées apparaître. (ii) Des variations de teneur en eau modifient la forme du spectre (Delwiche *et al.*, 1991). (iii) La taille des particules affecte la justesse des spectres PIR en analyse quantitative (Williams et Thompson, 1978; Norris et Williams, 1984; Manley *et al.*, 1994; Osborne, 2000). Une variation de la distribution de taille des particules modifie les caractéristiques de la surface analysée et affecte la pénétration et la réflexion des radiations. Cette variation de taille se traduit par un décalage de la ligne de base du spectre brut (Figure II.26a), notamment pour les longueurs d'onde élevées (Norris et Williams, 1984; Kaddour et Cuq, 2009).



**Figure II.26.** (a) Spectres-types bruts. (b) Spectres après dérivée seconde enregistrés pendant l'agglomération humide de la farine de blé (Kaddour et Cuq, 2009).

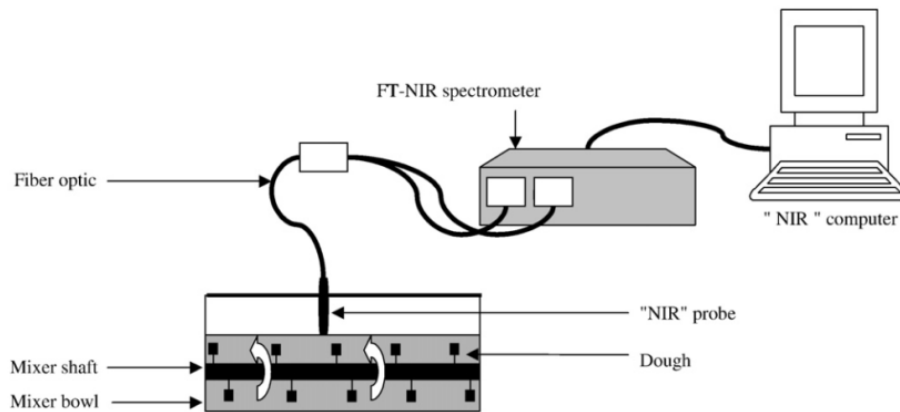
Les analyses des spectres bruts par des méthodes chimiométriques permettent d'étudier l'influence de la taille des particules sur la réponse spectrale (Figure II.26a) ; alors que pour accéder à des informations sur les propriétés chimiques, l'effet de la taille des particules peut être éliminé en appliquant un traitement des spectres en dérivée seconde (Figure II.26b). De nombreuses publications ont montré le fort potentiel de la spectroscopie PIR pour l'étude des propriétés physiques des produits analysés, comme la taille des particules (Williams et Thompson, 1978; Norris et Williams, 1984; Manley *et al.*, 1994; Osborne, 2000), et notamment pour le suivi en ligne des changements physiques et chimiques au cours du procédé d'agglomération humide (Frake *et al.*, 1997; Rantanen et Yliruusi, 1998; Alcalà *et al.*, 2009; Kaddour et Cuq, 2009).

La spectroscopie PIR a été utilisée dans l'industrie pharmaceutique pour suivre et contrôler en ligne le taux d'agglomération de médicaments (Rantanen et Yliruusi, 1998; Frake *et al.*, 1997; Alcalà *et al.*, 2009). Frake *et al.* (1997) ont montré que la spectroscopie PIR pouvait être utilisée pour suivre en ligne l'humidification et l'augmentation de taille des particules pendant une étape de granulation en lit fluidisé. Les variations d'absorbance à 2282 nm en fonction du temps de granulation sont similaires aux variations de taille mesurées par tamisage. Alcalà *et al.* (2009) ont conduit une analyse quantitative et qualitative pour le suivi de l'agglomération humide de formulations pharmaceutiques. Un modèle qualitatif multivarié construit par Analyse en Composantes Principales (ACP) à partir des spectres bruts permet de décrire les différentes étapes du procédé d'agglomération humide (Figure II.27).



**Figure II.27.** 2<sup>ème</sup> composante principale (CP2) en fonction de la 1<sup>ère</sup> CP, obtenues après ACP sur l'ensemble des données spectrales (1000-2500 nm) (Alcalà *et al.*, 2009).

Les deux premières composantes principales (CP) expliquent 99% de la variance totale. La 1<sup>ère</sup> CP est associée aux variations de taille des particules. La 2<sup>ème</sup> CP est associée aux variations de teneur en eau. Des modèles de calibration quantitatifs établis par partial least squares (PLS) permettent de prédire les caractéristiques des agglomérats (*e.g.* teneur en eau, distribution de taille et compacité du lit) à partir de la connaissance des paramètres opératoires et de formulation choisis.



**Figure II.28.** Schéma de l'équipement expérimental pour l'acquisition de spectres proches infra-rouge (Kaddour et Cuq, 2009).

La revue bibliographique de Kaddour et Cuq (2011) souligne l'intérêt de la spectroscopie PIR pour l'étude des produits à base de blé dans le cadre d'un suivi en ligne de procédés. Kaddour et Cuq (2009) ont évalué la capacité de la spectroscopie PIR à caractériser le procédé d'agglomération de la farine de blé dans un malaxeur à faible cisaillement. Les spectres PIR ont été acquis à l'aide d'une sonde déportée à fibre optique, placée directement au contact de la poudre (Figure II.28). Dans d'autres études la sonde PIR est située au-dessus du lit de grains (Alava *et al.*, 2001) ou collée contre la paroi en verre d'un lit fluidisé (Alcalà *et al.*, 2009). L'analyse par ACP des spectres PIR bruts et après dérivée seconde a permis de proposer une description des mécanismes physiques et chimiques impliqués au cours de l'agglomération. L'augmentation de la ligne de base des spectres bruts est attribuée à des modifications des propriétés physiques (*i.e.* taille et distribution de taille) des agglomérats. L'analyse des spectres en dérivée seconde met en évidence des bandes d'absorption à des longueurs d'onde spécifiques (1157, 1202, 1349, 1426, 1583, 1702, 1777, 1922 et 2100 nm), attribuées à des changements chimiques (Osborne et Fearn, 1986). L'ACP des spectres bruts a permis de construire les courbes cinétiques PIR pour suivre la dynamique d'agglomération des farines et de déterminer un "temps d'agglomération PIR", équivalent au temps nécessaire pour obtenir une stabilité de la distribution de taille de agglomérats. Cette étude démontre non seulement le potentiel de la

spectroscopie PIR pour suivre l'agglomération humide de poudres céréaliers comme la farine, mais aussi l'intérêt de cette méthode pour décrire les modifications physiques et chimiques impliquées au cours du procédé d'agglomération.

## II.5. Outils d'analyse des écoulements granulaires (gravitaires ou forcés)

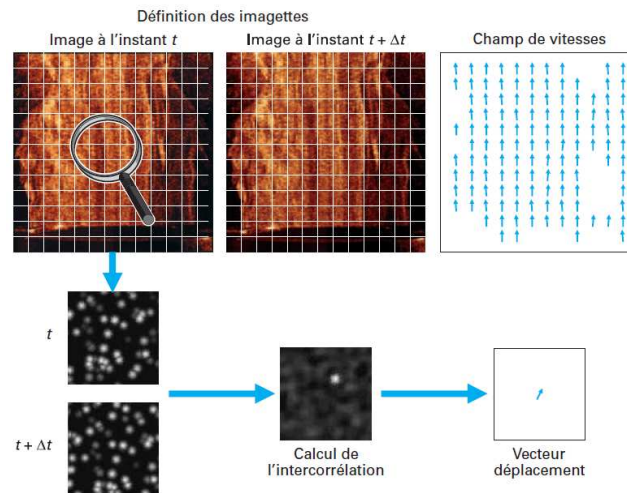
### II.5.1. Vélocimétrie par images de particules

L'analyse des champs de vitesse et des trajectoires de particules est indispensable pour caractériser de façon pertinente les écoulements granulaires. L'acquisition puis le traitement de ces champs permettent d'accéder aux typologies de mouvement de particules à trois échelles (à l'échelle de la particule "micro", à l'échelle intermédiaire d'un petit ensemble de particules "mésos", et à l'échelle du lit entier "macro"), puis de définir des grandeurs moyennes suffisamment pertinentes pour caractériser l'écoulement (*e.g.* longueur d'une zone en mouvement).

La vélocimétrie par images de particules (PIV) est une technique d'imagerie qui permet de mesurer les champs de vitesse et de déplacements de particules dans un écoulement en dimension 2. La PIV consiste à acquérir au moyen d'une caméra des images des particules à des instants très rapprochés (entre  $t$  et  $t + \Delta t$ ) et à mesurer le déplacement le plus probable des particules entre les deux images. La vitesse se déduit du déplacement, connaissant le temps entre les deux acquisitions. Dans le cas des fluides, il est nécessaire "d'ensemencer" le milieu avec des traceurs dont la masse volumique doit être la plus proche possible de celle du fluide, et dont la taille doit être suffisamment petite pour bien "suivre" l'écoulement, et suffisamment grande pour être "vus" (Schon *et al.*, 2007). Ludwig Prandtl a été le premier à extraire une information qualitative sur l'écoulement d'un fluide par une technique de visualisation, grâce à des particules de mica mise en suspension à la surface de l'eau (Raffel *et al.*, 2007). Pour les milieux granulaires, chaque particule joue le rôle d'un traceur. Le taux d'ensemencement est naturellement élevé. Selon la densité de traceurs, on distingue deux méthodes. La *particle tracking velocimetry* (PTV) permet de suivre la trajectoire de particules individuelles dans un système à faible densité de particules. La *particle image velocimetry* (PIV) et la *laser speckle velocimetry* (LSV) sont utilisées dans les systèmes à forte densité de particules.

Les différentes étapes du traitement d'images en PIV sont présentées à la figure II.29. L'étude du comportement des milieux granulaires nécessite un système d'acquisition (caméra rapide et système d'éclairage) et un système de traitement des images (Buchhave, 1992; Lueptow *et al.*,

2000; Jensen, 2004; Adrian, 2005; Raffel *et al.*, 2007). La zone d'intérêt est une surface libre ou un bord du système confiné par une vitre transparente (*e.g.* plaque de verre). Après l'acquisition des images, une technique d'analyse courante consiste à construire un maillage, en divisant chaque image en régions d'intérêts (de préférence carrées) dont l'opérateur définit la taille (en pixels) en fonction de la densité, de la vitesse de déplacement et de la taille des particules.

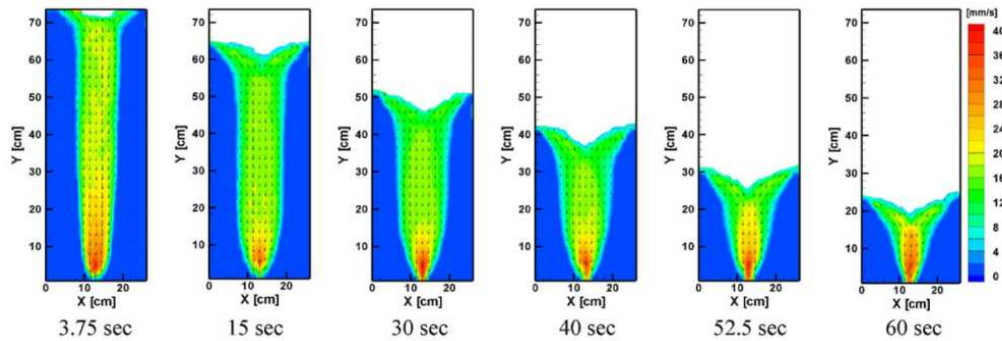


**Figure II.29.** Différentes étapes du traitement d'images par PIV (Schon *et al.*, 2007).

Un calcul d'intercorrélation est ensuite effectué entre deux régions correspondant aux temps  $t$  et  $t + \Delta t$ , pour définir le déplacement le plus probable. Un vecteur déplacement est ainsi obtenu pour chaque région d'intérêt entre deux images successives, conduisant à l'établissement de champs de vitesse instantanés. Des opérations de post-traitement et de validation peuvent ensuite être appliquées pour éliminer les vecteurs erronés et éventuellement les remplacer.

La technique PIV est très employée depuis une dizaine d'années pour l'étude non invasive d'écoulements de poudres et de déplacements de particules dans différentes configurations. Medina *et al.*, (1998), Ostendorf et Schwedes (2005), Steingart et Evans (2005), Sielamowicz *et al.* (2005, 2006) et Slominski *et al.* (2007) ont étudié la vidange d'un silo ou d'une trémie remplis de grains par analyse d'images PIV à travers une paroi transparente. En particulier, Slominski *et al.* (2007) ont comparé qualitativement les analyses PIV à des observations aux rayons X et à l'utilisation de couches de sable coloré. Sielamowicz *et al.* (2005, 2006) ont étudié la vidange d'un silo pour des matériaux granulaires denses et non cohésifs, par la quantification des régions en écoulement et par la détection des zones de cisaillement (Figure II.30). L'analyse PIV a permis de définir des critères tels que : la variation de la frontière entre la zone immobile et la zone centrale en écoulement, les champs de vitesse instantanés, ou la taille et la largeur de

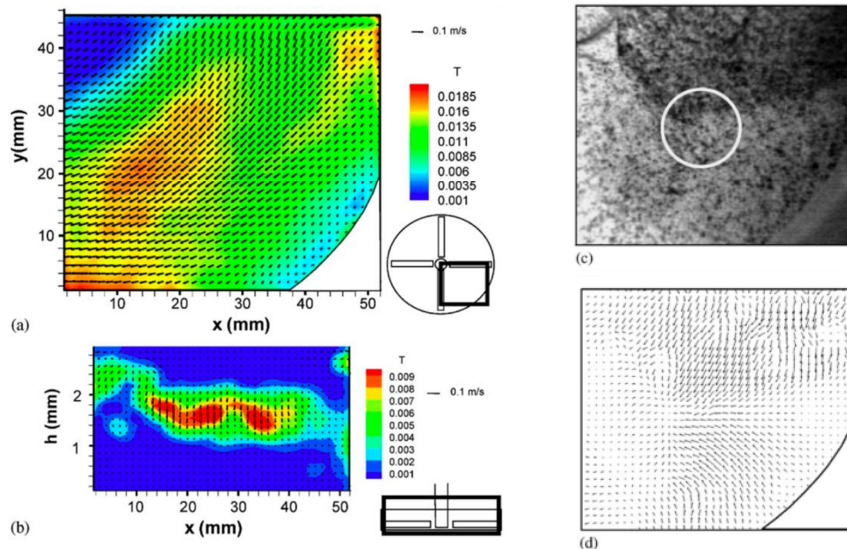
la zone mobile. Les gradients de vitesse mesurés à la frontière de la zone immobile seraient utiles pour calculer la contrainte aux parois.



**Figure II.30.** Champs de vitesse et contours de l'intensité de la vitesse au cours de la vidange d'un silo de grains (Sielamowicz *et al.*, 2005).

Tischer *et al.* (2001) ont utilisé la technique PIV pour examiner les cinématiques des avalanches de sable pour différentes propriétés de surface, dans le cadre d'une étude sur les mouvements de dunes de sable. Courrech du Pont (2003) s'est intéressé au déroulement d'une avalanche intermittente d'un point de vue "microscopique" (échelle du grain) en mesurant le champ de vitesse des billes de verre. Il a ainsi montré que dans les conditions choisies, la vitesse des grains décroît exponentiellement avec la profondeur et que l'épaisseur coulante est constante durant toute l'avalanche. La PIV a aussi été utilisée pour : (i) quantifier l'influence du déplacement d'un objet (en anglais, "intruder") sur les champs de vitesse dans une mono-couche de grains (Candelier et Dauchot, 2009), (ii) quantifier l'influence d'une pale plate se déplaçant horizontalement dans un lit granulaire homogène constitué de billes de verre polydisperses (Gravish *et al.*, 2010), (iii) analyser en détail l'étape de nucléation, notamment le comportement cinématique de la goutte lors de sa chute sur un lit de grains en mouvement (Chouk *et al.*, 2009), ou encore (iv) caractériser les vitesses de surface en mélangeurs à faible et fort taux de cisaillement (Wellm, 1997; Mugurama *et al.*, 2000; Litster *et al.*, 2002; Russell *et al.*, 2003; Nilpawar *et al.*, 2006; Remy *et al.*, 2011). Le travail de Conway *et al.* (2005) s'attache à comprendre les écoulements et mélanges en surface d'un lit de grains dans un mélangeur à quatre pales plates sous de faibles intensités de cisaillement, ce qui constitue un premier pas vers une caractérisation tri-dimensionnelle du comportement du lit. Ils ont déterminé les trajectoires de particules et les champs de vitesse (instantanés et moyens) à la surface, pour des grains monodisperses (Figure II.31). Ils montrent que le lit de poudre se déforme et qu'il existe une recirculation des grains en surface avec des phénomènes d'avalanches, dont l'intensité varie avec la vitesse de la pale (Figure II.31c-d). Par analyse des champs de vitesse moyens (Figure II.31a-

b), ils mettent en évidence l'existence de plans de cisaillement, dans les 2 mm d'espace vide entre l'extrémité de la pale et la paroi. Ce "shear banding" est responsable de faibles vitesses près de la paroi dues à la non-transmission du mouvement de la pale jusqu'à la paroi. Ils ont aussi relié les phénomènes de ségrégation observés pour des milieux polydisperses, à l'intensité des gradients de température granulaire (*i.e.* moyenne des fluctuations du carré la vitesse sur un temps donné) (Figure II.31b) mesurés à partir des données de vitesses obtenues par PIV.



**Figure II.31.** Représentation des vecteurs vitesse moyen et des champs de température granulaire. (a) Vue de dessus d'un quart du mélangeur. (b) Vue de côté de la totalité du lit granulaire. (c) Image d'un quart du mélangeur vue de dessus. (d) Champs de vitesse instantanée correspondants à l'image et, indiquant un écoulement d'avalanche (Conway *et al.*, 2005)

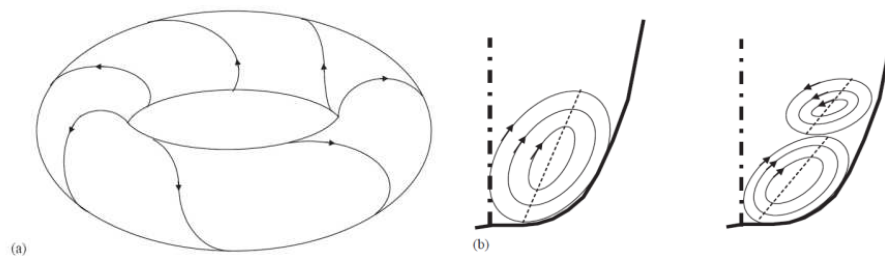
## II.5.2. Autres techniques de caractérisation des écoulements granulaires en mélangeurs

Des méthodes autres que la PIV, ont été utilisées pour étudier de façon approfondie le mélange et l'écoulement des constituants d'un mélange granulaire : l'utilisation de couches de grains colorés et de marqueurs (Yoshida *et al.*, 1994; Obregon *et al.*, 2010), les rayons X, la tomographie aux rayons X (Desrues *et al.*, 1996; Lenoir *et al.*, 2007), la tomographie électrique capacitive (Niedostatkiewicz et Tejchman, 2007), ou la corrélation d'images numériques. La méthode de suivi d'un traceur radioactif, ou positron emission particle tracking (PEPT) permet de visualiser en détails un système particulaire pour ainsi mieux comprendre les dynamiques et cinématiques des écoulements de particules. La technique PEPT, est non invasive et consiste à suivre une particule radioactive, émettrice de positron, en mouvement dans un mélangeur. La fiabilité des informations fournies en PEPT repose sur le choix d'un traceur dont les caractéristiques sont



proches de celles des particules constitutives du milieu afin que leur comportement soit assimilable.

La méthode PEPT a été étudiée à l'Université de Birmingham pour différents systèmes de mélange : lit fluidisé (Van de Velden *et al.*, 2008), tambours rotatifs (Lim *et al.*, 2003; Ingram *et al.*, 2005), et mélangeur en V (Kuo *et al.*, 2005). Des études menées sur des mélangeurs horizontaux (Bridgwater *et al.*, 1993; Broadbent *et al.*, 1995; Laurent et Bridgwater, 2002; Laurent *et al.*, 2002; Forrest *et al.*, 2003), des mélangeurs planétaires (Hiseman *et al.*, 2002; Laurent, 2005), et des mélangeurs en continu (Portillo *et al.*, 2010) ont permis de montrer l'influence de la vitesse de rotation des pales, du taux de remplissage, de la géométrie des pales du mélangeur et de la cohésion de la poudre sur l'écoulement. Il a été montré que pour un faible taux de remplissage, le mouvement s'effectue principalement dans un lit agité au fond du mélangeur alors que pour un remplissage plus élevé, la rotation autour de l'axe du mélangeur est continue entraînant plus facilement les particules et minimisant le glissement du produit sur les pales. Ces études menées sur des mélangeurs horizontaux ont montré l'existence de deux types d'écoulement radicalement différents suivant que le milieu soit sec ou humide. Laurent (2005) s'est attaché à décrire très finement par PEPT l'écoulement de milieux granulaires secs puis humides en mélangeur planétaire (Figure II.32).



**Figure II.32.** (a) Schéma d'écoulements granulaires secs en mélangeur planétaire (de type toroïdal). (b) Coupe transversale du bol de mélangeur planétaire pour un mélange de milieux granulaires secs (à gauche) et humides (à droite) (adapté de Laurent, 2005).

Pour les milieux secs, deux régimes d'écoulement sont mis en évidence : un écoulement lent lorsque les particules se déplacent du centre du malaxeur vers la périphérie et du bas vers le haut jusqu'à ce qu'elles atteignent une hauteur critique et retombent, et un mouvement rapide elliptique et toroïdal en sens horaire. Pour les milieux humides, un second mouvement toroïdal et elliptique, en rotation anti-horaire, se superpose au premier. Le déplacement des particules dans les différents plans (axial, azimutal et radial) présente une périodicité plus marquée en milieu humide qu'en milieu sec, suggérant un meilleur ordonnancement des systèmes humides. Stewart

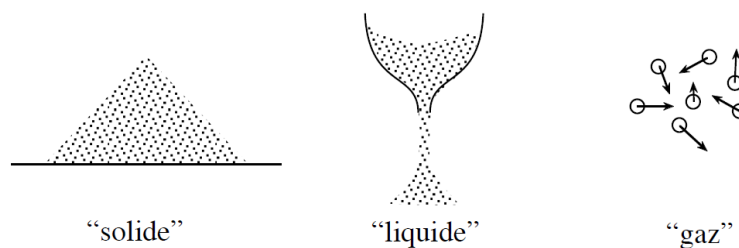
*et al.* (2001a) ont montré à travers des mesures PEPT dans un mélangeur cylindrique, équipé de deux pales plates opposées, qu'au niveau des parois, les particules se situant sur le « chemin » de la pale subissent un mouvement vers le haut conduisant à la formation d'un tas puis se déplacent par-dessus la pale. Quand on s'éloigne des parois (plus près du centre du mélangeur), une partie du matériel déplacé vers le haut s'éloigne de la pale et redescend en bas du tas juste formé. Une autre fraction se déplace de façon radiale ; ce qui démontre l'existence de structures dynamiques 3D au sein du lit de grains.

La caractérisation des écoulements granulaires dans les équipements verticaux a été considérablement améliorée ces dernières années par une visualisation 3D du lit granulaire grâce à l'utilisation de la PEPT, mais aussi par des simulations numériques utilisant la méthode des éléments discrets (DEM) (Stewart *et al.*, 2001b; Zhou *et al.*, 2004).

## II.6. Concepts de la physique des milieux granulaires.

### II.6.1. Quel(s) état(s) physique(s) de la matière en grains ?

La famille des matériaux granulaires est très importante et s'y trouvent rassemblés tous les matériaux composés de grains indépendants les uns des autres. En tant que mélange de phases solide et fluide(s) dispersés, ils possèdent des propriétés physiques et mécaniques à "mi-chemin" entre celles des fluides, des gaz et des solides (Claudin, 1999; Pouliquen, 2001) (Figure II.33). La physique des matériaux granulaires utilise principalement des concepts qui lui sont propres pour intégrer des propriétés comme celles liées à l'effet de voûte, à la dilatance ou à la ségrégation. Les physiciens et mécaniciens s'intéressant à la matière en grains travaillent majoritairement sur des matériaux modèles, simplifiés à l'extrême et parfaitement adaptés aux expériences, c'est-à-dire monodisperses, en général secs et non cohésifs, même si l'étude des milieux granulaires humides présente aussi un fort dynamisme.

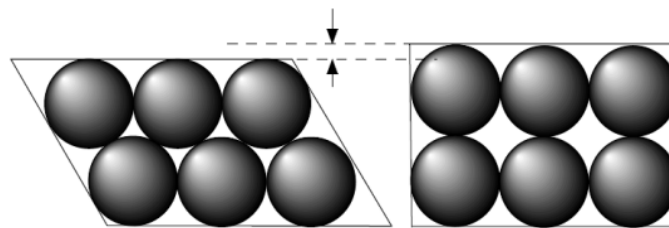


**Figure II.33.** Comportements des milieux granulaires avec le mode de sollicitation (Pouliquen, 2001).

## II.6.2. Phénomènes propres aux milieux granulaires

Des phénomènes propres aux milieux granulaires, souvent contre-intuitifs, en font des matériaux à part, dont le comportement reste difficile à prévoir et à modéliser.

*Dilatance* - Le phénomène de dilatance, mis en évidence par Reynolds en 1885, constitue une des particularités des milieux granulaires. Dans certaines conditions de compacité et sous l'effet d'un cisaillement par exemple, un milieu granulaire doit d'abord se dilater, donc diminuer sa compacité, pour pouvoir se déformer, sinon les grains sont dans une conformation telle qu'ils ne peuvent pas bouger (Figure II.34). Le cisaillement s'accompagne d'une augmentation du volume occupé par les grains. Ceci est vrai lorsque la compacité initiale est supérieure à une compacité critique. La dilatance est étroitement liée à l'arrangement intime des grains à l'échelle locale difficilement modélisable. Même pour un empilement de sphères de diamètres identiques, la compacité peut être très variable. Elle est comprise entre la compacité d'un empilement compact (obtenu en tassant le milieu en cours de remplissage) et la compacité d'un état désordonné lâche (obtenu sans tassement). Ces empilements peu denses ("lâches") ne présentent pas de comportement de dilatance.

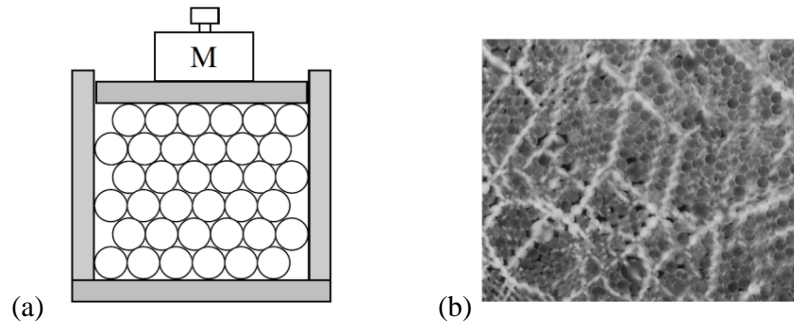


**Figure II.34.** Principe de dilatance pour des grains soumis à un cisaillement (Pouliquen, 2001).

*Ségrégation* - Le phénomène de ségrégation se manifeste lorsque des mélanges de grains aux propriétés différentes sont manipulés. Un "bon" mélange de grains de tailles différentes est assez difficile à obtenir : les particules les plus petites ont tendance à se retrouver au fond et les gros grains en surface. Lorsque le mélange est soumis à des vibrations, un premier mécanisme invoqué est la percolation des petites particules sous les gros grains (Rosato *et al.*, 1987; Jullien *et al.*, 1992). En "s'infiltrant" sous les gros grains, les petites particules les poussent vers la surface. Un autre mécanisme faisant intervenir des mouvements collectifs de convection (montée au centre et redescente à proximité des parois) a été mis en évidence. Dans le cas de tambours tournants tridimensionnels, on observe aussi des phénomènes de ségrégation avec des structures complexes. Des bandes alternées de grosses et petites particules apparaissent (Hill *et al.*, 1997).

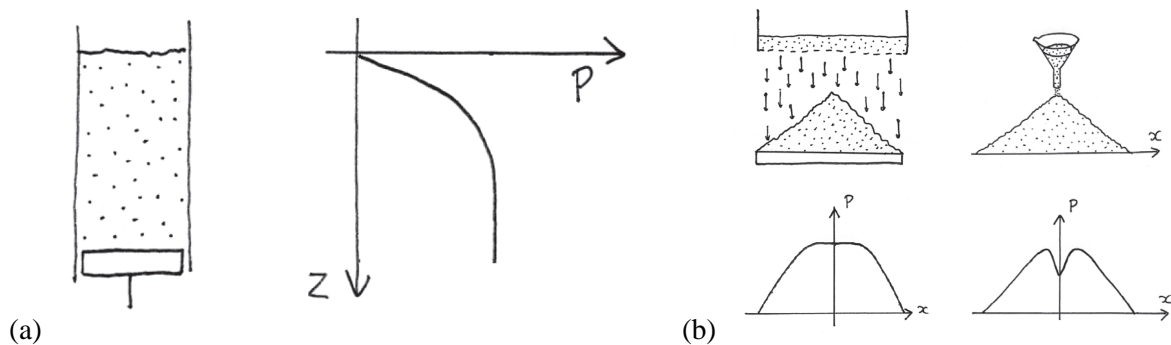
Ces phénomènes de ségrégation sont très étudiés dans différents types de mélangeurs pour des opérations de mélange-malaxage et aussi d'agglomération humide de particules (Laurent *et al.*, 2002; Conway *et al.*, 2005), que la ségrégation soit un phénomène recherché (pour le tri de particules) ou évité (cas de l'agglomération).

*Effet de voûtes et forces dans les empilements* - L'effet de voûte est une particularité importante des milieux granulaires, à l'origine de plusieurs phénomènes remarquables comme l'effet "Janssen", le "trou du tas" ou le débit constant d'un sablier. Le débit d'un sablier est constant, alors que dans des conditions identiques le débit d'un liquide diminuerait à mesure que le poids du liquide restant dans le récipient diminue. Dans le cas des milieux granulaires, des "voûtes", aussi appelées chaînes de forces ou chemins de contrainte privilégiés, se forment et redistribuent les contraintes verticales vers les parois si bien qu'à partir d'une certaine hauteur de grains, le poids des couches supérieures est entièrement porté par les parois latérales. La transmission des forces dans un milieu granulaire est très hétérogène à l'échelle des grains. La technique de photoélasticité est souvent employée pour visualiser les répartitions de contraintes dans un empilement granulaire soumis à des contraintes extérieures. Pour cela, des grains en pyrex ou plexiglas sont utilisés et l'empilement est placé entre polarisateurs croisés. L'indice de réfraction du pyrex et du plexiglas (matériaux biréfringents) varie avec la contrainte qu'ils subissent. En modifiant la polarisation de la lumière en fonction des contraintes appliquées, les cylindres sous contraintes apparaissent plus lumineux que les autres (Figure II.35). Des expériences modèles d'empilement de grains photoélastiques (Dantu, 1968; Travers *et al.*, 1987; Guyon *et al.*, 1990; Howell et Behringer, 1999) mais aussi des simulations numériques (Radjai *et al.*, 1996 ; Zhou *et al.*, 2001) permettent de visualiser les chaînes de forces. Radjai *et al.* (1998) ont mis en évidence le caractère bimodal de la transmission des forces avec un réseau fort (valeurs des forces au-dessus de la moyenne) et un réseau faible (valeurs des forces en-dessous de la moyenne). Le réseau fort renvoie aux chaînes de forces. Le réseau faible, caractérisé par une relative isotropie des contraintes, sert à stabiliser le réseau fort. Ces expériences confirment que les contraintes se répartissent de façon inhomogène dans un empilement granulaire, qu'il soit régulier ou désordonné. Comme les forces se transmettent via les contacts entre grains qui ne sont pas réguliers, il y a apparition de chemins privilégiés de transmission de forces au sein du milieu granulaire. Ainsi, l'hétérogénéité du réseau de forces s'explique par le désordre du réseau des contacts dans un empilement granulaire.



**Figure II.35.** Expériences de photoélasticité (Travers *et al.*, 1987 in Pouliquen, 2002).

*Modèle de Janssen et contraintes dans un silo* - La formation de chaînes de force dans les empilements granulaires, avec l'existence de grains supportant des forces élevées et de grains non contraints, peut être à l'origine de l'effondrement de silos, s'ils ne sont pas capables de résister aux contraintes s'exerçant sur les parois. En 1895, Janssen (1895) a proposé une explication de la distribution des contraintes verticales dans un silo de grains après qu'en 1884, Roberts ait remarqué que la pression à la base d'un silo atteint une valeur de saturation à partir d'une certaine hauteur de grains, généralement supérieure au double du diamètre du silo (Figure II.36a). Ainsi, lorsque la valeur de saturation est atteinte en bas de la colonne de grains, tout ajout supplémentaire de matériau en surface ne fait pas varier la masse pesée par le fond.



**Figure II.36.** (a) Allure du profil de pression en fonction de la profondeur dans une colonne de grains. (b) Profils de pression à la base d'un tas de sable, selon la position ( $x = 0$  au centre du tas). Tas obtenu par versement en pluie (*gauche*) et par versement à partir d'un point source (*droite*) (Ovarlez, 2002).

On retrouve ici le même mécanisme que celui observé dans le sablier à débit constant : par phénomène d'écrantage, le poids des grains est porté par les parois. Janssen a proposé un modèle permettant de donner la valeur de la pression qui s'exerce au fond du silo en fonction de la hauteur de grains dans le silo. Pour cela, il a considéré un tube cylindrique de diamètre  $D$ , rempli d'un milieu granulaire de densité  $\rho$  et a posé trois hypothèses.

- (i) La contrainte verticale  $\sigma_{zz}$  est uniforme dans la section du cylindre.
- (ii) Aux parois, le milieu est sur le point de glisser. Il existe alors une contrainte tangentielle  $\tau_{xz}$  dirigée vers le haut  $\tau_{xz} = \mu\sigma_{xx}$  où  $\mu$  est le coefficient de friction grains-paroi et  $\sigma_{xx}$  est la contrainte normale horizontale au niveau des parois.
- (iii) La contrainte normale horizontale est proportionnelle à la contrainte normale verticale :  $\sigma_{xx} = K\sigma_{zz}$  où  $K$  est une constante caractéristique du milieu granulaire.

Selon les hypothèses (i) et (iii), la contrainte normale horizontale est supposée homogène à une hauteur donnée. Janssen (1895) a écrit l'équilibre d'une tranche de matériau d'épaisseur  $dz$  soumise aux pressions du dessus et du dessous, aux contraintes latérales et à la gravité (Eq.II.20) :

$$\frac{\pi D^2}{4} (\sigma_{zz|z} - \sigma_{zz|z+dz}) - \pi D dz \tau + \rho g dz \frac{\pi D^2}{4} = 0 \quad (\text{Eq.II.20})$$

D'après les hypothèses (ii) et (iii), Eq.II.20 devient Eq.II.21 :

$$\frac{d\sigma_{zz}}{dz} = \rho g - \frac{4K\mu}{D} \sigma_{zz} \quad (\text{Eq.II.21})$$

Comme la contrainte est nulle à la surface ( $z = 0$ ), l'intégration de l'équation II.21 donne la répartition des contraintes verticales avec la profondeur (Eq.II.22) :

$$\sigma_{zz} = \rho g \lambda_j \left[ 1 - \exp\left(-\frac{z}{\lambda_j}\right) \right] \quad (\text{Eq.II.22})$$

avec  $\lambda_j$  une longueur caractéristique ("longueur de Janssen") (Eq.II.23) :

$$\lambda_j = \frac{D}{4K\mu} \quad (\text{Eq.II.23})$$

La longueur caractéristique dépend de paramètres liés à la géométrie du silo ( $D$ ), à la nature du matériau granulaire ( $K$ ) et à l'interaction des deux ( $\mu$ ). Pour des hauteurs de grains très inférieures à la longueur caractéristique, la pression augmente linéairement de façon hydrostatique suivant  $\sigma_{zz} = \rho g z$ . Pour des hauteurs de grains très supérieures à la longueur caractéristique, la pression est saturée et constante :  $\sigma_{zz} = \rho g \lambda_j$ . Quand la hauteur dépasse  $\lambda_j$ , le surplus de poids est supporté entièrement par la friction aux parois. La friction aux parois dépend à la fois du coefficient de friction grains-paroi ( $\mu$ ) et de l'état local de structuration de l'empilement. Les conditions de remplissage du silo peuvent influencer sur la répartition des contraintes.

Le modèle de Janssen manque certainement de fondements théoriques (Ovarlez, 2002) de par les hypothèses simplificatrices sur lesquelles il est basé, mais il n'en reste pas moins encore très utilisé aujourd'hui pour la construction de silos. Il donne une description simple et satisfaisante du phénomène d'écrantage dans les silos. Différents auteurs se sont intéressés à l'influence de la rigidité du fond sur la mobilisation de la friction aux parois (Williams *et al.* 1987), au rôle du ratio entre le diamètre du silo et celui des grains sur la valeur de la longueur caractéristique (Qadir *et al.*, 2010), à l'effet d'une friction aux parois variables selon la hauteur dans le cas d'un milieu élastique (de Gennes et Evesque, 1998), à la répartition des contraintes dans un silo à surface contrainte (Ovarlez, 2002), ou à l'influence de la densité du milieu, du paramètre K et du coefficient de friction sur les prédictions du modèle de Janssen (di Felice et Scapinello, 2010). Le modèle OSL est considéré comme une version locale de Janssen, pour lequel les contraintes ne sont plus supposées homogènes bien que la proportionnalité entre contraintes horizontales et verticales soit conservée (Ovarlez, 2002; Claudin, 1999).

*Le "trou du tas"* - Il a été montré que la répartition des contraintes à la base d'un tas de sable au repos dépend de l'histoire de la construction du tas. Si le tas est créé par versement à partir d'un point fixe, une chute de pression à la base est observée au centre du tas, là où justement on se serait attendu à mesurer une pression maximale. Ce "trou du tas" disparaît lorsque le tas est construit par versement en pluie (Figure II.36b). Observé pour la première fois en 1920, ce phénomène a été validé par Vanel *et al.* (1999) sur une base suffisamment rigide pour s'affranchir d'un effet de déformation du fond. Deux tas en apparence semblables présentent en réalité une distribution des forces différentes. La formation de voûtes permet de comprendre qualitativement l'existence du "trou du tas". Suite aux avalanches créées lors de la formation d'un tas à partir d'un point source, les voûtes seraient orientées de façon anisotrope, créant un report du poids des grains vers le côté du tas. Le centre est soulagé par création d'un minimum de pression à cet endroit.

*Plusieurs niveaux d'échelle* - Pour comprendre les phénomènes propres aux milieux granulaires, différentes approches sont possibles. L'étude des propriétés mécaniques des milieux granulaires fait appel à trois échelles d'observation : microscopique, mésoscopique (ordre de grandeur de la taille d'une voûte par exemple) et macroscopique (Bideau *et al.*, 1989). A l'échelle microscopique, chaque grain est considéré de façon individuelle. Le milieu granulaire se caractérise par un fort désordre structural où la non-homogénéité et la discontinuité des efforts sont observées. Il existe deux types de désordre microstructuraux et anisotropes. Le premier

correspond au désordre géométrique (distribution de taille et de forme des grains) et le second provient du désordre des contacts (distribution des distances intergranulaires) (Bideau *et al.*, 1989). Ces deux types de désordre permettent d'expliquer l'anisotropie de la structure de l'empilement granulaire. Les études à l'échelle microscopique visent à améliorer la compréhension de leur comportement macroscopique. La prise en compte des distributions des variables et des lois de probabilité permet d'expliquer d'une part l'anisotropie initiale du matériau et son évolution, et d'autre part la non instantanéité dans la transmission des forces au sein du milieu granulaire (Pham Van Bang, 2004). A l'échelle macroscopique, le comportement d'un volume élémentaire comprenant un "grand" nombre de grains, supposé homogène et continu, est modélisé par des lois rhéologiques. Bien sûr, cela implique le choix délicat de la taille du volume élémentaire, avec par exemple un critère en nombre de "chaînes de forces" (Ovarlez, 2002). Cette approche s'intéresse aux valeurs moyennes et continues des propriétés physiques du milieu granulaire. L'hypothèse de continuité du milieu permet de définir, dans le cadre de la mécanique des milieux continus, les notions fondamentales de tenseurs des déformations et des contraintes. Il est généralement admis que sur des volumes de quelques dizaines de particules, la définition d'un tenseur des contraintes à partir des forces inter-particulaires a un sens (Pouliquen, 2002). L'approche traditionnelle est alors celle de la mécanique des sols. Le critère de Mohr-Coulomb (Brown et Richards, 1970; Nedderman, 1992) est souvent utilisé afin de décrire les milieux granulaires à la rupture. Il se base sur le concept de friction. Un matériau cède lorsque le cisaillement  $\tau$  sur une facette atteint la valeur critique ( $\tau = \tan\phi \cdot \sigma + c$ ), où  $\sigma$  est la contrainte normale sur la facette,  $c$  est la contrainte de cohésion et  $\phi$  est l'angle de friction interne. S'il on attribue la contrainte de cohésion aux ponts capillaires et si l'on identifie l'angle interne à l'angle de friction grain/grain, le critère de Mohr-Coulomb semble adapté pour décrire la dépendance de l'angle d'avalanche avec le coefficient de friction des grains et l'humidité (Ovarlez, 2002).

L'étude des milieux granulaires relève donc de la physique moderne et le nombre de questions encore sans réponses est important. L'intérêt des scientifiques est élevé tant les applications de ces études sont considérables (Claudin, 1999) et en particulier dans l'industrie agro-alimentaire pour la transformation de produits céréaliers.



## **II.7. Conclusions**

### **Qualification du sujet de recherche suite à l'étude bibliographique**

Cette synthèse bibliographique démontre la grande richesse des informations disponibles sur les matériaux granulaires, en particulier concernant leurs propriétés particulières, sur les mécanismes et les technologies d'agglomération humide de poudres, mais aussi sur les outils de caractérisation et de contrôle du procédé d'agglomération. L'importance des enjeux liés aux applications industrielles est considérable et explique le fort intérêt de de la communauté scientifique (essentiellement du génie des procédés, de la science des aliments et du génie pharmaceutique) pour l'agglomération humide de poudres. L'un des enjeux majeurs de ces disciplines consiste à proposer de nouveaux critères, des diagrammes de fonctionnement rationalisés, des aides à la conduite des procédés ou encore de nouveaux procédés en rupture avec les technologies actuelles. Il apparaît clairement que l'introduction de sciences plus fondamentales comme la physique de la matière molle ou la mécanique des milieux granulaires couplée à des techniques modernes d'investigation, permettra d'identifier plus finement les mécanismes d'agglomération en lien avec les paramètres du procédé. Ces challenges sont complexes et doivent être menés de front et de façon cohérente. Les études se doivent aussi d'intégrer la complexité des systèmes granulaires étudiés. Le « modèle de la bille de verre » est difficilement adaptable à des poudres industrielles comme le sont les poudres alimentaires. Leur réactivité aux échelles de la particule, des mécanismes et du procédé, n'est pas encore entièrement comprise et maîtrisée, malgré les avancées des équipes de physiciens de la matière en grains. Les industriels de leur côté, s'approprient difficilement ces nouvelles notions et peinent à appliquer les concepts à leurs filières de production, a fortiori lorsqu'il n'y a pas de filière pilote comme c'est le cas pour la production de couscous. Notre travail en science des procédés portera donc essentiellement sur cette connexion entre physique et technologie. C'est dans ce contexte général, qu'il est important de garder à l'esprit, que nous exploiterons les données bibliographiques présentées dans ce manuscrit.

### **Contexte spécifique de l'agglomération**

Les mécanismes d'agglomération humide en mélangeur-granulateur peuvent être divisés en trois catégories : mouillage et nucléation, consolidation et croissance, et enfin, rupture et attrition. D'autres transformations existent comme le mélange de la poudre initiale, l'atomisation liquide,

et la dispersion du liquide de mouillage au sein du lit de poudre. La multiplicité de ces transformations, qui présentent des interactions complexes, rend le résultat de l'agglomération encore difficile à prévoir, aussi bien en terme de rendement matière, de coût énergétique, ou de qualités des agglomérats obtenus. Une meilleure détermination des relations couplant les variables opératoires aux propriétés physico-chimiques des agglomérats est aujourd'hui nécessaire pour l'amélioration de la compréhension du procédé d'agglomération. Ceci est particulièrement d'actualité dans les industries de transformation des céréales, par exemple pour la fabrication de couscous, qui manque encore de fondements théoriques, pré-requis à une amélioration du contrôle et de l'efficacité du procédé industriel.

L'agglomération humide de particules nécessite impérativement des apports d'eau et d'énergie mécanique (par un outil de transmission mécanique ou bien par apport pneumatique). Concernant l'apport d'eau par pulvérisation, un paramètre opératoire pertinent est la distribution de taille des gouttes formées. En effet, il a été montré que la taille des premières structures formées (*i.e.* nuclei) dépend en partie de la taille des gouttes si la nucléation a lieu selon le mécanisme d'immersion. Toutefois, aucun modèle prédictif à la fois simple et générique permet de relier la distribution de taille des gouttes aux paramètres opératoires et de formulation du procédé d'atomisation et ce, indépendamment du système de pulvérisation employé. Concernant l'apport d'énergie mécanique, la littérature montre que l'énergie mécanique induit des collisions entre particules, qui influent sur les mécanismes d'agglomération et leurs vitesses. Ces collisions dépendent à la fois des mouvements relatifs de particules individuelles et de l'écoulement d'ensemble à l'échelle du lit. Peu d'informations sont disponibles sur les relations entre la contrainte appliquée par la pale et les écoulements granulaires, qui permettent la transmission des contraintes sur des volumes de poudre caractéristiques. Des études récentes fournissent une première image des champs de contrainte et de vitesses et de la façon dont ils évoluent au cours du procédé mais beaucoup reste encore à faire. Une étude plus détaillée de ces champs de contrainte et d'écoulement est nécessaire pour accéder aux distributions de cisaillement et de vitesses, et donc à la fréquence et à l'intensité des collisions inter-particulaires. Citons le phénomène de « shear-banding » qui vient compliquer la description en générant une discontinuité du champ de vitesse. La taille caractéristique d'établissement d'un gradient de vitesse est donc une quantité à mesurer et à paramétrer en fonction des caractéristiques des milieux granulaires et des paramètres opératoires. Dans le même sens, il est nécessaire de proposer une méthodologie adéquate et universelle pour estimer l'ampleur des contraintes générées dans les mélangeurs et pour les relier aux caractéristiques physiques des agglomérats

(e.g. résistance mécanique, cohésion, friction, etc.) au cours de leur formation. La quantification des contraintes granulaires et des champs de déplacement est un domaine d'étude émergent qui devrait permettre d'améliorer l'aptitude à la modélisation et ainsi, de fournir des informations pour le développement d'équipements adaptés et le contrôle du procédé.

La modélisation, à l'échelle des phénomènes impliqués, constitue un outil de représentation des mécanismes d'agglomération. La littérature, avec notamment tous les travaux de « l'école australienne », propose des nombres adimensionnels servant à décrire les régimes de nucléation et de consolidation-croissance au travers de diagrammes de fonctionnement. Bien qu'intéressants, ces outils ne peuvent souvent pas être directement utilisés à cause de la difficulté inhérente à la détermination de certains paramètres comme la vitesse de collision des particules par exemple. Souvent approximée par la vitesse de bout de pale, cette vitesse de collision peut néanmoins être déterminée expérimentalement. Parmi les différentes techniques permettant d'accéder aux vitesses en mélangeur, la PEPT et l'acquisition d'images à vitesse rapide (technique PIV) semblent aujourd'hui très prometteuses. Plusieurs régimes d'écoulements granulaires ont pu être mis en évidence grâce à ces outils. Un travail supplémentaire doit être mené pour définir de façon plus précise le comportement de la poudre et les collisions résultantes selon les paramètres opératoires, et pour « affiner » les frontières des cartes de régimes (*i.e.* régimes de nucléation, de croissance et d'écoulement).

D'autre part, les scientifiques ont encore beaucoup de difficulté à analyser et à modéliser l'interaction d'un fluide interstitiel dans un milieu granulaire humide. Ainsi, la plupart des études sur les milieux granulaires, s'intéressant à la distribution des contraintes dans un empilement ou aux écoulements de particules, ont porté sur des milieux secs en absence de mouillage. Pourtant une augmentation de la cohésion inter-particulaire modifie fortement les propriétés mécaniques du milieu granulaire ainsi que sa réponse à une contrainte extérieure. En statique, le modèle de Janssen est présenté comme donnant une représentation fiable de la répartition des contraintes verticales dans un milieu granulaire sec. L'influence de la cohésion d'un milieu humide sur la distribution des contraintes d'un milieu granulaire latéralement confiné n'a actuellement jamais été étudiée alors même que beaucoup de procédés industriels (agroalimentaires, pharmaceutiques, génie civil, etc.) mettent en œuvre des milieux granulaires humides. De même, dans tous les travaux portant sur la théorie de Janssen, les contraintes sont toujours mesurées de façon globale, à l'échelle de la section entière de la colonne. La distribution de la contrainte locale, définie sur une plus petite surface que la section de la colonne de grains n'a jamais été

étudiée à notre connaissance. Une étude portant sur l'établissement d'une corrélation potentielle entre l'état statique du lit granulaire et son comportement sous sollicitation mécanique semble a priori nécessaire pour mieux appréhender la contribution de l'apport mécanique aux champs de contrainte et de déplacement en dynamique.

Cette revue bibliographique montre l'existence de différentes techniques pour la caractérisation et le suivi en ligne du procédé d'agglomération humide. L'utilisation de courbes de consommation énergétique (*e.g.* couple ou puissance) pour caractériser l'agglomération humide est une technique aujourd'hui bien établie. Toutefois, la proportion d'énergie mécanique réellement utilisée par les mécanismes d'agglomération en comparaison avec l'énergie consommée pour déplacer la pale à vide et de l'énergie dissipée n'a pas été déterminée expérimentalement alors même qu'il apparaît de plus en plus nécessaire de proposer des procédés moins coûteux en énergie. L'amélioration des rendements énergétiques impliquerait l'étude de l'influence des modalités d'apport d'eau et des paramètres opératoires sur les profils de consommation énergétique générés. La spectroscopie proche infra-rouge constitue une autre technique de suivi en ligne qui connaît un intérêt grandissant pour la description du procédé d'agglomération humide, la vérification de son bon déroulement et la détermination d'un temps optimum d'agglomération. Des travaux récents ont montré le fort potentiel de cette technique pour l'étude de l'agglomération humide de produits céréaliers, comme la farine de blé, ou des produits pharmaceutiques. Il est aujourd'hui nécessaire d'aller plus en avant dans l'étude de faisabilité de l'utilisation de la spectroscopie PIR pour le suivi cinétique de changements physiques et chimiques de matériaux granulaires au cours de l'agglomération humide.

### **Démarche générale issue de l'état de l'art sur le sujet**

L'étude bibliographique a mis en évidence les résultats consolidés, qui ont rejoint pour la plus part le domaine de l'ingénierie des poudres, ainsi que les problématiques scientifiques encore non résolues, liés au procédé d'agglomération en voie humide. Cette synthèse nous conduit à structurer ce travail de recherche selon quatre axes majeurs présentés figure I.1.

## **Chapitre III. Matériels et méthodes**

---



This chapter presents a thorough description of all the materials and methods used in this research work. The reader will also find detailed explanations on materials and methods in each of the papers presented in the Chapter IV of the manuscript.

### **III.1. Granular raw materials**

*Wheat powder* - Durum wheat semolina of industrial quality (Panzani, France) is used to describe the behavior of a typical complex granular medium from biological origin, largely used as raw material in many industrial food processes (*e.g.* pasta and couscous manufacturing). Semolina is stored in hermetic containers at 4°C until measurements.

*Glass beads* - As a reference powder, experiments are also carried out on monodisperse glass beads that constitute a classical model granular medium.

### **III.2. Analytical characterization of granular raw materials**

*Chemical composition* - Water contents of native semolina is determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods (AACC, 2000). The total nitrogen content (TN) is determined in triplicate by the Kjeldahl method and the crude protein content ( $12.4 \pm 0.1$  g per 100 g of semolina) is calculated according to  $TN \times 5.7$  (NFV 03-050).

*True density* - The true density of native semolina ( $\rho_s^* = 1.478 \pm 0.005$  g.cm<sup>-3</sup>) and glass beads ( $\rho_s^* = 2.533 \pm 0.001$  g.cm<sup>-3</sup>) are determined in triplicate using a nitrogen pycnometer (Ultrapycnometer 1000, Quantachrome Instruments).

*Particle size* - Particle size distribution of native semolina is measured in triplicate by using laser granulometry (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. Semolina is characterized by volume-equivalent diameters for which the number of particles is inferior to 10 ( $d_{10}$ ), 50 ( $d_{50}$ ) and 90% ( $d_{90}$ ) of the total number of particles. The span is calculated as  $d_{90}/d_{10}$ .

*Wall-grain friction coefficient* - The coefficients of friction between the grains and a glass surface ( $\mu$ ) are determined using a mobile glass wall equipped with a numerical inclinometer

(Ovarlez *et al.*, 2003). Grains are disposed on the horizontal glass wall. The glass wall is then progressively inclined from the horizontal. The frictional angle ( $\theta$ ) is then measured at the sliding of the grains. The wall friction coefficients for semolina ( $\mu = \tan \theta = 0.38 \pm 0.04$ ) and glass beads ( $\mu = 0.23 \pm 0.01$ ) are calculated based on twenty measurements. The higher value of wall friction coefficient for semolina particles than for glass beads could be explained by a higher level of friction of the semolina in contact with a glass surface.

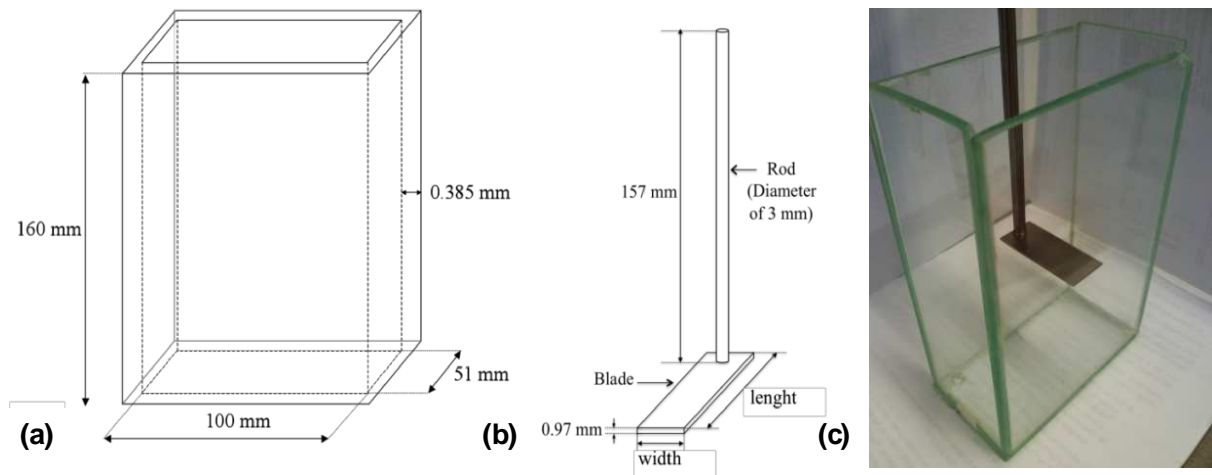
Slope angle - The slope angles of native semolina ( $\alpha = 43.8 \pm 0.3^\circ$ ) and glass beads ( $\alpha = 23.6 \pm 0.1^\circ$ ) are measured in triplicate using a powder tester (Erweka, France).

### **III.3. Static and dynamic behaviors of granular materials under mechanical inputs**

An original experimental equipment has been specifically developed to allow the establishment of vertical stress profiles in a laterally confined powder bed under static and dynamic conditions as well as the determination of 2D flow fields and velocity gradients of particles during an upward blade motion using a high speed camera coupled with a particle image velocimetry technique.

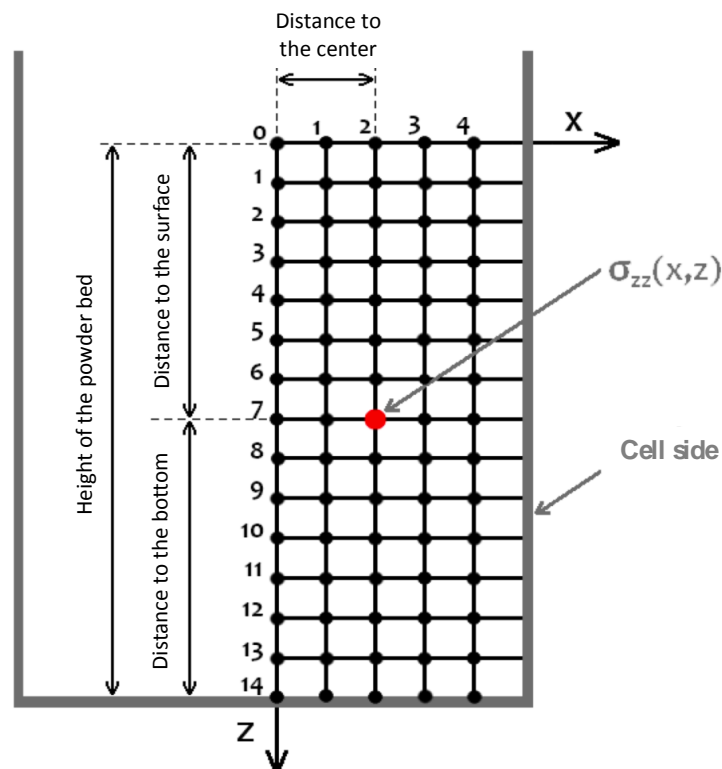
The uniaxial mixing cell - An open glass cell container (51 x 100 x 160 mm) made of five transparent glass walls (sides and base) is specially built for the present study (Figure III.1). Four flat and rectangular steel probes of different dimensions and constant thickness (0.97 mm) are especially designed (Cryotec, France) to fit into the glass container. Three small probes (length x width: 45.1 x 5.04 mm; 44.6 x 9.95 mm; 44.8 x 19.7 mm), which are analogous to a blade of a mixing device, allow local measurements of the vertical stress in the powder bed. A large probe (length x width: 50.5 x 98.5 mm) is used to simulate the bottom of the cell and allows a global measurement of the vertical stress. The probe is screwed on a rod that is linked to a load cell of a texture analyser (TA.XT2, Table Micro System), which is used as a force sensor and allows an ascendant vertical motion of the blade (*i.e.* small probes) associated with an adjustable blade speed.





**Figure III.1.** Schematic representations of the experimental set-up. (a) Glass cell. (b) Blade (not to scale). (c) Picture of the empty cell with the blade fixed to the rod.

Vertical stress under static conditions - Static stress tests are performed on different granular materials (native semolina, glass beads and wet agglomerates of different water contents). (i) The probe is first positioned in the empty cell. (ii) Powders are sprinkled with a funnel (outlet diameter of 1.23 cm), placed in the middle of the cell, at 50 mm height from the upper side of the cell, until powders reach a definite height in the cell. (iii) Static stress measurement is carried out for 2 sec.



**Figure III.2.** Schematic representation of the small probe positions in the cell for static stress measurements.

When using the **large probe**, the probe position is fixed at the bottom of the cell and stress measurements are carried out at different heights of the powder bed ( $1 < H < 14 \text{ cm}$ ).

When using the **small probes**, the height of the powder bed is constant ( $H = 14 \text{ cm}$ ) and measurements are carried out at different probe positions in the powder bed. The small probe position in the cell is defined according to the horizontal ( $x$ ) and vertical ( $z$ ) axes (Figure III.2). Three position parameters are defined. The horizontal position ranges from  $x = 0$ , at the center of the cell, to  $x = 5 \text{ cm}$ , at the side wall. The vertical position ranges from  $z = 0$ , at the surface of the powder bed, to  $z = H$  where  $H$  is the powder bed height. The third position parameter is related to the vertical distance to the bottom of the cell (Figure III.2). The probe is always placed at 0.2 mm from the front wall of the cell (Figure III.1c).

As different studies demonstrate a marked influence of the construction procedures on stress distributions in a granular pile (Brockbank *et al.*, 1997; Vanel *et al.*, 1999; Tixier *et al.*, 2004), we take care to keep constant and reproducible the filling procedure of grains in the cell. Experiments are realized at constant powder bed compactness for each tested granular medium. The initial compactness of the powder bed is evaluated by weighing the powder mass  $M_t$  contained in the cell filled with 14 cm of powder. The compactness ( $\phi$ ) is calculated using equation III.1:

$$\phi = \frac{V_s}{V_{sample}} = \frac{M_t}{\rho_s^* V_{sample} (1 + w)} \quad (\text{Eq.III.1})$$

with  $V_s$  the solid volume of powder in the cell,  $V_{sample}$  the total volume of powder in the cell ( $V_{sample} = 701.5 \text{ cm}^3$ ) and  $w$  the powder water content (dry basis). The good reproducibility of the filling procedure of powders in the cell is assumed to allow a good reproducibility of the compactness from one powder bed to the other for a fixed type of powder. However, no standard deviation of the powder compactness has been calculated.

Force measurement under static conditions (without any movement of the blade) is done at the probe position during 2 sec. The entire procedure (*i.e.* probe positioning, cell-filling with powder and force measurement) is repeated five times for each probe position (or powder bed height). An average value of the vertical stress  $\sigma_{zz}(x, z)$  is calculated from the five force measurements carried out at the same depth (or for the same powder height) by dividing the measured force by the probe surface. It can be noted that for each type of powder the same powder sample is used

for only ten stress measurements so as to avoid particle segregation which can appear during the filling and emptying steps occurring between successive static stress tests. The measurement order of the vertical stress at the different probe depths (or for the different powder heights) is randomised and as a result, a same sample of powder is used to measure vertical stress at different probe depths (or for different powder heights). Static tests are performed on different samples of the same type of powder, at the same depth of the blade position when using the small probes, or for the same height of powder when using the large probe.

Vertical stress under dynamic conditions - Force measurements are carried out during the vertical rise of the small probes, also named blades, in the container. Before each test, the blade is taken down to the bottom of the cell and the granular material is poured in the cell with a funnel (outlet diameter of 1.23 cm) to reach a constant height of 14 cm. Force measurements are then conducted when the blade is moving up at different blade speeds (from 2.5 to 40 mm.s<sup>-1</sup> for durum wheat semolina, and 30 mm.s<sup>-1</sup> for wet agglomerates of different water contents) with five replications each.

PIV measurements - The visualization of the behaviour of native semolina in the neighbourhood of a blade in ascendant vertical motion is carried out using a high-speed camera of type CMOS monochrome, with a recording frequency of 100 frames per second and image resolution of 1392 x 1024 pixels. The camera is placed in front of the mixing device and the glass wall surface is illuminated by halogens lamps. The area of interest is 0.14 x 0.10 m, which corresponds to the size of the 2D granular bed. The number of images recorded during the vertical blade motion depends on the blade speed. The particles' motions in two dimensions have been studied by a particle image velocimetry analysis. PIV techniques consist in determining the distance covered by the particles in the time between two consecutive frames (Lueptow *et al.*, 2000). In the case of granular flow, because the number of tracer is high, it is not possible to measure the displacement of each tracer separately. Each 8-bit frame is thus divided into interrogation areas of 32 x 32 pixels, each with an overlap of 60%. PIV calculations are performed using the Direct PIV software (R&D Vision, France). A separate grain of semolina is described approximately with 7 pixels. A single-pass process is performed between each two consecutive frames and a velocity vector is calculated for each of the interrogation areas. An iterative local filter (with 75% maximum and 10 iterations) is applied in order to eliminate wrong vectors. Instant velocity fields are obtained for the entire granular bed under vertical solicitation and represented using a classical colour scale (Tecplot Focus).

### III.4. Liquid materials, spraying systems, and drop size measurements

Liquids - Tap water is mainly used as liquid during agglomeration experiments. Different ternary liquid mixtures, based on deionized water, ethanol, and/or glycerin, are also used to investigate the physico-chemical effects of liquid on the drop size. Ethanol is used to generate different surface tensions because its adsorption kinetic at the surface of droplets is instantaneous (Marmottant, 2001). Glycerin is selected for its newtonian behavior and for its aptitude to offer a large range of viscosity in the presence of water and ethanol.

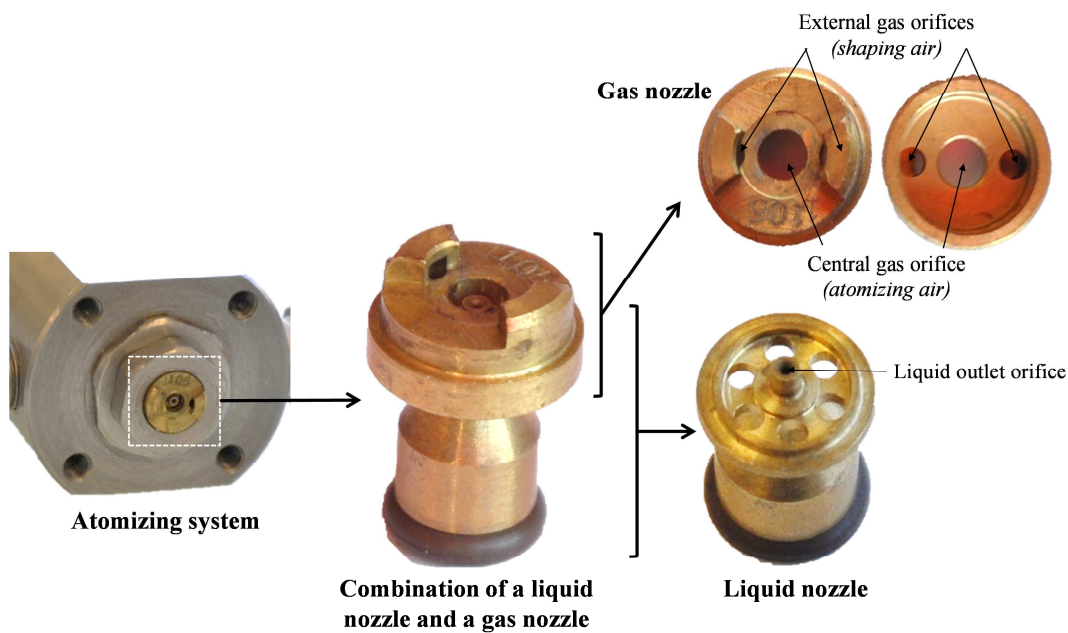
Liquid characterization - The surface tensions of the solutions (between 42 and 62.5 mN/m) are measured in triplicate using a tensiometer Kruss K100 (Kruss, Germany) according to the method of the Wilhelmy plate. The viscosities of the solutions are measured in triplicate using a rheometer Physica MCR 301 (Anton Paar, Austria) equipped with a double gap mobile. The fluid is put in temperature at 25°C during 2 minutes. Viscosity measurements are carried out at a shear rate of 2 000 s<sup>-1</sup> during 10 s. and a flow curve is built in the range 2 000 - 0.1 s<sup>-1</sup> (in 25 minutes). The tested fluids present a newtonian behaviour in this range of shear rates. The densities of the solutions are measured in triplicate using a 50 ml liquid pycnometer.

Atomizing systems - The water input during the agglomeration processes is conducted using different nozzles systems. A single-fluid atomizing system and an external two-fluid pneumatic atomizing system (Spraying Systems Co., France) are used to produce a flat spray of droplets. The single-fluid system (Figure III.3) can be equipped with two different nozzles (ref. TPU 650017 and 6501), geometrically similar except for the inside diameters of the liquid outlet slit (respectively 0.28 and 0.66 mm). The flat spray nozzle is either connected to a regular water supply network with a stable pressure or to a peristaltic pump (520S/REM, Watson Marlow, France) in order to better control the liquid flow rate.



**Figure III.3.** Picture of the single-fluid atomization nozzle (Spraying Systems Co., France).

The external two-fluid system is made of a combination of a liquid nozzle and a gas nozzle (Figure III.4). Three external two-fluid systems with three different ratios of the atomizing gas outlet diameter to the liquid outlet diameter are used: 33.2 (ref. SUJE 416-50 combined with PAJ105-50), 26.3 (ref. SUJE 418-50 with PAJ105-50), or 21 (ref. SUJE 420-50 with PAJ135-50) (Table III.1). The higher is the inside diameter of the liquid outlet slit, the higher are the liquid flow rates tested during atomization. Although it has been shown that the spray angle and the shape of the spray can be influenced by process parameters (water flow rate, air pressure) and liquid properties (Jimenez, 2007; Hede *et al.*, 2008), we consider a constant flat spray angle of 50° (supplier value) for the study.

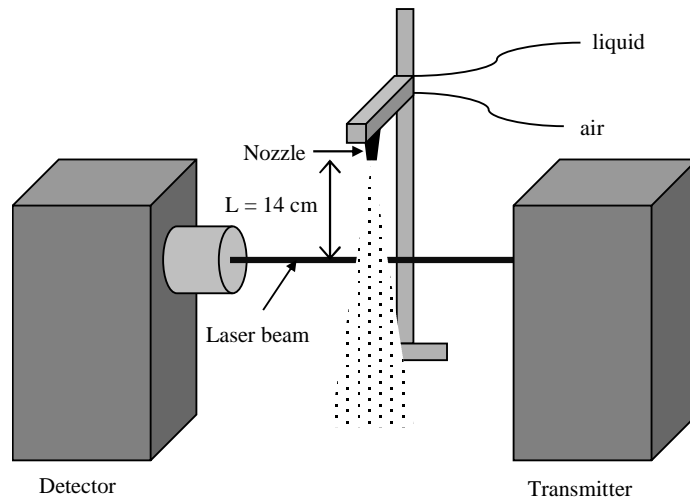


**Figure III.4.** Pictures of the external two-fluid atomization equipment (Spraying Systems Co., France).

**Table III.1.** Principal dimensions of the three two-fluid atomizing systems used in the experiments.

<i>Liquid nozzles</i>	Inside diameters of outlet slits (mm)	<i>Gas nozzles</i>		Gas-to-liquid ratios of the outlet diameter
		<i>PAJ 105-50</i>	<i>PAJ 135-50</i>	
<i>SUJE 416-50</i>	0.41	X		33.2
<i>SUJE 418-50</i>	0.46	X		26.3
<i>SUJE 420-50</i>	0.51		X	21

Drop size measurements - Liquid droplet sizes are measured by laser diffraction using the Spraytec<sup>®</sup> (Malvern, France). The extremity of the nozzle is set at a fixed distance  $L = 14\text{ cm}$  above the laser beam (Figure III.5) as it corresponds to the distance between the nozzle and the powder surface during the wet agglomeration process. Droplet sizes are measured during 2 min and different parameters are calculated. The  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ , and  $d_{90}$  volume diameters represent the equivalent diameters at which respectively 10, 50 and 90% of the total volume of droplets are inferior. The Sauter mean diameter ( $d_{32}$ ) is the diameter of a droplet having the same volume-to-surface area ratio as the total volume of all the droplets to the total surface area of all the droplets. The De Brouckere mean diameter corresponds to the mean of the volume distribution ( $d_{43}$ ). The droplet size span is calculated as  $(d_{90} - d_{10})/d_{50}$ .



**Figure III.5.** Sketch of the specific atomization experiments to evaluate droplet size by laser diffraction.

Atomization experiments are carried out at 20°C. The liquid is brought to the nozzle at constant flow rate using a peristaltic pump (520S/REM, Watson Marlow, France). Calibration of the liquid flow rate is carried out with water between 15.4 and 26.6 m.s<sup>-1</sup> for the single-fluid nozzles, and between 4.1 and 76.8 m.s<sup>-1</sup> under 0.5 bar of relative air pressure for the two-fluid nozzles. It was checked that the liquid flow rate measured at the outlet of the two-fluid nozzles does not change significantly when relative air pressure is increased up to 2.5 bar. The relative air pressure for the two-fluid nozzles is adjusted (between 0.5 and 2.5 bar) using a pressure reducer. The influence of the outlet liquid speed is investigated between 15.4 to 26.6 m.s<sup>-1</sup> for the single-fluid nozzles and between 4.1 and 76.8 m.s<sup>-1</sup> for the two-fluid nozzles.

### III.5. Wet agglomeration experiments

This part introduces the different low shear mixers and process conditions used for the wet agglomeration experiments as well as the equipments and related methods used to follow in-line the agglomeration process by NIR spectroscopy and energetical consumption measurements.

#### III.5.1. Low shear mixers and probes

Three types of vertical low shear mixers are used in this research work: Labo 25 Mahot (VMI, France), SPI10 (VMI, France) and Kenwood Major 1200 (Kenwood, United Kingdom) (Figures III.6-9), in order to test different bowl and blade geometries. We also had to choose different mixers as we were subjected to different availability periods of these equipments in the lab.

Labo 25 Mahot - The Labo 25 Mahot is used to produce wet agglomerates which are further used for static and dynamic stress measurements in the uniaxial mixing cell (Figure III.6). The Mahot mixer is equipped with a 10 liters rotating bowl and a concave-shape blade which rotates around an oblique axe. The motor used for rotating both the bowl and the blade is the same and as a consequence the speed ratio between the blade and the bowl is always equal to 8.5. Both blade and bowl have an anti-clockwise rotation.



**Figure III.6.** Labo 25, Mahot (VMI, France) low shear mixer equipped with the atomization system.

SPI10 mixer & NIR probe - The SPI10 mixer is used to produce wet agglomerates in order to describe and follow in-line the wet agglomeration process using a NIR spectroscopy technique. The mixer is equipped with a 10 liters rotating bowl and contains a spiral blade (Figure III.7).

Two different motors are used to induce both blade and bowl rotations. As a consequence, the rotation speed and direction of the blade and the bowl are independently controlled.

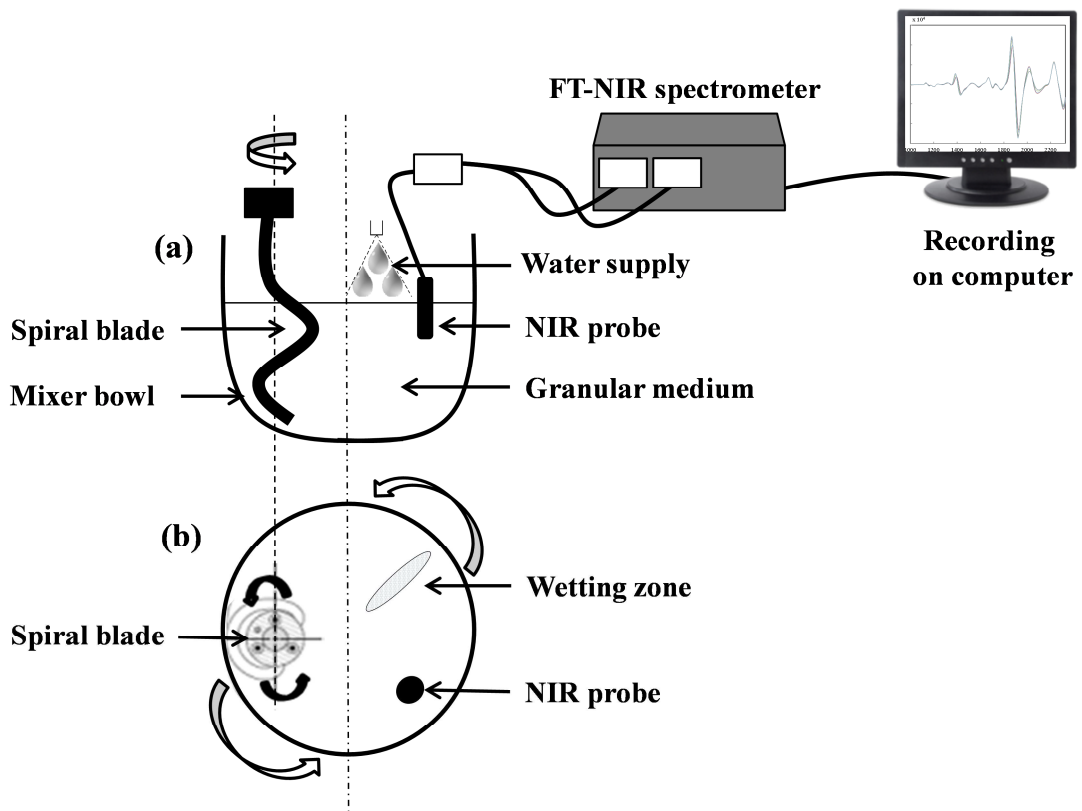


**Figure III.7.** Low shear mixer SPI10 (VMI, France) equipped with a spiral blade and the atomization system (Spraying Systems Co., France).

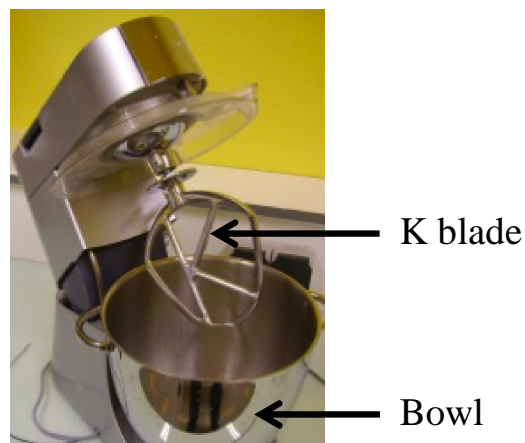
NIR spectra during agglomeration process are recorded using a Nicolet Antaris FT-NIR Analyser (Thermo Electron Corporation, France) (Figure III.8). The NIR instrument is connected to a fiber optic probe positioned inside the SPI10 mixer, allowing contact with the product during mixing (Figure III.8). The NIR spectrometer gathers spectra in the range 1000–2500 nm at 2 nm intervals, 12 scans per 6 s which are averaged to give 1 spectrum each 1 sec, and represented as values of  $\log(1/R)$  as a function of wavelength (nm). The NIR spectra are recorded during mixing and wetting stages, and analyzed using MATLAB 7.0.4 software (The MathWorks, Inc). A second derivative treatment of the raw spectra is performed using the Savitsky–Golay derivative available in the PLS ToolBox (Eigenvector). The smoothing and derivative parameters, filter width, polynomial order and derivative order are respectively 61, 2, and 2.

Kenwood & Wattmeter - The planetary mixer Kenwood Major 1200 (Kenwood, United Kingdom) is equipped with a 5 liters fixed bowl and a K blade that rotates around a vertical axis in an adjustable speed range (Figure III.9). This mixer is exclusively used for energetical consumption measurement in this reasearch work. The measurement of the electric consumption of the mixer engine is continuously carried out via a wattmeter (Wattcom®). Electric input power curves are smoothed thanks to the Origin® 95 software.





**Figure III.8.** Schematic representation of the experimental set-up used for the in-line monitoring of the wet agglomeration of durum wheat semolina by NIR spectroscopy.



**Figure III.9.** Kenwood Major 1200 (Kenwood, United Kingdom) low shear mixer used for energetical measurements and equipped with a K blade.

### III.5.2. Protocols for wet agglomeration experiments

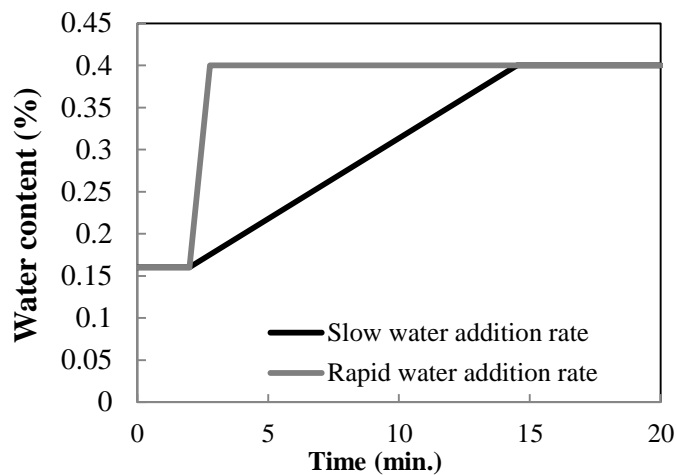
General protocol - Wet agglomeration experiments are divided into four stages:

- *Stage 1.* Rotating the bowl and the blade with no load (between 0 and 60 min).
- *Stage 2.* Rapidly pouring a certain mass of semolina in the bowl and then, mixing for a certain time (between 2 and 60 min) without water addition in order to homogenize the initial powder and to equilibrate the temperature (at 20 °C).
- *Stage 3.* Water is added either by spraying directly on the semolina bed using one of the available spraying nozzles, or by rapidly pouring with a trickle of water (in less than 10 sec). Different amounts of water are added in order to reach different hydration levels (between 0.22 and 0.55 g water / g dry matter). For the spraying method, the liquid flow rate and the time of spraying are adjusted to reach the desired final water content.
- *Stage 4.* Wet masses are mixed for homogenization (between 2 and 60 min).

Agglomeration with the Labo 25 mixer - The bowl and blade mixing speeds are kept constant during the entire experiment and are respectively fixed at 9 and 80 rpm. Mixing with no load is not carried out (*stage 1*). A mass of 1.5 kg of semolina is directly poured in the bowl and mixed for 2 min (*stage 2*). During the *stage 3*, different water contents are reached (between 0.25 and 0.55 g water/g dry matter) by spraying water at 24 mL.min<sup>-1</sup>, using nozzle TPU650017 connected to a regular water supply network. In these conditions, the spraying times (between 4 and 20 min) are similar to the total mixing time of the experiment (between 8 and 24 min). The wet homogenization time (*stage 4*) is fixed at 2 min. Then, wet agglomerates are sampled and used for static and dynamic stress measurements in the uniaxial mixing cell.

Agglomeration with the SPI10 mixer - The bowl and blade mixing speeds are kept constant during the entire experiment and are respectively fixed at 9 and 80 rpm. Mixing with no load is not carried out (*stage 1*). A mass of 1.5 kg of semolina is directly poured in the bowl and mixed for 2 min (*stage 2*). The final water content is fixed at 40% (dry basis). For the *stage 3*, two types of water supply conditions (slow vs. rapid) are tested depending on the relative time of spraying compared to the total time of mixing (Figure III.10). For water addition under slow rate conditions (at 24 mL.min<sup>-1</sup>), water is sprayed using nozzle TPU650017 connected to a regular water supply network. In these conditions, the spraying time (12.5 min) is similar to the total mixing time of the experiment. For water addition under rapid rate conditions (at 383 mL.min<sup>-1</sup>), water spraying is conducted using nozzle TPU6501 connected to a peristaltic pump. The time of

spraying is then short (between 47 sec) compared to the total time of mixing. For both water supply conditions, the homogenization stage is carried out during different mixing times without water addition (between 2 and 60 min). On-line recording of NIR spectra is carried out during the agglomeration of semolina using the two different water supply conditions, for one final water content of 40 % (dry basis).



**Figure III.10.** Typical examples of the two conditions for water addition rates (slow and rapid rates) during the agglomeration process experiments (to reach a final water content of 40%).

Agglomeration with the Kenwood mixer - As a baseline, the energy consumption by the motor is first measured for no-load mixing over 60 min (*first stage*), at different blade rotation speeds (70, 80, or 90 rpm). To evaluate the energy consumption to transport inert load, the energy consumption by the motor is measured during 60 min, after the rapid introduction (10-15 sec) in the mixer bowl of different masses of durum wheat semolina (1125, 1875, or 2625 g) without adding water (*second stage*). Experiments are carried out at different blade rotation speeds (70, 80, or 90 rpm). Different conditions of water content are also tested at 70 rpm and under constant mass load (semolina + water = 1875 g). Water is rapidly introduced (10-15 sec) in the mixer bowl containing the semolina (*third stage*). Mixing is remained for an additional 60 min period (*fourth stage*). Different water contents (22, 27, 32, 35, 38, or 42 g water / 100 g dry matter) are studied.

Dimensionless spray flux values - Concerning the wet agglomeration experiments with water spraying, the droplet diameters have been estimated to 170  $\mu\text{m}$  and 141  $\mu\text{m}$ , respectively for the slow and rapid water flow rates. By combining the two investigated water flow rates with the selected mixing speeds, we can indicate that the agglomeration processes are conducted under

two different dimensionless spray flux values (respectively equal to 0.2 and 5.2). These values correspond to the intermediate regime of nucleation (*i.e.* spray flux between 0.1 and 10) according to Hapgood *et al.* (2003). However, the slow flow rate induces a spray flux closer to the drop control regime than the spray flux using rapid flow rate, which is then closer to the mechanical dispersion regime. Concerning the wet agglomeration experiments with direct pouring of water (using the Kenwood mixer), no dimensionless spray flux can be calculated. However, the nucleation regime certainly corresponds to the mechanical dispersion regime.

### **III.6. Analytical methods to characterize the wet agglomerates**

Water content - Water contents of agglomerates are determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods (AACC, 2000).

Partice size distribution - Particle size distribution of agglomerates is measured in triplicate immediately after mixing: 100g or 250 g of the wet mass are sampled and sieved for 2 min over a column of 10 metallic sieves (or more) of decreasing mesh (2; 1.250; 0.900; 0.800; 0.710; 0.630; 0.500; 0.400; 0.315 and 0.250 mm) (Figure III.11). For each wet mass, the granulometric distribution is obtained by weighing the mass of grains obtained on each sieve. The weight distribution according to size criteria is then expressed as the percent of total weight.



**Figure III.11.** Sieving device used for the size distribution measurements of wet agglomerates.

Solid volumic fraction - To evaluate the solid volume fraction of the bed bulk, five samples are collected for each granular medium tested using a cylindrical metal ring ( $V = 1.69 \text{ cm}^3$ ). Each sample collected is weighed. The solid volume fraction ( $\Phi$ ) is determined using Eq.III.2.

$$\Phi = \frac{m_s}{\rho_s^* V_s} \quad (\text{Eq.III.2})$$

where  $\rho_s^*$  is the true density of native semolina,  $V_s$  is the sample volume, corresponding to the ring volume, and  $m_s$  is the mass collected using the metal ring after drying. The solid volume fraction is given as the mean of five measurements.

Shear tests - The cohesion of the agglomerated powders is evaluated with the FT4 powder rheometer (Freeman Technology Ltd., Worcestershire, UK). Before each test, the powder sample is gently conditioned mechanically through the gentle action of the conditioning blade (*i.e.* helix angle of  $-5^\circ$ , 23.5 mm in diameter). The conditioning blade is first introduced in the empty system (*i.e.* two superimposed 50 x 50 mm vessels), before the powder sample is introduced. The powder sample is then gently filled using a large spatula in the test vessel. The conditioning stage consists in slicing the powder bed from the bottom to the top at constant tip speed ( $60 \text{ mm.s}^{-1}$ ) to remove any excess air and create a uniform powder bed in a low stress packing state. The FT4 powder rheometer is able to measure the torque required to move a torsional shear head at a specified shear rate and normal stress (Freeman *et al.*, 2009). After the initial conditioning cycle of the powder, sample is then pre-consolidated using a vented piston (48 mm diameter), at a normal stress of 15 kPa for 60 sec. The upper cylindrical vessel is split to remove the excess powder material so that the volume of the powder sample is maintained constant (393 ml) in the 50 x 50 mm cylindrical borosilicate test vessel. The shear tests are conducted using a specific shear cell (48 mm in diameter) that consists of 18 vertical segments (blades) ensuring that the shear process occurs within the bulk solid. The pre-consolidated powder sample is then pre-sheared ( $18^\circ.\text{min}^{-1}$  over  $60^\circ$ , at a normal stress of 15 kPa) to achieve a critical state, after which the normal stress is lowered, and the sample is sheared further to obtain a yield point. The pre-shear/shear sequence is repeated 3 times to obtain a yield locus. For each powder sample, the yield loci are obtained for 9, 8, 7, 6 and 5 kPa values of normal stress; and each yield locus is analyzed using Mohr stress circle analysis to obtain the values of major principal stress, unconfined yield strength, friction coefficient and cohesion (Carson et Wilms, 2006; Freeman, 2007).



# **Chapitre IV.**

## **Résultats & Discussions**

---





### **IV.1. Atomisation d'un jet liquide en gouttelettes**

L'objectif de ce travail de thèse est d'investiguer les contributions des apports d'eau et d'énergie mécanique au procédé d'agglomération humide. Afin de répondre à cet objectif, nous avons mené une étude préliminaire de découplage des apports hydriques et mécaniques. Concernant les apports du liquide de mouillage, l'étude bibliographique a montré que la taille des gouttes pulvérisées représente un des paramètres opératoires gouvernant l'étape de mouillage-nucléation. Toutefois, la littérature fait état d'un manque de modèles prédictifs permettant de gouverner la taille des gouttes par ajustement des paramètres du procédé et de formulation du liquide.

Dans la première partie de ce chapitre IV, nous présentons l'étude réalisée pour mesurer la taille des gouttes obtenues dans des conditions opératoires du procédé d'atomisation correspondantes à celles utilisées en agglomération humide dans la suite du manuscrit, ainsi que plus généralement, le travail réalisé par analyse dimensionnelle pour identifier les paramètres influant la taille des gouttes obtenues pour deux systèmes de pulvérisation différents (mono- et bi-fluides). Ce travail est présenté sous la forme d'une publication déjà publiée en revue internationale à comité de lecture :

*S. Mandato, E. Rondet, G. Delaplace, A. Barkouti, L. Galet, P. Accart, T. Ruiz, B. Cuq, Liquids'atomization with different nozzles: Modelling of the effects of processing conditions by dimensional analysis, Powder Technology, 224, 323-330, 2012.*

### **IV.1.1. Liquids' atomization with two different nozzles: Modelling of the effects of some processing and formulation conditions by dimensional analysis**

#### **IV.1.1.1. Abstract**

Liquid atomization is a largely widespread unit operation. The disintegration of a liquid into droplets depends on the nature of the nozzle, on the process parameters as well as physicochemical characteristics of the fluid. The aim of this work is to study the contribution of the process (liquid outlet speed and air pressure) and physicochemical (viscosity and surface tension) factors on the size distribution of droplets generated by single- and two-fluid flat spray nozzles. The obtained droplet median diameters which range between 77 and 594  $\mu\text{m}$  for the single-fluid nozzle and between 11 and 599  $\mu\text{m}$  for the two-fluid nozzle, are discussed in relation with operating conditions of atomization process. Dimensional analysis was performed as a modelling approach. Despite energy input for the droplet formation is known to be influenced by different origins according to single and two-fluid nozzles, it is shown that a unique correlation gathers all the parameters affecting droplet size. In the range of process and formulation parameters tested, this correlation is validated and gives satisfactory agreement for the single- and two-fluid nozzles.

#### **IV.1.1.2. Introduction**

Liquid spraying is a unit operation largely widespread in many processes and industrial areas: automotive painting, waste incineration unit, pharmaceutical industry (spray-drying, spray congealing, tablet coating), fuel atomization in combustion processes, mass transfer operations, food processing of granular products in fluid beds, coating of surfaces and particles, *etc.* (Babinsky and Sojka, 2002; Larricq-Fourcade dit Lêride, 2006; Aliseda *et al.*, 2008; Hede *et al.*, 2008). In the specific case of wet granulation process in mixers or fluid beds, the control of the liquid droplet size distribution is a key step insofar a marked correlation has been found between the droplet size and that of the primary structures (*i.e.* nuclei) that are generated after the impact of the droplet on the powder bed (Iveson *et al.*, 2001). This step of nuclei formation is of primary importance because it partly controls the extent of wet agglomeration mechanisms during which nuclei are associated in agglomerates (Rondet *et al.*, 2010; Saad *et al.*, 2011). Nucleation mechanisms have been described through two parameters (Iveson *et al.*, 2001): (*i*) the kinetics of droplet penetration inside the powder bed that is largely controlled by formulation properties and

(ii) the flux of droplets onto the bed surface which corresponds to the physical distribution of liquid in the spray zone and is described by the dimensionless spray flux ( $\psi_a$ ). The dimensionless spray flux is largely controlled by process parameters, but does not depend on the equipment (Iveson *et al.*, 2001). The mastering of nucleation mechanisms is related to the values of the dimensionless spray flux, and thus to the fine characterization of sprayed droplet size. This is a challenge in many industries, and especially in couscous production from durum wheat semolina, where the nucleation and agglomeration stage directly controls the efficiency of the production line (Abecassis *et al.*, 2011). Moreover, the influence of the atomization process and formulation parameters on the spray angle is a critical key to manage the agglomeration process, as the spray angle partly determines the spray coverage on the powder bed.

Atomization refers to the disintegration of a liquid into droplets in a surrounding gas. The characteristics of the spray are highly dependent on the spray nozzle type. In single fluid nozzle, the liquid jet is formed thanks to the transformation of the pressure energy into kinetic energy when it crosses the nozzle. In two-fluid nozzles, the pressure of the compressed air is used to disperse the liquid in small droplets thanks to the shear forces which are exerted by the air of atomization on the liquid surface (Jimenez, 2007). Two different types of two-fluid nozzles exist considering the position of the mixing nozzles which differs according to whether the compressed air comes into contact with the liquid to pulverize, either in the nozzle (*i.e.* internal mixing) or at the nozzle exit (*i.e.* external mixing) (Hede *et al.*, 2008). The phenomenon of atomization generates a high relative speed between the liquid and the surrounding air. The higher is the relative speed, the higher are the frictional forces, the smaller is the resulting median diameter of the droplet (Hede *et al.*, 2008). The first phase of atomization involves the tearing of liquid into filaments and large droplets. The second phase is the breaking of these liquid forms into smaller and smaller droplets (Marmottant, 2001; Aliseda *et al.*, 2008). Droplet size depends on the nozzle type, process parameters, and physicochemical characteristics of the liquid.

The contribution of physicochemical properties of the liquid has been related to the effects of surface tension, viscosity, and density. It has been demonstrated that an increase in liquid density induces an increase in the droplet size (Rizkalla and Lefebvre, 1975). As the viscosity and the surface tension vary jointly when formulating a liquid, it is still difficult to establish simple correlations between liquid properties and the droplet size. Generally, an increase in viscosity and/or surface tension of the liquid involves a rise in the droplet size (Lefebvre, 1980; Lund *et*

*al.*, 1993; Jimenez, 2007; Rajniak *et al.*, 2007; Ejim *et al.*, 2010). For instance, Rajniak *et al.* (2007) observed an increase in droplet size when increasing the concentration in hydroxypropyl cellulose of the liquid, that could be associated with both increases in viscosity and/or surface tension. It seems necessary to investigate separately the specific effects of the viscosity and the surface tension.

The process parameters (*e.g.* air pressure, liquid flow, spraying angle, temperature, *etc.*) also affect the sprayed droplet size. For instance when using a two-fluid nozzle, it has been shown that an increase in the liquid flow speed, a decrease in the air pressure, and a decrease in the spraying angle induce an increase in the droplet size (Juslin *et al.*, 1995; Hede *et al.*, 2008). The variation of the droplet Sauter mean diameter with the air density has been described by a decreasing power law (Rizkalla and Lefebvre, 1975). In the specific case of two-fluid nozzles, the influence of the air pressure overrides that of the liquid flow. The relative pressure of the air (*i.e.* air flow in the nozzle) is the most effective atomization process parameter that affects the droplet size (Babinsky and Sojka, 2002).

Many authors have developed empirical or semi-empirical models to predict the droplet size according to the spraying process and liquid physicochemical parameters (Gretzinger and Marshall, 1961; Kim and Marshall, 1971; Walzel, 1993; Mulhem *et al.*, 2003). These models are generally adapted for one nozzle geometry and narrow ranges of process and physicochemical parameters. We did not take note of a model making it possible to predict the size of droplets resulting from both single-fluid and two-fluid nozzles.

The aim of this work is to study the process and physicochemical parameters that control the size distribution of droplets generated by different nozzles. The studied process parameters are the nozzle type (single-fluid or two-fluid nozzles), the liquid outlet speed (from 4.1 to 76.8 m.s<sup>-1</sup>) and the relative air pressure (from 0.5 to 2.5 bar). The selected physicochemical parameters are the fluid viscosity (from 1 to 259 mPa.s) and surface tension (from 42 to 62.5 mN/m). The results are compared and discussed in relation with operating conditions of atomization process. An original adimensional approach is led to mathematically describe the relationships between the droplet median diameter and the process and physicochemical parameters for both the single- and two-fluid nozzles.

### IV.1.1.3. Materials and methods

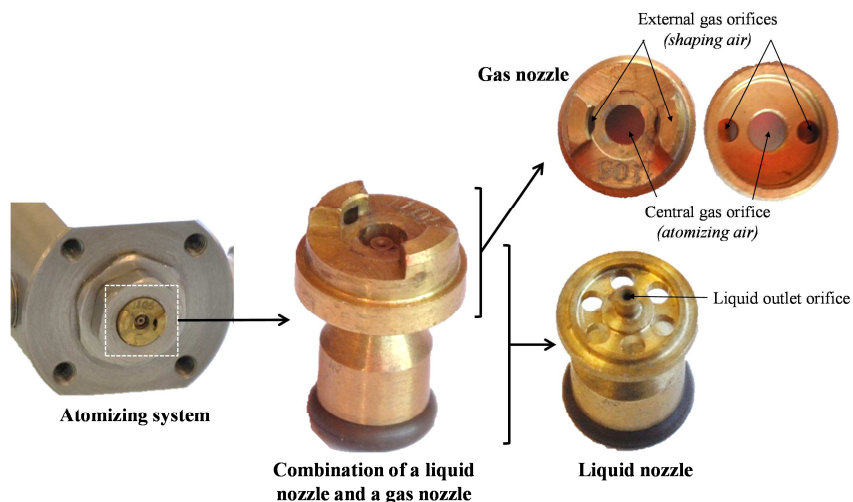
#### IV.1.1.3.1. Atomizing systems

A single-fluid and an external two-fluid pneumatic atomizing systems (Spraying Systems Co., France) are used to produce a flat spray for the experiments. The single-fluid system (Fig.IV.1) can be equipped with two different nozzles (ref. 650017 and 6501), geometrically similar except for the inside diameters of the liquid outlet slit (respectively 0.28 and 0.66 mm).



**Figure IV.1.** Picture of the single-fluid atomization nozzle (Spraying Systems Co., France).

The external two-fluid system is made of a combination of a liquid nozzle and a gas nozzle (Fig.IV.2). Three external two-fluid systems with three different ratios of the atomizing gas outlet diameter to the liquid outlet diameter are used: 33.2 (ref. SUJE 416-50 combined with PAJ105-50), 26.3 (ref. SUJE 418-50 with PAJ105-50), or 21 (ref. SUJE 420-50 with PAJ135-50) (Table IV.1).



**Figure IV.2.** Pictures of the external two-fluid atomization equipment (Spraying Systems Co., France).

The higher is the inside diameter of the liquid outlet slit, the higher are the liquid flow rates tested during atomization. Although it has been shown that the spray angle and the shape of the

spray can be influenced by process parameters (water flow rate, air pressure) and liquid properties (Jimenez, 2007; Hede *et al.*, 2008), we consider a constant flat spray angle of 50° (supplier value) for the study.

**Table IV.1.** Principal dimensions of the three two-fluid atomizing systems used in the experiments.

<i>Liquid nozzles</i>	Inside diameters of outlet slits (mm)	<i>Gas nozzles</i>		Gas-to-liquid ratios of the outlet diameter
		<i>PAJ 105-50</i>	<i>PAJ 135-50</i>	
		2.67	3.43	
<i>SUJE 416-50</i>	0.41	X		33.2
<i>SUJE 418-50</i>	0.46	X		26.3
<i>SUJE 420-50</i>	0.51		X	21

Atomization experiments were carried out at 20°C. The liquid is brought to the nozzle at constant flow rate using a peristaltic pump (520S/REM, Watson Marlow, France). Calibration of the liquid flow rate was carried out with water between 15.4 and 26.6 m.s<sup>-1</sup> for the single-fluid nozzles, and between 4.1 and 76.8 m.s<sup>-1</sup> under 0.5 bar of relative air pressure for the two-fluid nozzles. It was checked that the liquid flow rate measured at the outlet of the two-fluid nozzles does not change significantly when relative air pressure is increased up to 2.5 bar. The relative air pressure for the two-fluid nozzles is adjusted (between 0.5 and 2.5 bar) using a pressure reducer. The influence of the outlet liquid speed was investigated between 15.4 to 26.6 m.s<sup>-1</sup> for the single-fluid nozzles and between 4.1 and 76.8 m.s<sup>-1</sup> for the two-fluid nozzles.

#### IV.1.1.3.2. Pulverized liquids

To study the influence of viscosity and surface tension, experiments were carried out on different ternary mixtures based on deionized water, ethanol, and/or glycerin (Table IV.2). Ethanol was used to generate different surface tensions because its adsorption kinetic at the surface of droplets is instantaneous (Marmottant, 2001). Glycerin was selected for its newtonian behavior and for its aptitude to offer a large range of viscosity in the presence of water and ethanol. The surface tensions of the solutions (between 42 and 62.5 mN/m) were measured in triplicate using a tensiometer Kruss K100 (Kruss, Germany) according to the method of the Wilhelmy plate. The viscosities of the solutions were measured using a rheometer Physica MCR 301 (Anton Paar, Austria) equipped with a double gap mobile. The densities of the solutions were measured using

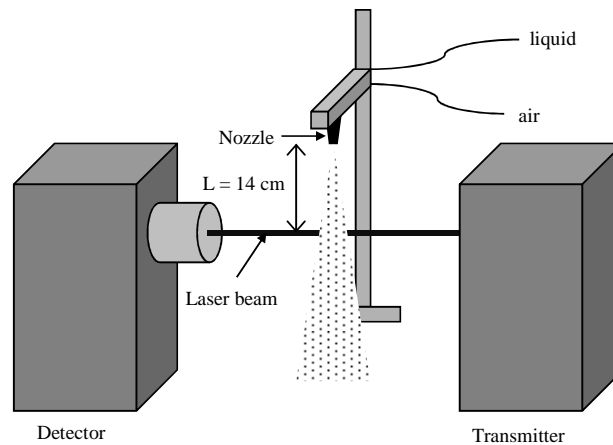
a 50 ml liquid pycnometer. Preliminary tests were conducted to identify the maximal liquid viscosity (80 mPa.s) above which the liquid cannot be atomized using the single-fluid nozzles.

**Table IV.2.** Composition and physico-chemical properties of the selected atomized liquids. (values of density are given  $\pm 0.02$  ; values of viscosity are given  $\pm 5\%$ )

Nozzle type	Liquid composition (w/w)			Density (kg/m <sup>3</sup> )	Surface tension (mN/m)	Viscosity (mPa.s)
	Water	Ethanol	Glycerin			
Single-fluid nozzles	100	0	0	1000	72 ( $\pm 1.1$ )	1
	96.5	3.5	0	998	62.5 ( $\pm 0.1$ )	1
	91.3	9.7	0	984	49 ( $\pm 0.1$ )	1
	81.8	18.2	0	973	41 ( $\pm 0.1$ )	1
	35.6	4.4	60	1146	49 ( $\pm 0.1$ )	10.6
	25	0	75	1197	65.3 ( $\pm 0.1$ )	25.5
	23.3	4.4	72.3	1179	49 ( $\pm 0.2$ )	25.5
	20.3	10	69.7	1158	39.7 ( $\pm 0.2$ )	25.5
	15.9	4.4	79.7	-	48.3 ( $\pm 0.2$ )	51.9
	15.2	0	84.8	1223	63.4 ( $\pm 0.1$ )	72
	12.8	4.4	82.8	1205	48.4 ( $\pm 0.3$ )	72.7
10	10	80	1182	42.5 ( $\pm 0.4$ )	71.8	
Two-fluid nozzles	100	0	0	1000	72 ( $\pm 1.1$ )	1
	96.5	3.5	0	998	62.5 ( $\pm 0.1$ )	1
	91.3	9.7	0	984	49 ( $\pm 0.1$ )	1
	81.8	18.2	0	973	41 ( $\pm 0.1$ )	1
	15.6	4.4	80	1198	48.6 ( $\pm 0.2$ )	54.1
	10.5	0	89.5	1235	62.8 ( $\pm 0.1$ )	134
	4.4	7.9	87.7	1218	49.6 ( $\pm 0.2$ )	132
	4.5	10	85.5	1194	40.8 ( $\pm 0.4$ )	132
	4.8	4.4	90.8	1226	49.4 ( $\pm 0.3$ )	206
	5.9	0	94.1	1247	64.3 ( $\pm 0.2$ )	259
	3.1	4.4	92.4	1229	50.1 ( $\pm 0.2$ )	259
0	10	90	1205	41.6 ( $\pm 1$ )	259	

### IV.1.1.3.3. Droplet size distribution measurement

Liquid droplet sizes were measured by laser diffraction using the Spraytec<sup>®</sup> (Malvern, France). The extremity of the nozzle is set at a fixed distance  $L = 14 \text{ cm}$  above the laser beam (Fig.IV.3) as it corresponds to the distance between the nozzle and the powder surface during the wet agglomeration process (Saad *et al.*, 2011). Droplet sizes were measured during 2 min and different parameters were calculated. The  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ , and  $d_{90}$  volume diameters represent the equivalent diameters at which respectively 10, 50 and 90% of the total volume of droplets are inferior. The Sauter mean diameter ( $d_{32}$ ) is the diameter of a droplet having the same volume-to-surface area ratio as the total volume of all the droplets to the total surface area of all the droplets. The De Brouckere mean diameter corresponds to the mean of the volume distribution ( $d_{43}$ ). The droplet size span is calculated as  $(d_{90} - d_{10})/d_{50}$ .



**Figure IV.3.** Sketch of the atomization experiment.

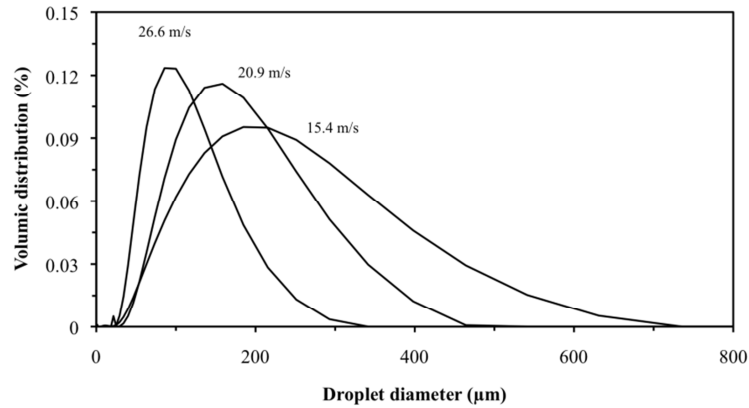
## IV.1.1.4. Results and discussions

### IV.1.1.4.1. Liquid atomization with the single-fluid nozzles

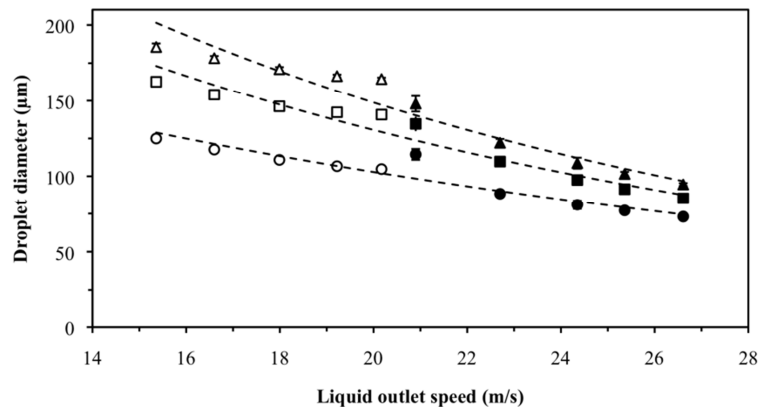
For the single-fluid nozzles, the droplets display monomodal size distributions, whatever the liquid outlet speed (Fig.IV.4). The measured droplet size distributions were described using different parameters ( $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{32}$ , and  $d_{43}$ ). As illustrated in Fig.IV.5, we noticed that the effect of the liquid outlet speed on the droplet diameters ( $d_{32}$ ,  $d_{50}$ , or  $d_{43}$ ) was almost similar whatever the considered size parameter. As in any case the size distribution was monomodal, we



have thus chosen to discuss the influence of physicochemical and process parameters by only displaying the impact on the median diameter ( $d_{50}$ ) of the sprayed droplets.



**Figure IV.4.** Droplet size distributions after atomization of pure water using single-fluid nozzles of 0.66 mm inside diameter at outlet liquid speed of 26.6 m/s and 20.9 m/s, and 0.28 mm inside diameter at outlet liquid speed of 15.4 m/s.



**Figure IV.5.** Influence of liquid outlet speed on droplet diameters ( $d_{32}$  (○●),  $d_{50}$  (□■), and  $d_{43}$  (△▲)) after atomization of pure water using two different single-fluid nozzles, at 0.28 mm (white symbols) or at 0.66 mm (black symbols) inside diameters.

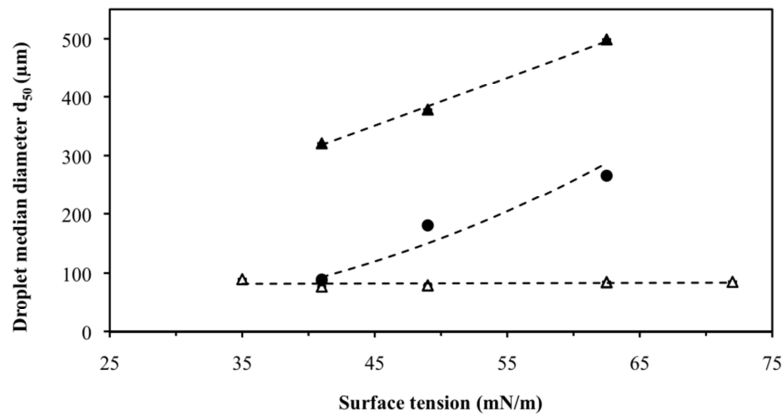
#### IV.1.1.4.1.1. Influence of process parameters

When using the single-fluid nozzles, any increase in the liquid outlet speed (from 15.4 to 26.6  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) induces a large decrease in the droplet diameters ( $d_{50}$  varies from 163 to 85  $\mu\text{m}$ ) (Fig.IV.5). In pressure atomization of a liquid using a single-fluid nozzle, pressure is converted to kinetic energy to accelerate the liquid to a high speed, relative to the surrounding ambient air (Liu, 2000; Jimenez, 2007). The increase of the liquid outlet speed leads to an increase in both

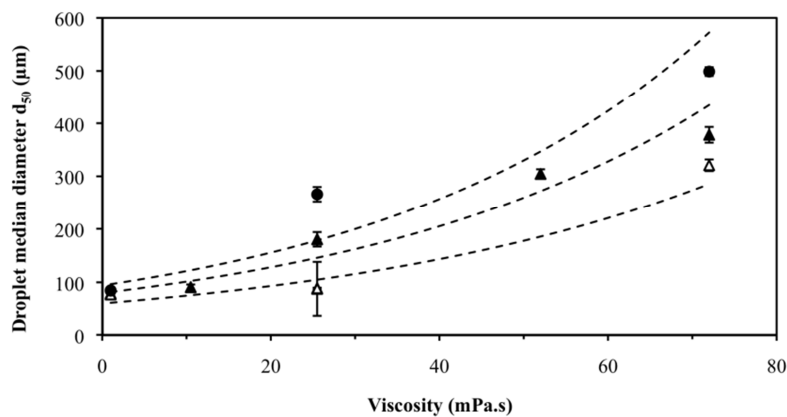
the level of turbulence in the liquid jet and the aerodynamic drag forces exerted by the surrounding air, that both promote the disintegration of the liquid jet in smaller droplets.

#### IV.1.1.4.1.2. Influence of formulation parameters

Under constant outlet liquid flow rate ( $26.6 \text{ m.s}^{-1}$ ) and using a low viscosity liquid ( $1 \text{ mPa.s}$ ), increases in the fluid surface tension do not affect the droplet diameter (Fig.IV.6). On the other hand, when using a more viscous liquid ( $25$  or  $72 \text{ mPa.s}$ ), increases in the surface tension induce an almost linear increase of the droplet diameter. For instance for a liquid at  $25 \text{ mPa.s}$  viscosity, the droplet diameter is tripled when the liquid surface tension increases from  $41$  to  $62.5 \text{ mN.m}^{-1}$ .



**Figure IV.6.** Influence of liquid surface tension on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different viscosities ( $1 \text{ mPa.s}$  ( $\Delta$ ),  $25 \text{ mPa.s}$  ( $\bullet$ ), and  $72 \text{ mPa.s}$  ( $\blacktriangle$ )) using a single-fluid nozzle ( $0.66 \text{ mm}$  inside diameter) at liquid outlet speed of  $26.6 \text{ m.s}^{-1}$ .



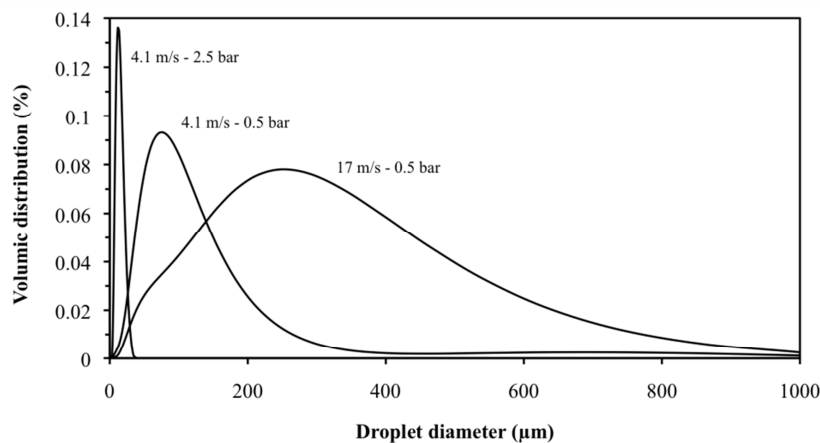
**Figure IV.7.** Influence of liquid viscosity on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different surface tensions ( $42 \text{ mN.m}^{-1}$  ( $\Delta$ ),  $49 \text{ mN.m}^{-1}$  ( $\blacktriangle$ ), and  $62.5 \text{ mN.m}^{-1}$  ( $\bullet$ )) using a single-fluid nozzle ( $0.66 \text{ mm}$  inside diameter) at liquid outlet speed of  $26.6 \text{ m.s}^{-1}$ .

Whatever the liquid surface tension, we observe increases in the droplet diameter with liquid viscosity (Fig.IV.7). For instance for a liquid at  $62.5 \text{ mN.m}^{-1}$  surface tension, the droplet diameter is multiplied by 5 when the liquid viscosity increases from 1 to 72 mPa.s. We thus observed that the ability of the liquid to resist the dynamic forces of atomization is increased with increasing viscosity and/or surface tension. In the case of single-fluid nozzles, an increase in liquid viscosity and/or surface tension has been found to hinder the liquid disintegration and lead to an increase in the amount of energy required for the atomization and also an increase in the droplet diameter (Lefebvre, 1989; Liu, 2000; Spray Drying Systems Co., 2000; Schick, 2006).

#### IV.1.1.4.2. Liquid atomization with the two-fluid nozzles

##### IV.1.1.4.2.1. Influence of process parameters

When using the two-fluid nozzles, measurements of droplet size highlight monomodal droplet diameter distributions (Fig.IV.8).



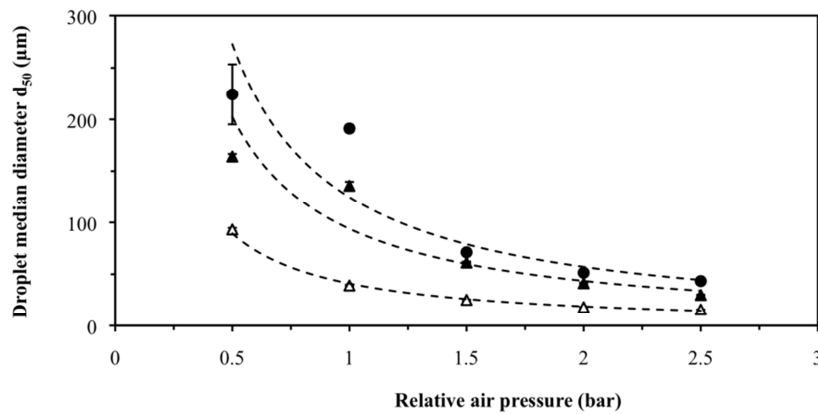
**Figure IV.8.** Droplet size distributions after atomization of pure water using a two-fluid pneumatic nozzle (0.41 mm inside diameter) for two different liquid flow rates and two different atomizing air pressures.

Increasing the air pressure from 0.5 to 2.5 bar, under constant liquid outlet speed ( $4.1 \text{ m.s}^{-1}$ ), induces the formation of smaller droplets and the tightening of the size distribution. When increasing the air pressure, the tightening of the droplet size distribution was observed, whatever the inside diameters of the outlet liquid slit. For instance, when using the two-fluid nozzle with

0.41 mm inside diameter, the diameter span decreases from 2.4 to 1.6 when the relative air pressure varies from 0.5 to 2.5 bar. These effects have been explained by the decrease in the number and volume of large droplets with higher air pressure (Elkotb *et al.*, 1982; Juslin *et al.*, 1995). An increase in relative air pressure (from 0.5 to 2.5 bar) also induces a decrease in the droplet diameters (Fig.IV.9). The relationships between droplet diameters and relative air pressure ( $P_G$ ) are described using power law models (Eq.IV.1) whatever the liquid outlet speeds.

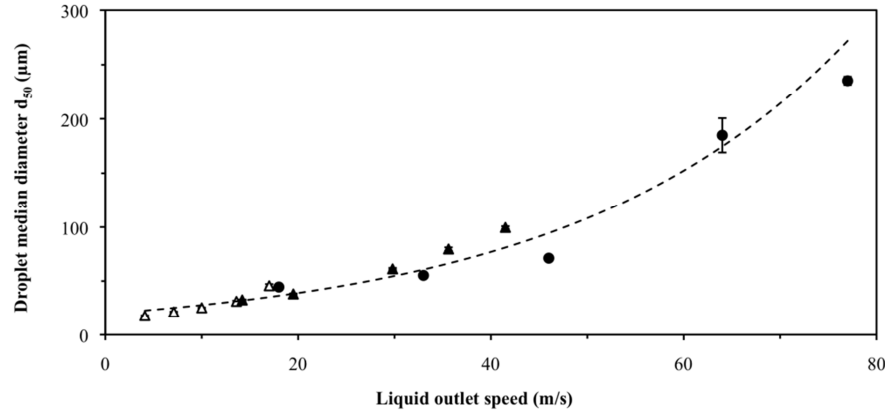
$$d_{50} \propto P_G^{-1.11} \quad (\text{Eq.IV.1})$$

Increasing the air pressure from 0.5 to 2.5 bar corresponds to an increase in the air outlet speed which generates an increase in dynamic forces of atomizing air that causes the binder solution to atomize in smaller droplets (Rizkalla and Lefebvre, 1975; Juslin *et al.*, 1995; Schick, 2006; Hede *et al.*, 2008).



**Figure IV.9.** Influence of relative air pressure on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of pure water at  $10 \text{ m.s}^{-1}$  using three different two-fluid nozzles, at 0.41 mm ( $\triangle$ ), at 0.46 mm ( $\blacktriangle$ ), or at 0.51 mm ( $\bullet$ ) inside diameters.

On the other hand an increase in liquid outlet speed (from  $4.1$  to  $17 \text{ m.s}^{-1}$ ) under constant relative air pressure (0.5 bar) induces the formation of larger droplets and the broadening of the droplet size distribution (Fig.IV.8). This effect was observed whatever the inside diameters of the outlet liquid slit (0.41, 0.46, or 0.51 mm) (Fig.IV.10). For example, the diameter span is tripled when the liquid outlet speed varies from  $4.1$  to  $46 \text{ m.s}^{-1}$ , at 1.5 bar relative air pressure.



**Figure IV.10.** Influence of liquid outlet speed on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of pure water using three different two-fluid nozzles, at 0.41 mm ( $\triangle$ ), at 0.46 mm ( $\blacktriangle$ ), or at 0.51 mm ( $\bullet$ ) inside diameters, for an atomizing relative air pressure of 1.5 bar.

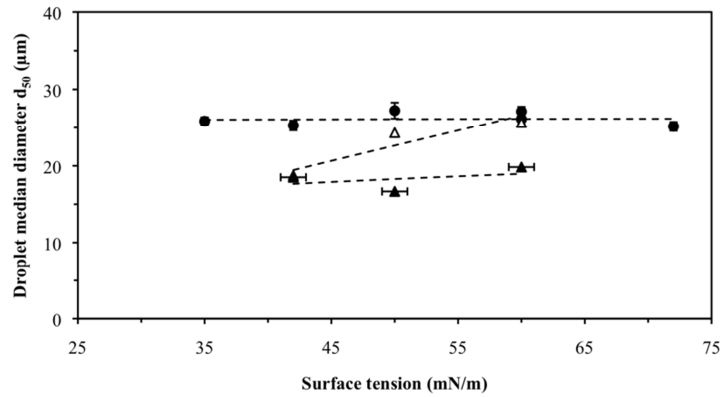
Juslin *et al.* (1995) also showed in the case of a pneumatic nozzle, that an increase of the liquid flow rate increases the width of diameter distributions, due to an increase of the amount of large droplets. The dependence of the  $d_{50}$  with the liquid outlet speed can be correctly described ( $R^2 = 0.947$ ) using a simple exponential equation (Eq.IV.2) whatever the three tested two-fluid nozzles (Fig.IV.10):

$$d_{50} = \exp(0.034 v_{liq}) \quad (\text{Eq.IV.2})$$

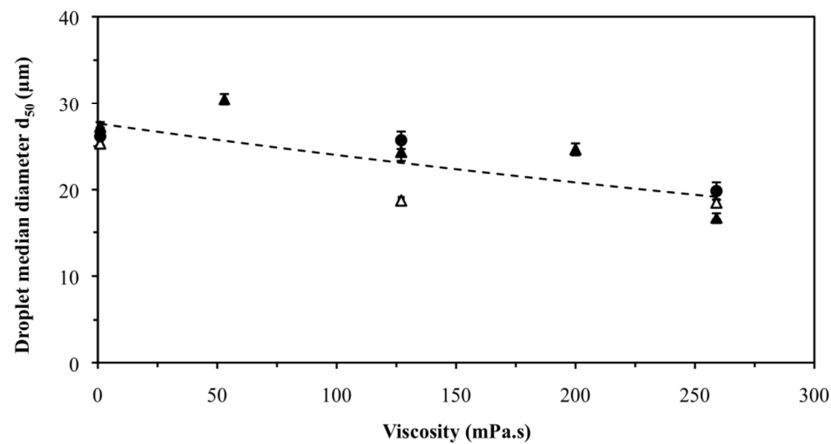
where  $v_{liq}$  is the outlet liquid speed ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ). The increase in droplet diameters with increasing liquid outlet speed has already been described in the case of two-fluid nozzles (Spray Drying Systems Co., 2000; Schick, 2006; Hede *et al.*, 2008).

#### IV.1.1.4.2.2. Influence of formulation parameters

Using the two-fluid nozzles, the pulverization of liquid with different physicochemical parameters (viscosity and surface tension) does not seem to affect significantly the droplet size (Fig.IV.11 and IV.12). The selected process parameters (liquid outlet speed of  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  and relative air pressure of 1.5 bar) seem to overcome the specific influences of the fluid physicochemical parameters and control the fragmentation process.



**Figure IV.11.** Influence of liquid surface tension on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different viscosities (1 mPa.s ( $\Delta$ ), 127 mPa.s ( $\blacktriangle$ ), and 259 mPa.s ( $\bullet$ )) using a two-fluid nozzle (0.41 mm inside diameter) at  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  and a relative air pressure of 1.5 bar.



**Figure IV.12.** Influence of liquid viscosity on droplet diameter ( $d_{50}$ ) after atomization of liquids of different surface tensions ( $42 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$  ( $\Delta$ ),  $49 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$  ( $\blacktriangle$ ), and  $62.5 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$  ( $\bullet$ )) using a two-fluid nozzle (0.41 mm inside diameter) at  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  and a relative air pressure of 1.5 bar.

For the two fluid nozzles, it is still very difficult to establish common rules concerning the influence of viscosity and surface tension on the droplet size. Several authors reported a marked influence of the viscosity on the droplet size. Juslin *et al.* (1995) showed an increase of the droplet mean diameter (from  $28.6$  to  $37.5 \text{ }\mu\text{m}$ ) with an increase in liquid viscosity (from 1 to 15 mPa.s) using a pneumatic two-fluid nozzle at 1.5 bar relative air pressure and  $150 \text{ g}\cdot\text{min}^{-1}$  liquid flow rate. The ability of a liquid to resist the dynamic force of atomizing air has been supposed to increase with increasing the viscosity, which leads to larger droplet sizes. Rizkalla and Lefebvre (1975) and Lefebvre (1980) showed an increase in  $d_{32}$  with an increase in viscosity for an external mixing prefilming airblast atomiser. Hede *et al.* (2008) also supposed that the effect on  $d_{32}$  upon an increase in the viscosity or the surface tension is due to an increase in the amount

of energy required to atomize the spray. Other studies showed that the increase in viscosity does not affect the drop size (Buckner and Sojka, 1991; Lund *et al.*, 1993; Aliseda *et al.*, 2008). Santangelo and Sojka (1995) showed that the droplet diameter slightly decreased if the liquid surface tension increased.

#### **IV.1.1.4.3. Comparison of single-fluid nozzles and two-fluid nozzles**

Even if the effect of the liquid outlet speed for two-fluid nozzles (Fig.IV.10) seems to be opposed to that previously observed for single-fluid nozzles (Fig.IV.5), the formation of droplets spray is based on the same general mechanism and can be explained by a large differential of velocities between the two phases (air and liquid) whatever the nozzle type.

In the case of two-fluid nozzles, the air speeds (230 to 515 m.s<sup>-1</sup>) are higher than the liquid speeds. An increase in the liquid outlet speed thus induces a decrease in the differential between air and liquid speeds. The lower destabilization energy reported to the liquid volume thus generates droplets of larger size due to the aerodynamic forces (Fig.IV.10). The relative liquid/air speed is a relevant parameter because it generates superficial waves with short wavelength that cause the fragmentation of the liquid jet (De Luca, 2007). Liquid outlet speed and air pressure thus plays a central role in the fragmentation of the liquid jet. We noticed that under high air pressure conditions, we observe a lower effect of liquid outlet speed on droplet diameter than under low air pressure conditions. In the case of single-fluid nozzles, these mechanisms remain true. The liquid is sprayed with a high speed in a static ambient air. Any increase in the liquid outlet speed induces an increase in the differential between air and liquid speeds, enhancing frictional conditions and the formation of smaller drops.

In order to explain the specific effect of the viscosity and surface tension on the droplet diameters, it could have been interesting to consider the nature and the geometry of the selected nozzles and achieve a better understanding of the jet rupture mechanisms and drop formation for each nozzle type. Even if a predictive model can be established for a nozzle type under given process and physicochemical conditions, the highlighted correlation could not be directly transposed to other nozzle types and other process conditions. The atomization mechanism, which is specific for each nozzle, makes it difficult to highlight clear tendencies which would express the dependence of the droplet diameters according to the liquid surface tension and viscosity.

**IV.1.1.4.4. Modelling using dimensional analysis**

The originality of our approach lies in the fact that we focus on the droplet diameter resulting from two different types of atomization nozzles (single-fluid and two-fluid nozzles) and different geometries (*i.e.* inside diameters). The tests were carried out on newtonian fluids to avoid the shearing effect generated by the nozzle. We explored the effect of large ranges of process parameters (*i.e.* liquid outlet speed and air pressure) and physicochemical properties of the liquid (*i.e.* viscosity and surface tension). The air-to-liquid mass flow rate ratios were investigated between 0.06 and 5.11 (range = 5). This range was of the same order of magnitude as the ranges (1.8 - 15) considered in most of the works dealing with atomization (Gretzinger and Marshall, 1961; Rizkalla and Lefebvre, 1975; Walzel, 1993; Mulhem *et al.*, 2003; Hede *et al.*, 2008).

**Table IV.3.** Definition of the starting variables and fundamental quantities used for the dimensional analysis of the liquid atomization.

<i>Dimensional variables</i>	<i>Symbol</i>	<i>Fundamental quantities</i>		
		M	L	T
Lenght between nozzle tip and drop size measurement position	$L$	0	1	0
Acceleration of gravity	$g$	0	1	-2
Gas viscosity	$\mu_G$	1	-1	-1
Liquid viscosity	$\mu_L$	1	-1	-1
Gas density	$\rho_G$	1	-3	0
Liquid density	$\rho_L$	1	-3	0
Liquid surface tension	$\sigma_L$	1	0	-2
Liquid outlet area	$S_L$	0	2	0
Gas outlet area	$S_G$	0	2	0
Gas pressure	$P_G$	1	-1	-2
Liquid outlet speed	$v_{liq}$	0	1	-1

From the experimental study, we aimed in developing an empirical correlation gathering in an unique process relationship all the experimental droplet sizes obtained whatever the operating conditions used (atomization conditions, physicochemical fluid properties, and nozzle geometrical parameters) by using the dimensional analysis (Kim and Marshall, 1971). This approach makes it possible to reduce the number of variables describing a physical problem using a set of dimensionless ratios. The number of ratios originally used to describe the problem



can be obtained from the Buckingham theorem (Miragliotta, 2011). The first step of dimensional analysis consists in establishing the list of relevant dimensional parameters. In the case of liquid spraying, the relevant dimensional parameters and their fundamental quantities are listed in Table IV.3. The Buckingham theorem states that any physically meaningful equation involving  $n$  variables expressible in terms of  $k$  independent fundamental quantities can be rearranged into an equivalent equation involving a set of  $p$  ( $= n - k$ ) dimensionless variables which are derived as products of powers of the original variables (Masters, 1976; Schick, 2006; Jimenez, 2007; Miragliotta, 2011). In our study, we have listed 11 variables ( $n$ ) that can be expressed in terms of 3 fundamental quantities ( $k$ ). Following the procedure described in Langhaar (1951), we can obtain the dimensional matrix (not shown) that permits to express the dimensionless median diameter according to ' $p = 8$ ' dimensionless variables (Eq.IV.3).

$$\frac{d_{50}}{L} = f \left( \begin{array}{l} \pi_1 = \frac{\rho_L}{L^{-1.5} g^{-0.5} \mu_G}; \pi_2 = \frac{\rho_G}{\rho_L}; \pi_3 = \frac{\mu_L}{\mu_G}; \pi_4 = \frac{\sigma}{L^{0.5} g^{0.5} \mu_G}; \pi_5 = \frac{S_G}{S_L}; \pi_6 = \frac{S_L}{L^2}; \\ \pi_7 = \frac{P_G}{L^{-0.5} g^{0.5} \mu_G}; \pi_8 = \frac{v_{liq}}{L^{0.5} g^{0.5}} \end{array} \right) \quad (\text{Eq.IV.3})$$

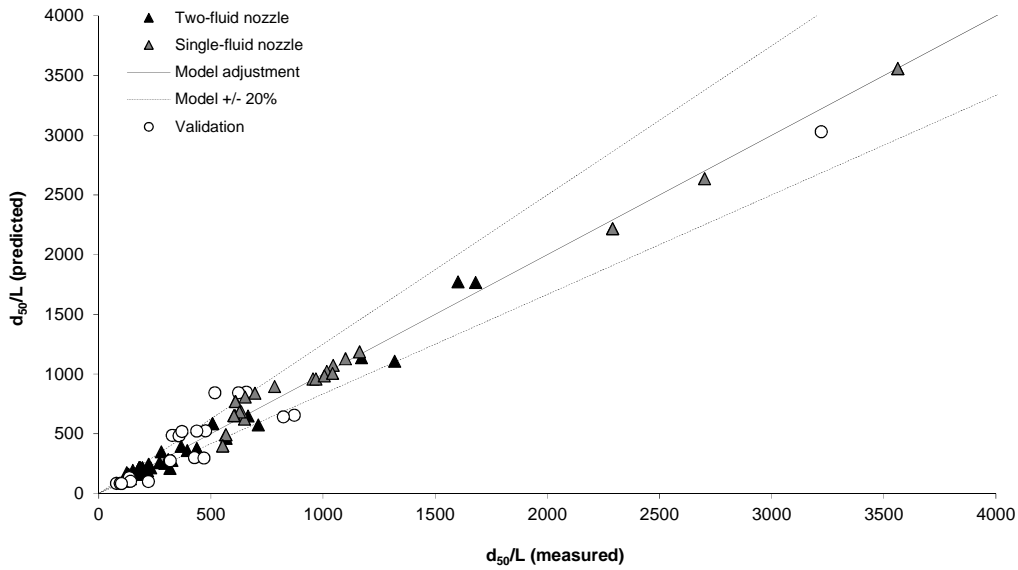
For each of the two atomization systems (single-fluid nozzles or two-fluid nozzles) the independent influences of the variation of each adimensional number on the value of  $d_{50}/L$  were studied. This analysis made it possible to observe that  $d_{50}/L$  values (for  $L=14$  cm) can be mathematically described by the following product of exponential and powers laws (Eq.IV.4):

$$\frac{d_{50}}{L} = K_0 \pi_1^{\alpha_1} \pi_2^{\alpha_2} \pi_4^{\alpha_4} \pi_5^{\alpha_5} \pi_6^{\alpha_6} \pi_7^{\alpha_7} \exp(\beta_3 \pi_3) \exp(\beta_8 \pi_8) \quad (\text{Eq.IV.4})$$

Table IV.4 summarizes the values taken by Eq.IV.4 parameters according to the two tested spraying system, single-fluid nozzles or two-fluid nozzles. Figure IV.13 depicts the adjustment between the values of the dimensionless diameter described by the model ( $d_{50}/L$  predicted) and those experimentally obtained for the single-fluid nozzles and the two-fluid nozzles, whatever the process conditions and physicochemical fluid characteristics. We found that the proposed model (Eq.IV.4) describes rather well the evolution of the droplet characteristic dimension whatever the nozzle type. Indeed, almost all experimental measurements are contained in a range corresponding to  $\pm 20\%$  of the value predicted by the model. The model was validated by tests carried out on the two spraying systems for process and physicochemical properties included in the investigated ranges (Figure IV.13).

**Table IV.4.** Parameters value of the Eq.IV.4 for the dimensional analysis of the liquid atomization, according to the spraying system.

Model coefficients	Variables	Mono-fluid nozzles	Two-fluid nozzles
$K_0$	-	0.023	$1.66 \cdot 10^{22}$
$\alpha_1$	Liquid density ( $\pi_1$ )	0.12	0.028
$\alpha_2$	Gas density ( $\pi_2$ )	0	0.03
$\beta_3$	Liquid viscosity ( $\pi_3$ )	$4.34 \cdot 10^{-4}$	$-4 \cdot 10^{-5}$
$\alpha_4$	Liquid surface tension ( $\pi_4$ )	1.17	0.019
$\alpha_5$	Gas outlet area ( $\pi_5$ )	0	0.94
$\alpha_6$	Liquid outlet area ( $\pi_6$ )	0	0.27
$\alpha_7$	Gas pressure ( $\pi_7$ )	0	-2.2
$\beta_8$	Liquid outlet speed ( $\pi_8$ )	-0.045	0.04



**Figure IV.13.** Predicted versus experimental dimensionless droplet diameters for the single- (grey triangles) and the two-fluid (black triangles) nozzles. The droplet size measurement was carried out with a laser beam placed at a fixed distance  $L = 14 \text{ cm}$  from the extremity of the nozzle. Validation points of the model are shown in white circles.

The values taken by Eq.IV.4 parameters (Table IV.4) make it possible to highlight the influence of process conditions. For the two-fluid nozzles, the liquid outlet speed has a direct positive influence on droplet size ( $\beta_8 = 0.04$ ). The air pressure ( $\alpha_7 = -2.2$ ) is the most influencing parameter on the atomization, as the energy allowing the rupture of the liquid jet in drop is

brought by the air pressure. The model also takes into account the geometrical aspects associated to the spraying system through the constants  $\alpha_5$  and  $\alpha_6$ . Nozzle geometry is shown to have a significant incidence, especially when considering the ratio of the section of the gas outlet to that of the liquid outlet ( $\alpha_5 = 0.94$ ).

On the other hand for single-fluid nozzles, the liquid outlet speed has a negative influence on droplet size ( $\beta_8 = -0.045$ ). The energy allowing the rupture of the jet in droplets only depends on the liquid pressure which is narrowly connected to its outlet speed (Fig. IV.5). The constants  $\alpha_5$  and  $\alpha_6$  are set to zero because there is no gas outlet, and because the effect of the variation of the nozzle liquid section is taken into consideration through the variation of the liquid outlet speed.

Concerning the influence of the physicochemical properties of the liquid, constants related to the density, surface tension, and viscosity ( $\alpha_1$ ,  $\beta_3$  and  $\alpha_4$ ) are very weak in the case of two-fluid nozzles, reinforcing the fact that process parameters are mainly controlling the droplet size. The influence of density ( $\alpha_1$ ) is relatively weak. An increase in liquid density generally produces a more compact spray that is less exposed to the atomizing action of the high-speed air and thus lead to a small increase in the droplet diameter (Rizkalla and Lefebvre, 1975; Lefebvre, 1980). On the other hand for single-fluid nozzles, physicochemical parameters highly affect the droplet size. The constant associated with the liquid surface tension ( $\alpha_4 = 1.17$ ) indicates an increase in the energy necessary to spray with an increase in surface tension. The low value of constant  $\alpha_1$  indicates that the influence of density is relatively weak.

The suggested model thus makes it possible to consider the effects of the geometry of the atomizing systems (*i.e.* the liquid outlet slits which are different for the selected nozzles) through a unique equation (Eq.IV.4).

#### IV.1.1.5. Conclusions

When using two-fluid nozzles, the atomization mechanisms and the resulting droplet sizes are mainly affected by the air pressure. On the other hand, using single-fluid nozzles, the liquid physicochemical properties and the liquid outlet speed both display significant roles. Although the physical mechanisms subjacent with atomization in the two spraying systems are controlled

by the differential speed between the air and the liquid, the different origins of the energy input explain the specific behavior (*e.g.* opposite influence of liquid speed) of the two nozzle types (single-fluid and two-fluid nozzles). According to this mechanism, it has been possible to develop an original and descriptive model based on an adimensional approach. An unique equation was proposed whatever the nozzle type and is associated with two sets of coefficients corresponding to the two types of nozzles. In order to improve the physical understanding of the underlying phenomenon, an experimental approach specially designed to allow the establishment of regime maps through the identification of well-known dimensionless numbers (*e.g.* Reynolds, Weber, etc.) could be further carried out.

***Acknowledgments*** - The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR ALIA 2008) for its financial support through the programme "Reactive Powder".

## **IV.2. Contraintes et écoulements granulaires d'un lit de particules en malaxeur expérimental**

Afin de parvenir à une meilleure maîtrise du procédé d'agglomération humide en mélangeur à pales, l'étude bibliographique a montré la nécessité d'avoir accès à une description fine du comportement de la poudre pendant son écoulement, et de l'effet de l'ajout d'un liant sur cet écoulement. Cette étude a aussi mis en évidence les propriétés particulières des milieux granulaires qui transmettent les contraintes par friction via des points de contact particule-particule. Le modèle de Janssen, bien que fondé sur des hypothèses simplificatrices, est très utilisé aujourd'hui pour accéder à l'état de contrainte d'un lit de particules ensilé. Il rend compte du phénomène de saturation de la contrainte verticale à la base d'une colonne de particules à mesure que sa hauteur augmente et dépasse la longueur caractéristique de Janssen. La deuxième partie du chapitre IV a ainsi pour objectif d'apporter des éléments de caractérisation d'un lit de particules aussi bien à l'état statique par l'étude de la distribution des contraintes verticales, que sous sollicitation dynamique par l'étude de la contribution des apports mécaniques aux écoulements de particules en malaxeur modèle. Cette étude est doublement originale. D'une part, nous avons développé un malaxeur modèle simplifié muni d'une pale unidirectionnelle afin d'étudier le système selon deux dimensions seulement. D'autre part, l'état initial statique d'un lit de particules latéralement confiné a d'abord été caractérisé finement afin d'extraire des critères pertinents pour aider à la compréhension des phénomènes observés sous sollicitation mécanique. Les travaux présentés ont été réalisés en majeure partie sur un matériau naturel complexe (semoule de blé dur et agglomérats humides) et dans une moindre mesure, sur un matériau modèle (billes de verre) traditionnellement utilisé par les physiciens et mécaniciens. Ils s'appuient sur une publication acceptée, une autre soumise et deux autres en préparation :

- S. Mandato, T. Ruiz, B. Cuq, What is Janssen's length doing in an agglomerator? Powder Technology, 2012. In press.*
- S. Mandato, B. Cuq, T. Ruiz, Experimental study of vertical stress profiles in a confined granular bed under static and dynamic conditions, European Physical Journal E, 35, 7, 56, 2012.*
- S. Mandato, B. Cuq, T. Ruiz, Influence de la largeur du capteur et cartographie 2D des contraintes verticales, In preparation.*
- S. Mandato, T. Ruiz, B. Cuq, Characterization of particles' motions in a granular bed under a mechanical solicitation. In preparation.*

## **IV.2.1. What is Janssen's length doing in an agglomerator ?**

### **IV.2.1.1. Abstract**

In a wet agglomeration process occurring in a low shear mixer, the function of the blade is to promote emergence of stable agglomerates and to homogenize the liquid sprayed on the powder surface. The design of the bowl and the mixing blade along with the values of the process parameters (load, rotation speed, *etc.*) contribute to the agglomeration mechanisms. In this work a preliminary approach is conducted to study the mechanical input during agglomeration through the analysis of static and dynamic stress distributions (by force measurements) and particles' motions (by visualizations through a transparent wall) in the powder bed, using an experimental mixing cell. A characteristic depth is identified as a representative parameter of the static state of a laterally confined semolina bed. This characteristic depth is implied when the granular medium is submitted to a vertical mechanical stress. For wet agglomerates, the static distribution of vertical stresses can be approximated by the Janssen's model. Under dynamic conditions, a correlation is found between the mechanical resistance of agglomerates and the maximum vertical stress according to the water content. In the context of wet agglomeration in a mixing device, these results allow to consider the role of the characteristic length in the mixing bowl.

### **IV.2.1.2. Introduction**

During a wet agglomeration process inside a low shear mixer, the blade function consists in two major roles: (i) to homogenize the distribution of the liquid sprayed on the powder surface and (ii) to induce a stress field in the granular medium which allows mechanical resistance of the agglomerates. The design of the bowl and the mixing blade along with the values of the process conditions (load, rotation speed, energy input, *etc.*) are known to significantly contribute to the agglomeration efficiency. The optimization of the capacity of a mixing device to agglomerate necessitates an excellent knowledge of the mechanical energy input associated with the properties of the granular medium. Inside the mixing bowl, particles' motions and flows generated by the mechanical energy input are three-dimensional and specific to their localization relative to the blade. Their direct monitoring inside the mixer bowl requires the application of different methods, such as the positron emission particle tracking (Broadbent and Bridgwater, 1995; Stewart *et al.*, 2001; Hiseman *et al.*, 2002; Laurent and Bridgwater, 2002) or particle

image velocimetry (PIV) (Lueptow *et al.*, 2000; Conway *et al.*, 2005; Ostendorf and Schwedes, 2005; Slominski *et al.*, 2007). The application of these methods often remains specific to a certain kind of mixing device and does not allow to identify characteristic lengths and times that could be used to typify different types of mixing devices.

In a mixing device, the motion of the blade disturbs the initial static stress profile of the powder bed. The initial static stress is greatly dependent on the powder mechanical properties and on the filling procedures of the powder in the mixing bowl. Concerning the description of the static state of a powder bed, the work of Janssen in 1895 (Janssen, 1895; Sperl, 2006) is one of the first approach which gives the vertical stress profile in a static confined granular medium as the solution of the stress balance. The Janssen's model predicts a relation between the average stress in the vertical direction and the depth in the column (*i.e.* the height of particles). It is based on restrictive hypotheses such as the validity of a continuous approach at the container scale and the horizontal uniformity of the vertical stress at each depth. It is introducing two major coefficients: the static coefficient of friction between the wall and the grain defined by the well-known Coulomb law without cohesion (Eq.IV.5) and the Janssen parameter which is the quantification of the vertical stresses deflection into horizontal stresses (Eq.IV.6) and is supposed to have the same value in the entire column:

$$\mu = \tau_{xz} / \sigma_{xx} \quad \text{at the wall} \quad (\text{Eq.IV.5})$$

$$K = \sigma_{xx} / \sigma_{zz} \quad \text{at each depth} \quad (\text{Eq.IV.6})$$

where  $\tau_{xz}$  is the shear stress at the wall and,  $\sigma_{xx}$  and  $\sigma_{zz}$  are respectively the average horizontal and vertical stresses. Janssen (Janssen, 1895; Sperl, 2006) considered a vertical column filled with grains in a static state and wrote the balance between forces exerted by the grains to the wall and the vertical forces, for a horizontal slice of grains considered as continuous. In the common case of no overweight at the top boundary, the Janssen's law is:

$$\sigma_{zz} = \rho_p g l_j \left[ 1 - \exp\left(-\frac{z}{l_j}\right) \right] \quad (\text{Eq.IV.7})$$

where  $\rho_p$  is the density of the particles,  $z$  is the vertical coordinate (positive in the downwards direction),  $g$  is the gravity acceleration. The parameter  $l_j$  is the Janssen's length given by:

$$l_j = \frac{D_h}{4 \mu K} \quad (\text{Eq.IV.8})$$

where  $D_h$  is the hydraulic column diameter defined by  $D_h = 4S/P$  where  $S$  and  $P$  are respectively the section area and the perimeter of the column. The Janssen's length depends on collective properties of the granular matter ( $K$ ), on the container's dimension ( $D_h$ ) and on their interaction ( $\mu$ ). For a given column diameter, the  $K\mu$  product is the parameter used to fit the Janssen's model on experimental data. The Janssen's factor  $K$  gives an indication on the stress deflection inside the confined powder bed. In the Janssen's model,  $K$  is assumed to be constant along the vertical direction. Moreover, Janssen (Janssen, 1895; Sperl, 2006) made the assumption that the friction at the cylinder wall is fully mobilized in the upward direction and everywhere at a sliding threshold (*i.e.* the Coulomb condition). We can notice that great care have been taken to fully mobilized the friction at the wall in previous works (Vanel *et al.*, 2000; Ovarlez *et al.*, 2003; Ovarlez and Clément, 2005), to ensure the Coulomb law between normal and tangential stresses.

In the present work, the distribution of vertical stress profiles is experimentally investigated in the center of a granular bed confined in a mixing cell under different hydration conditions. An original experimental mixing device is developed, allowing the establishment of the distribution of vertical stresses under static and dynamic conditions for a laterally confined granular bed and the characterization of particles' motions, induced by a unidirectional moving flat blade, using visualizations through a transparent wall and force measurements directly on the blade. In the case of semolina wet agglomeration with water, the influence of the water addition level on the static and dynamic states of the granular bed and the influence of the blade speed under dynamic conditions are studied. The identification of new characteristic lengths is discussed.

### **IV.2.1.3. Materials and methods**

#### **IV.2.1.3.1. Raw material**

Durum wheat semolina of industrial quality is used and stored in hermetic containers at 4°C until experiments are carried out.

#### **IV.2.1.3.2. Preparation of wet agglomerates**

Wet agglomerates are prepared by combining durum wheat semolina with water. Native semolina is first mixed in a low shear mixer Labo 25 (Mahot, France) at 9.2 rpm for 2 min before



water addition to equilibrate the temperature (at 20 °C). The water is then added by spraying directly on the semolina inside the mixer bowl (under constant mixing rate of 9.2 rpm) using a flat spray nozzle (TPU650017, Spraying System Emani, France) connected to a regular water supply network with a stable pressure (Saad *et al.*, 2011). Different quantities of water are sprayed at constant rate (20 g.min<sup>-1</sup>) in different time intervals in order to reach different hydration levels. After water addition, the wet masses are mixed during 2 min (under constant mixing rate of 9.2 rpm). According to the quantity of water added to the wet agglomerates, wet agglomerates of different water content are obtained at the end of each mixing stage. It can be noted that measurements on wet semolina are carried out immediately after the end of the manufacture so as to avoid particle drying.

#### IV.2.1.3.3. Analytical methods

Water content - Water contents of native semolina and wet masses are determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods (AACC, 2000).

Particle size distribution - Particle size distribution of native semolina is measured by using laser granulometry (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. Particle size distribution of agglomerates is measured immediately after mixing: 250 g of the wet mass were sampled and sieved for 2 min over a column of 10 metallic sieves of decreasing mesh (2; 1.250; 0.900; 0.800; 0.710; 0.630; 0.500; 0.400; 0.315 and 0.250 mm). For each wet mass, the granulometric distribution is obtained by weighing the mass of grains obtained on each sieve.

Density - The semolina true density ( $\rho_s^*$ ) is determined in triplicate using a nitrogen pycnometer (Ultrapycnometer 1000, Quantachrome Instruments). The true density of the semolina is found to be  $1.478 \pm 0.005$  g.cm<sup>-3</sup>.

Slope angle - The slope angle of semolina ( $\alpha = 43.8 \pm 0.3^\circ$ ) is measured in triplicate using a powder tester (Erweka, France).

Shear tests - The cohesion of the agglomerated powders is evaluated with the FT4 powder rheometer (Freeman Technology Ltd., Worcestershire, UK). Before each test, the powder sample is gently conditioned mechanically through the gentle action of the conditioning blade (*i.e.* helix

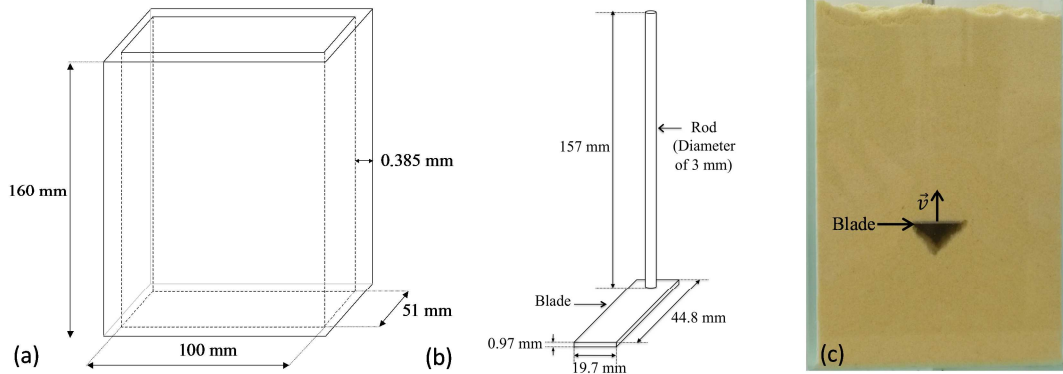
angle of  $-5^\circ$ , 23.5 mm in diameter). The conditioning blade is first introduced in the empty system (*i.e.* two superimposed 50 x 50 mm vessels), before the powder sample is introduced. The powder sample is then gently filled using a large spatula in the test vessel. The conditioning stage consists in slicing the powder bed from the bottom to the top at constant tip speed ( $60 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ) to remove any excess air and create a uniform powder bed in a low stress packing state. The FT4 powder rheometer is able to measure the torque required to move a torsional shear head at a specified shear rate and normal stress (Freeman *et al.*, 2009).

After the initial conditioning cycle of the powder sample is then pre-consolidated using a vented piston (48 mm diameter), at a normal stress of 15 kPa for 60 sec. The upper cylindrical vessel is split to remove the excess powder material so that the volume of the powder sample is maintained constant (393 ml) in the 50 x 50 mm cylindrical borosilicate test vessel. The shear tests are conducted using a specific shear cell (48 mm in diameter) that consists of 18 vertical segments (blades) ensuring that the shear process occurs within the bulk solid. The pre-consolidated powder sample is then pre-sheared ( $18^\circ\cdot\text{min}^{-1}$  over  $60^\circ$ , at a normal stress of 15 kPa) to achieve a critical state, after which the normal stress is lowered, and the sample is sheared further to obtain a yield point. The pre-shear/shear sequence is repeated 3 times to obtain a yield locus. For each powder sample, the yield loci are obtained for 9, 8, 7, 6 and 5 kPa values of normal stress; and each yield locus is analyzed using Mohr stress circle analysis to obtain the values of major principal stress, unconfined yield strength, friction coefficient and cohesion (Carson and Wilms, 2006; Freeman, 2007).

The uniaxial mixing cell - A low shear mixing device is specifically built for the present study. It consists of an open glass cell and a 1D-moving blade, screwed on a rod which is linked to a load cell of a texture analyser (TA.XTplus, Stable Micro System). The cell is a glass container, made of five transparent glass walls (sides and base) (Fig.IV.14). A flat and rectangular steel blade is especially designed (Cryotec, France) to fit into the glass container (Fig.IV.14).

Vertical stress under static conditions - Static stress tests are performed on semolina and wet agglomerates of 25, 35, 45, 50, or 56 g water/100 g dry mass. In the cell filled with the same height of powder ( $h_p = 14 \text{ cm}$ ), we measure the force exerted by the powder on the blade at different depths. At the beginning of each test, the blade is set in the middle of the cell and taken down to the desired distance from the bottom of the cell. The powder is sprinkled with a funnel (outlet diameter of 1.23 cm), placed in the middle of the cell, at 50 mm height from the upper side of the cell, until it reaches a constant height of 14 cm. As different studies demonstrate a

marked influence of the construction procedures on stress distributions in a granular pile (Brockbank *et al.*, 1997; Vanel *et al.*, 1999; Tixier *et al.*, 2004), great care is taken to keep constant and reproducible the filling procedure of grains in the cell.



**Figure IV.14.** Schematic representations of (a) the glass cell and (b) the blade (not to scale). (c) Picture of the glass cell filled with semolina during the vertical blade motion ( $\vec{v}$  is the blade speed).

The initial compactness of the powder bed is evaluated by weighing the powder mass  $M_t$  contained in the cell filled with 14 cm of powder. The compactness ( $\phi$ ) is calculated using Eq.IV.9:

$$\phi = \frac{V_s}{V_{sample}} = \frac{M_t}{\rho_s^* V_{sample} (1 + w)} \quad (\text{Eq.IV.9})$$

with  $V_s$  the solid volume of powder in the cell,  $V_{sample}$  the total volume of powder in the cell ( $V_{sample} = 701.5 \text{ cm}^3$ ) and  $w$  the powder water content (dry basis). The good reproducibility of the filling procedure of powders in the cell is assumed to allow a good reproducibility of the compactness from one powder bed to the other for a fixed type of powder. However, no standard deviation of the powder compactness has been calculated.

Force measurement, under static conditions (without any movement of the blade) is done during 2 seconds at the initial blade position. Vertical stress values are calculated by dividing the measured force by the blade surface. The entire procedure (*i.e.* probe positioning, cell-filling with powder and force measurement) is repeated five times for each blade position (every centimeter for depths between 1 and 14 cm) and for each type of powder. An average value of the vertical stress is calculated from the five measurements carried out at the same depth. It can be noted that for each type of powder the same powder sample is used for only ten stress measurements so as to avoid particle segregation which can appear during the filling and emptying steps occurring between successive static stress tests. The measurement order of the

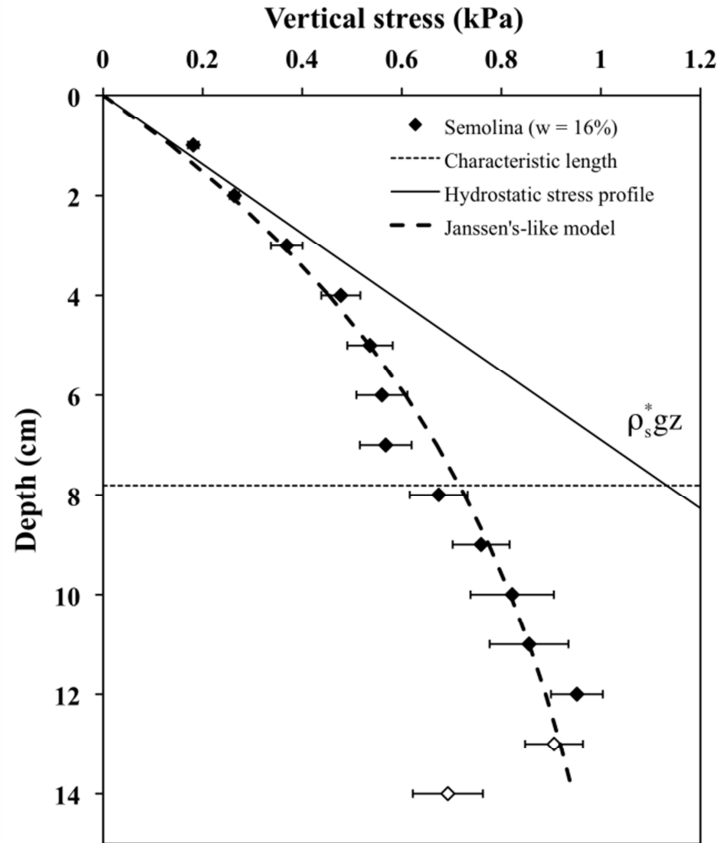
vertical stress at the different depths is randomised and as a result, a same sample of powder is used to measure vertical stress at different depths. Thus, static tests are performed on different samples of the same type of powder at the same depth of the blade position.

Vertical stress under dynamic conditions - Force measurements are carried out during the vertical rise of the blade in the container. Before each test, the blade is taken down to the bottom of the cell and the granular material is poured in the cell to reach a constant height of 14 cm. Force measurements are then conducted when the blade is moving up at different blade speeds (10, 20, 30, or 40 mm.s<sup>-1</sup> for semolina and 30 mm.s<sup>-1</sup> for wet agglomerates of different water contents, from 25 to 54 % dry basis) with five replications each.

#### **IV.2.1.4. Results and discussions**

##### **IV.2.1.4.1. Vertical stress profiles under static conditions**

For native semolina - Under static conditions, the vertical stress profile, obtained for the bed of native semolina particles, shows a quasi-linear increase with depth until 4 cm depth and then, it deviates from the hydrostatic profile ( $\rho_s^* g z$ ) (Fig.IV.15). A gap between the local and the hydrostatic stress profiles appears at 4 cm depth and increases with depth up to the bottom (14 cm depth). These results highlight an underlying phenomenon, linked to the capacity of a granular medium to shield vertical stresses thanks to frictions between grains. This phenomenon is comparable to the Janssen's phenomenon of lateral redirection of vertical stress even if the experimental cell only conducts local stress measurements compared to the Janssen work (Janssen, 1895; Sperl, 2006), where the cell is cylindrical and the blade covers the whole section of the cell. The vertical stress profile corresponds to values of vertical stress obtained for different blade depths in a powder bed of a same fixed height. A decrease of the vertical stress values near the bottom (at 13 and 14 cm depths) is observed. Ovarlez and Clément (2005) highlight the same discrepancy of vertical stress profile near the bottom using three-dimensional simulations of a granular bed laterally confined and assimilated to an isotropic, elastic and homogeneous medium. These authors suggest that the bottom supports a certain proportion of the vertical stress and redirects this stress laterally according to the stress redirection phenomenon to the side walls.



**Figure IV.15.** Vertical stress profile of the laterally confined semolina bed under static conditions.

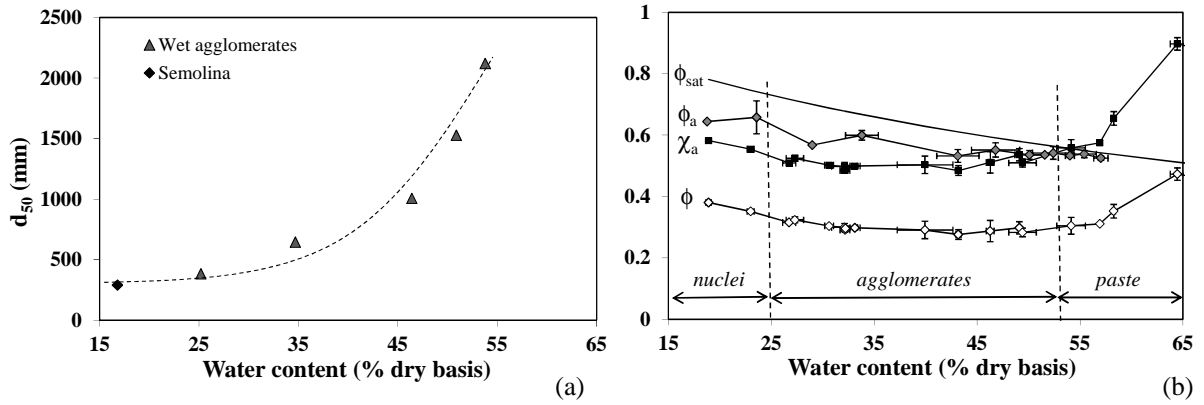
On one hand, in the traditional Janssen's experiment (Janssen, 1895; Vanel *et al.*, 2000; Ovarlez *et al.*, 2003; Ovarlez and Clément, 2005; Sperl, 2006; Di Felice and Scapinello, 2010; Qadir *et al.*, 2010), the vertical stress is evaluated on the whole horizontal surface that bears the weight of the entire powder bed (*i.e.* global measurements), and the vertical stress profile corresponds to values of vertical stress obtained for different heights of the powder bed. On the other hand, the new experimental device allows local stress measurements (*i.e.* the vertical stress is not measured on the whole horizontal surface at a given depth). Results of the study demonstrate that these two methods give similar but not identical results as it is noticed by Ovarlez and Clément (2005).

In order to identify a mathematical equation that could fit well the experimental data, values of local measurements are fitted according to a Janssen-like model using Eq.IV.7 with  $\rho_s^*$  instead of  $\rho_p$ . Even if the physical approach used to build the Janssen's model is not directly transposable to the local measurements, the exponential dependence is used to describe the local pressure profile based on a phenomenological point of view and to define an "apparent" length, which is not equivalent to the Janssen's length. This "apparent" length is assimilated to a characteristic length

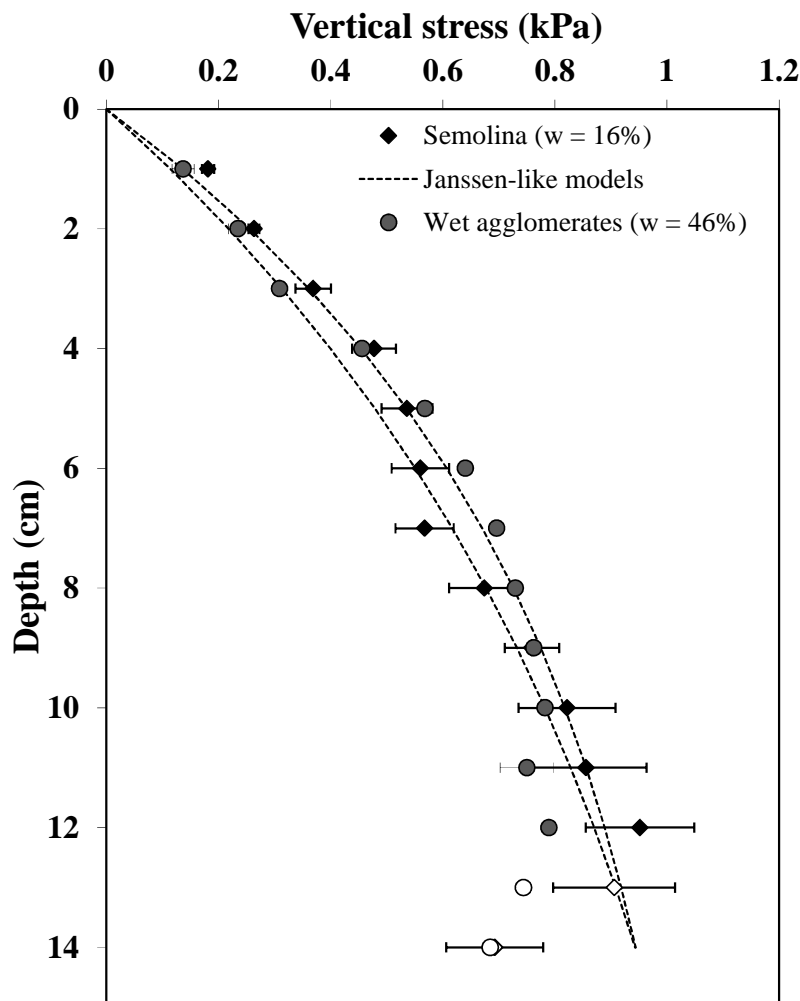
( $\lambda$ ), representing the depth starting from which we suppose that the force network percolates to the side walls. The coefficient  $\lambda$  is calculated by fitting the Janssen-like model on experimental data using a non linear optimisation procedure (Gauss Newton procedure). To eliminate the "bottom effect", the two last points (white points in Fig.IV.15) are not taken into consideration to fit the model on experimental data. This "apparent" depth is found to be equal to 7.81 cm which is lower than the Janssen's length ( $\approx 23$  cm) (Mandato *et al.*, 2012b - Chapter IV.2.2). The Janssen's length value has been measured by Mandato *et al.* (2012b) (Chapter IV.2.2) in the same experimental cell but with a large probe, by fitting the Janssen's model on global vertical stress values obtained by measuring vertical stress on the entire section of the column for different bed heights. The model parameter of the "apparent depth", corresponding to the  $K\mu$  product, has a value of 0.22, in agreement with already published values that range between 0.2 and 0.35 (Janssen, 1895; Vanel *et al.*, 2000; Sperl, 2006; Di Felice and Scapinello, 2010).

For wet agglomerates – To describe the effects of the change in powder characteristics on the vertical stress profile during agglomeration (from native particles to wet agglomerates), different agglomerates are prepared using different water content conditions, and tested using the uniaxial mixing cell. Water addition levels are selected based on the hydro-textural diagram of wheat semolina and range between the hygroscopicity limit and the agglomerate/paste transition (Saad *et al.*, 2011). According to the water content, three regimes are identified: (i) a nucleation regime between 16 and 30% water contents, (ii) a growth regime between 30 and 50% and (iii) the agglomerate/paste transition, beyond 50% water content and until liquid saturation of the void network (Barkouti *et al.*, 2011). The physical parameters of agglomerates (compactness, plasticity, size, *etc.*) are found to greatly depend on water addition level. Among these parameters, the median diameter of agglomerates increases with water content (Fig.IV.16a) in accordance with a power law which can be interpreted like a fractal growth as described by Rondet *et al.* (2008). Relating to the process conditions of elaboration, water content, median diameter and compactness are linked and one of them is sufficient to characterize agglomerates.

The local vertical stress profiles of wet agglomerates are relatively closed to the vertical stress profile of semolina (Fig.IV.17) and display the same vertical stress saturation phenomenon at the deepest positions. These results show that static vertical stress distribution for wet agglomerates' packing can be explained by the same shielding effect as it was observed for the semolina.



**Figure IV.16.** Main characteristics of durum wheat semolina and wet agglomerates: (a) Variations in  $d_{50}$  according to the water content, (b) Variations in the solid volume fraction of the bed bulk at saturation ( $\phi_{sat}$ ), in the agglomerate compactness ( $\phi_a$ ), in the bed bulk compactness ( $\phi$ ) and in the volumic fraction of agglomerates ( $\chi_a = \phi/\phi_a$ ) according to the water content (adapted from Saad *et al.* (2011)).



**Figure IV.17.** Vertical stress profile of a laterally confined bed of agglomerates (46 g water / 100 g dry mass) and of the semolina bed under static conditions.

In the case of a packing constituted by wet agglomerates, the density of the particles corresponds to the apparent density of each wet agglomerate ( $\rho_a$  instead of  $\rho_p$ ) given by the ratio between, the solid mass ( $m_s$ ) added to the mass of water ( $m_w$ ), and the volume of the agglomerate ( $V_a$ ), and is given by Eq.IV.10.

$$\rho_a = \phi_a \rho_s^* (1 + w) \quad (\text{Eq.IV.10})$$

where  $\phi_a$  is the agglomerate compactness and  $w$  is the bed bulk water content. The true density of the agglomerates depends on their compactness which is directly related to their water content (Rondet *et al.*, 2009). The variation of the agglomerate compactness with water content (Fig.IV.16b) is given by Eq.IV.11 (Rondet *et al.*, 2009):

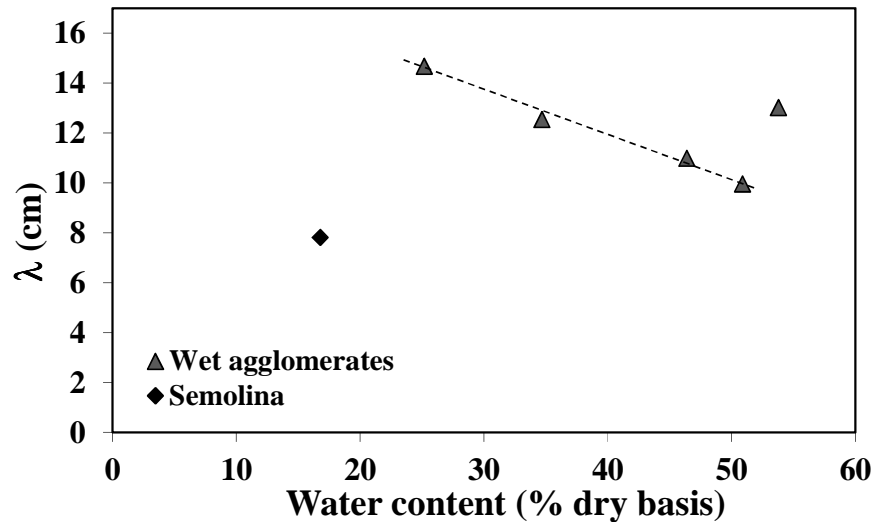
$$\phi_a^{-1} = 1 + d_s^* w_{sat}^n w^{1-n} \quad (\text{Eq.IV.11})$$

where  $d_s^*$  is the ratio between semolina true density ( $\rho_s^*$ ) and water true density ( $\rho_w^*$ ),  $n$  is a parameter linked to hydro-mechanical characteristic of wet agglomerates, which takes into account the rearrangement of the granular media due to capillary interaction with water (Rondet *et al.*, 2009), and  $w_{sat}$  is the water content at saturation when all pores are filled with water (Rondet *et al.*, 2009; Rondet *et al.*, 2010; Saad *et al.*, 2011). Using equations IV.10 and IV.11 and the values of  $w_{sat} = 58\%$  and  $n = 0.57$  (Saad *et al.*, 2011), density of wet agglomerates are calculated for each of the different water contents tested. These values are used to fit the model on experimental data of stress profiles of wet agglomerates (dotted lines in Fig.IV.17) and to determine values of the characteristic lengths ( $\lambda$ ).

Fig.IV.18 shows the variation of the characteristic lengths according to the water content. The characteristic lengths of wet agglomerates are higher than the characteristic length of semolina and range between 9.9 and 14.7 cm. It starts to increase with the increase of water content until 30% which marks the transition between the nucleation regime and the agglomerates' growth regime (Barkouti *et al.*, 2011; Saad *et al.*, 2011). Over the range of water content of the agglomerates' growth regime (between 30 and 50%),  $\lambda$  decreases slightly with the water content, but stays markedly superior to the value measured on the non-agglomerated raw granular medium. Above the agglomerate/paste transition (above 50%),  $\lambda$  starts to increase again. A certain proportion of the agglomerates already undergoes the agglomerate/paste transition and should be considered as pieces of dough rather than agglomerates. Thus, the granular medium at



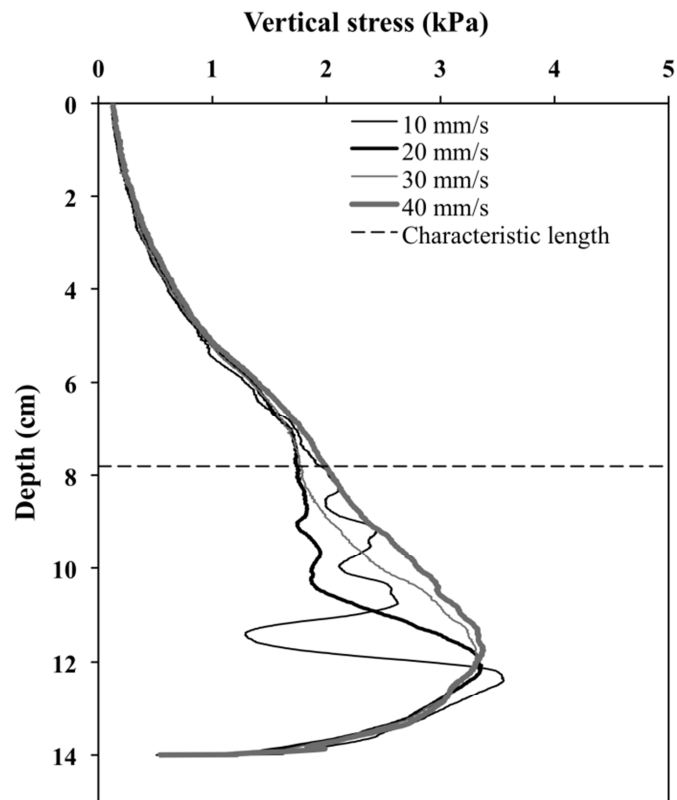
54% of water content tends to behave like a dough, which explains the high value of the characteristic length ( $\lambda = 12.4 \text{ cm}$ ) for a high value of the water content. The dependence of  $\lambda$  with water content could be further analysed by considering the variations of the friction, cohesion, compactness and size of agglomerates with water content.



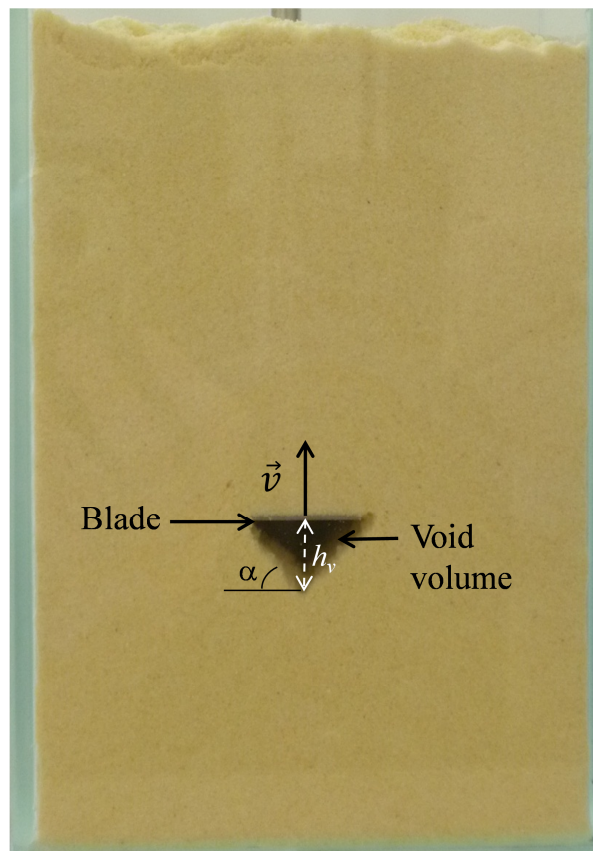
**Figure IV.18.** Variations of the characteristic length ( $\lambda$ ) according to the water content of the granular media for semolina and for the wet agglomerates.

#### IV.2.1.4.2. Vertical stress profiles under dynamic conditions

The upward blade motion allows the particles' displacement in the semolina bed and generates disturbances of the vertical stress profile. Several phenomena can be identified under dynamic conditions from the measurements (mean of five repetitions) of stress disturbances due to the blade motion (Fig.IV.19) and also from visualizations of the particle movements through the transparent glass wall (Fig.IV.20). For different blade speeds, different curves' shapes, which can be qualitatively described according to the blade displacement from the bottom to the top of the semolina bed, are observed (Fig. IV.19). Starting from the bottom, the stress value is initially equal to the saturation stress as defined in static conditions (Fig.IV.15) according to the Janssen's law.



**Figure IV.19.** Vertical stress profiles under dynamic conditions for semolina at different blade speeds.



**Figure IV.20.** Picture of the glass cell filled with semolina.

When the probe starts to move, a sharp increase is observed up to a peak of stress. The measured stress and depth values at the peaks are found independent of the blade speed. Whatever the blade speed is, peaks are reached at a similar depth of  $12.1 \pm 0.3$  cm (Fig.IV.19). During the probe rise, the creation of a triangular void volume taking place just below the blade can be observed. The volume of this void seems to be “taken” from the compaction of the granular layer just upon the blade. Its shape is dihedron with an equilateral triangle section which height could be theoretically given by Eq.IV.12:

$$h_{v-theo} = \frac{L_p \tan \alpha}{2} \quad (\text{Eq.IV.12})$$

where  $L_p$  is the blade width (2 cm), and  $\alpha$  is the angle of repose of semolina. The same phenomenon has already been observed on glass beads confirming the validity of Eq.IV.12. (Mandato *et al.*, 2012b – Chapter IV.2.2). Using the software ImageJ 1.45 (U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA), the height of the void below the blade is measured for five different blade positions at each blade speed for the semolina bed. No influence of the blade position or the blade speed (in the tested speed range) is observed and a value of  $h_{v-measured} = 1.19 \pm 0.1$  cm is obtained. The slightly higher value for the measured void height than for the theoretical one ( $h_{v-theo} = 0.95 \pm 0.01$  cm) could be explained by the low value of cohesion measured for semolina ( $c = 1.31 \pm 0.25$  kPa) leading to an imperfect dihedral void shape during the blade rise. Moreover, the height at stress peak for semolina is not directly equal to the height of the initial void zone created at the beginning of the trial. The work of Mandato *et al.* (2012b) (Chapter IV.2.2) shows that the stress peak is more likely due to a decrease of the vertical stress value near the bottom. During the formation of the void volume, and all along the blade displacement, particles above the blade are evacuated by micro-avalanches in this zone and form a concave heap (crater-like) on both sides of the blade (Fig.IV.20).

At depths above the peak, the probe rise induces periodic fluctuations in the vertical stress profile. Their intensities and frequencies are depending on the blade speed. These fluctuations may be explained by successive phases of loading and relaxation taking place above the blade. Loading is linked to the force intensity of inter-granular vaults which act against the blade upward motion and deflect the stresses laterally, and also to the compaction of the bed zone located just above the blade and up to the front of disturbance vertically generated. Maladen *et al.* (2009) also reported successions of compaction and breakage on experimental curves of force/displacement relative to a blade-like sensor moving horizontally at constant speed in a bed

of sand. However, the constant weight of the displaced granular blade ensures a good regularity in the frequency of these phenomena.

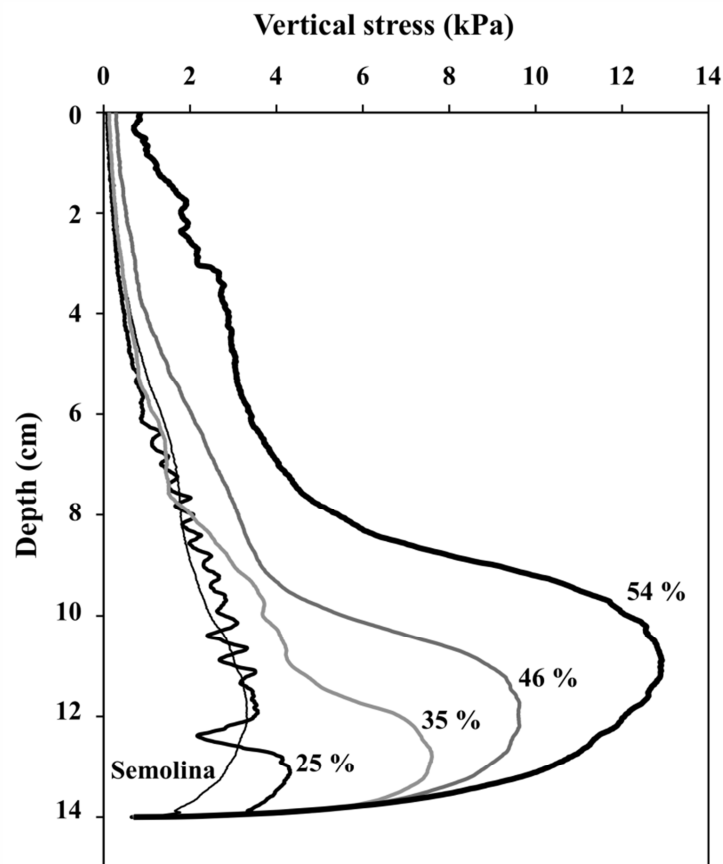
When the stress applied exceeds the stress threshold value of the chains, a rupture of the force chains occurs. Particles of the rupture zones collapse, and can be then evacuated by avalanches in the void zone under the blade. In the same time, the stress exerted on the blade is rapidly relaxed. After this discharge, the measured stress increases progressively and the contact network is “repaired” by new contacts which could be activated by the vertical motion. This mechanism of rupture and repair is periodic until it weakens entirely. If the peak intensity of each rupture seems to be independent of the blade speed, the frequency increases with the decrease of the blade speed. These successions of charge and discharge succeed until the blade reaches a specific depth ( $\lambda$ ) (Fig.IV.19). Above this point, the stress profiles are overlaid. This specific depth is independent of the speed and close to the characteristic length (7.81 cm) of the bed of semolina.

This characteristic depth separates two distinct zones where frictions between particles via the vaults, and between particles and the side walls are different. In the zone below  $\lambda$  (from the bottom to the characteristic length), the horizontal percolation of the force network until the side wall, ensures a high transmission of the deflected forces due to the blade displacement. This percolation acts against the blade penetration in the particle bed. The value of the ratio between the mean applied force and the mean resistance force of the chains’ force network, leads to the relaxation dynamic which is characteristic of a frictional regime. In the zone above  $\lambda$  (from the characteristic length to the top surface), as the force network does not percolate, collective particle motions take place and depend only on the local degrees of freedom (particle rotation, frustration, coordinance, ...). A smooth frustrated regime (almost free-flowing) characterizes the phenomena which take place in this zone.

The dissipation of the mechanical energy provided by the blade is thus depending on the blade penetration depth in the powder bed. When the blade moves in a depth inferior to the characteristic depth, a part of the mechanical energy is transmitted to the grains and allows powder flow which can lead to an increase in the collision probability of particles and drops, enhancing the agglomeration process. The other part of the energy is dissipated by intergranular friction. This proportion of dissipated energy significantly increases when the blade depth is higher than the characteristic depth. Moreover, in this frictional zone, the probability of

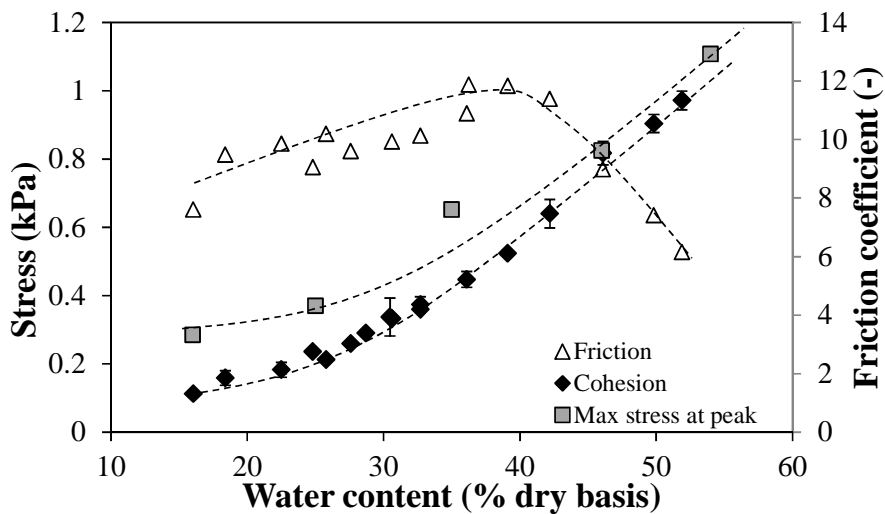
ruptures of agglomerates is higher due to abrasion. In the context of wet agglomeration, the characteristic length can be useful to design bowl geometries in order to assure a bowl height lower than its width. For a mixing bowl of defined dimensions, the characteristic length can also be used as a reference regarding to the filling rate.

For wet agglomerates, dynamic stress profiles are measured for the different agglomerates water contents at a constant blade speed of  $30 \text{ mm.s}^{-1}$  with five replications each (Fig.IV.21). At the low water content (25 %), the observed phenomena occur differently than those previously described for the native semolina. A characteristic length that plays the same role is also observed but the frequency of the charge/discharge peaks is higher. At 25% water content, *i.e.* in the nucleation regime, the powder bed is constituted of native semolina particles and an emerging population of nuclei (with a diameter range between 500 and 800  $\mu\text{m}$ ) arising from the association of native semolina particles. Actually, Rondet *et al.* (2012) defined a multi-scale transition zone around 30% water content for a powder bed constituted of a mix of hygroscopic semolina powder (“native particles” scale) and nuclei (“textured granular assembly” scale).



**Figure IV.21.** Vertical stress profiles under dynamic conditions for wet agglomerates of five different water contents (% dry basis) at a blade speed of  $30 \text{ mm.s}^{-1}$ .

For higher water content (between 30 and 51%), the stress-displacement curves measured for the bed of agglomerates present the same profile than the semolina one, except that stress values of the first peak are higher and increase with water content. When the water content increases from 16 to 52%, the cohesion increases according to a power law (exposant  $\sim 2$ ) whereas the friction increases from 16% to 40% water content and then decreases (from 40% to 52%) (Fig.IV.22). The cohesion results from the capillary interaction established between the humid structures. According to the water content, the increase of stress values of the first peak is well correlated with the increase of the agglomerate mechanical resistance (*i.e.* cohesion and/or friction) (Fig.IV.22). The cohesion acts as a yield stress related to the behaviour of the humid granular media. At high water content (superior to 50%), sticky dough pieces are in interactions and a dough-like system is then disturbed by the blade motion. Stress exerted on the blade results from the plastic deformation of the medium and should increase until the dough attempts its plastic limit. The characteristic depth loses its pertinence because the discrete particle bed changes for a continuous dough-like bed.



**Figure IV.22.** Variations of the cohesion and friction of agglomerates and the maximum stress value at first peak obtained for wet agglomerates at a blade speed of  $30 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$  according to the water content. Dotted lines represent general tendencies.

#### IV.2.1.5. Conclusions

The Janssen's length is a representative parameter of the static state of a powder bed in a container of a fixed hydraulic diameter. An instrumented cell is developed to measure the local vertical stress profile in the center of a confined bed of particles. A characteristic depth, different

from the Janssen's length, is identified by fitting with the mathematical expression of the Janssen's model. Near the bottom, the failure of the local stress profile relies on phenomena attributed to the presence of the bottom. Experiments presented in this work show that the characteristic length is implied in a bed of particles under a vertical mechanical stress. Two adjacent zones are characterized by the types of particles' motions and flowing regimes. A frictional regime is observed below the characteristic depth and a "low-frustrated" flowing regime concerns the zone between the characteristic depth and the surface. For wet agglomerates the static distribution of vertical stresses can be approximated by the Janssen's model, which constitutes an original result. The influence of the water content on the characteristic depth is presented. Under dynamic conditions, a correlation is found between the cohesion and friction of agglomerates, and the max vertical stress according to the water content. In the context of wet agglomeration in a mixing device, these results allow to consider the role of the characteristic length in the mixing bowl.

**Acknowledgments** - The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR) for its financial support through the scientific program "Reactive Powder".

## **IV.2.2. Experimental study of vertical stress profiles of a confined granular bed under static and dynamic conditions.**

### **IV.2.2.1. Abstract**

In a wet agglomeration process inside a low shear mixer, the blade function is to induce (i) homogenization of the liquid sprayed on the powder surface and (ii) a stress field able to transfer the mechanical energy at the particle scale. In this work we study the mechanical state of a confined powder bed through the analysis of stress distributions (by force measurements) in a rectangular cell in two cases: for a classical model powder (*i.e.* glass beads) and a complex powder (*i.e.* wheat semolina). Two types of vertical stress profiles are obtained according to the type of measurements carried out in the powder bed, either locally (at different positions in the cell) or globally (at the entire base). The global vertical stress profile follows the Janssen's model and the local vertical stress profile highlights a critical length, identified as the percolation threshold of the force network, and a shielding length near the bottom, which is similar to an influence length of the side walls. In the context of wet agglomeration, the results allow to consider the role of the characteristic lengths in the mixing bowl under vertical mechanical solicitation.

### **IV.2.2.2. Introduction**

Wet agglomeration in low shear mixers is based on nucleation and growth mechanisms that generate agglomerates from initial particles (Iveson *et al.*, 2001; Saad *et al.*, 2011). The capability of a mixing device to agglomerate depends on the mechanical input efficiency in regard with the dissipative properties of the granular medium. Equipment parameters (*e.g.* bowl or blade designs) and process conditions (*e.g.* rotation speed or mass load) are known to significantly contribute to the agglomeration efficiency (Broadbent *et al.*, 1995; Stewart *et al.*, 2001; Hiseman *et al.*, 2002; Laurent and Bridgwater, 2002). The main functions of the blade are to induce homogenization of the liquid sprayed within the powder bed and to generate a stress field able to transfer the mechanical energy (by shear, collision or compression) at the particle scale. The mechanical energy input generates motions and flows of particles that can be in situ monitored by different methods, such as positron emission particle tracking (3D) or particle image velocimetry (2D) (Broadbent *et al.*, 1995; Lueptow *et al.*, 2000; Stewart *et al.*, 2001; Hiseman *et al.*, 2002; Laurent and Bridgwater, 2002; Conway *et al.*, 2005; Ostendorf and



Schwedes, 2005; Slominski *et al.*, 2007). With a cyclic mixer, the motion of the blade disturbs the static stress profile of the powder bed. The static stress profile is both dependent on the history of filling of the powder bed in the mixer and on the powder mechanical properties which can be responsible for the constitution of a force network in the powder bed (Radjai, 2008, 2009). Understanding the primary static stress profile of the granular medium before mechanical solicitation is still a scientific goal. The first description of the vertical stress profile in a static confined granular medium was conducted by Janssen in 1895 (Janssen, 1895; Sperl, 2006). Janssen proposed a model that establishes the relation between the average stress at the bottom and the powder bed height in a cylindrical column, based on three major hypotheses: (i) at the measurement scale, the granular bed is considered as a continuous medium, (ii) the vertical stress is supposed to be horizontally uniform, and (iii) the grains at the wall are at the sliding threshold (Janssen, 1895; Vanel *et al.*, 2000; Ovarlez *et al.*, 2003; Ovarlez and Clément, 2005; Sperl, 2006). In the common case of no overweight at the top boundary, the Janssen's law is given by Eq.IV.13-14.

$$\sigma_{zz} = \phi \rho_s^* g \lambda_j \left[ 1 - \exp\left(-\frac{z}{\lambda_j}\right) \right] \quad (\text{Eq.IV.13})$$

$$\lambda_j = \frac{D_h}{4 \mu K} \quad (\text{Eq.IV.14})$$

where  $\phi$  is the bed bulk compactness,  $\rho_s^*$  is the true density of the particles,  $z$  is the vertical coordinate positive in the downwards direction,  $g$  is the gravity constant,  $\lambda_j$  is the Janssen's length, and  $D_h$  is the hydraulic column diameter. Two coefficients were introduced.  $\mu$  is the static coefficient of friction between wall and grains ( $\mu = \tau_{xz} / \sigma_{xx}$ ), where  $\sigma_{xx}$  is the average horizontal stress at the wall and  $\tau_{xz}$  is the shear stress at the wall.  $K$  is the Janssen parameter which quantifies the vertical stress deflection into horizontal stress ( $K = \sigma_{xx} / \sigma_{zz}$ ), where  $\sigma_{zz}$  is the average vertical stress. The Janssen's length ( $\lambda_j$ ) is a characteristic length depending on the granular matter (through the coefficient  $K$ ), the container's specific dimension ( $D_h$ ) and their interactions ( $\mu$ ).

The objective of the present work is to determine the vertical stress profiles in a granular bed laterally confined in a rectangular cell, in two cases: for a classical model powder (*i.e.* glass

beads) and a natural complex powder (*i.e.* wheat semolina). Actually, the glass bead constitutes a reference material in the physics of granular media. However, it represents an ideal model whose properties and behaviour are often far from properties of complex powders and grains largely used in a wide range of technologies and processes. Results obtained on glass beads from physics of granular media are sometimes hardly transposable to "real" problematics. Thus we aim to study and compare the static and dynamic mechanical behaviours of a model powder and a complex one. The existing deep characterization of semolina wet agglomeration (Saad *et al.*, 2011) makes semolina an interesting choice as a complex real granular material. We first develop an original experimental device, which allows the measurement of (i) global vertical stress profiles and, (ii) local vertical stress profiles under static and dynamic conditions. The local values are used to build the stress distribution profiles according to horizontal and vertical axes inside the cell. Under static conditions, characteristic lengths are identified. The characterization of particles' motions induced by the vertical displacement of the flat probe is done using force measurements. Under dynamic conditions, the influence of the probe speed on stress/depth curves is highlighted.

### IV.2.2.3. Materials and methods

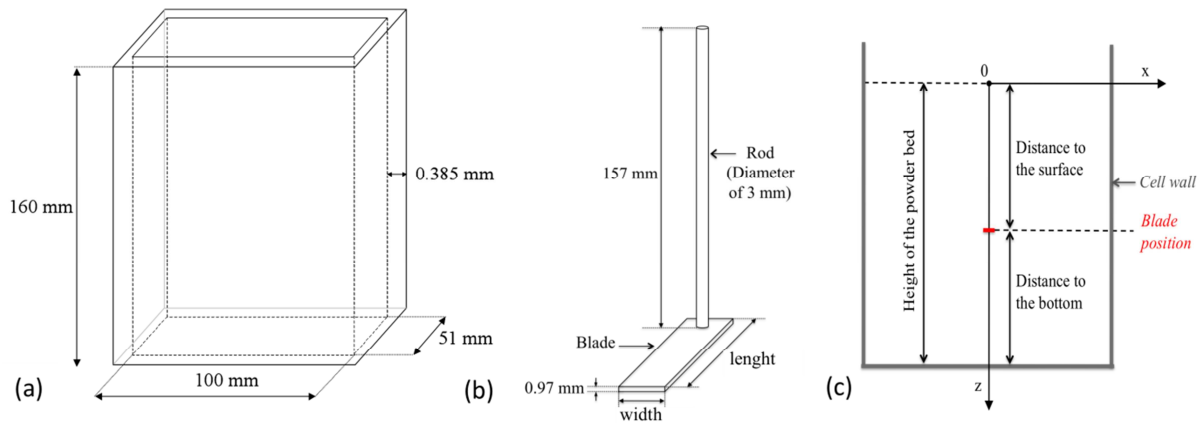
#### IV.2.2.3.1. Materials

Experiments are carried out on glass beads (monodisperse,  $d_{50} = 1 \text{ mm}$ ) and durum wheat semolina of industrial quality. The glass beads constitute a classical model granular medium. Semolina represents a typical complex granular medium from biological origin, largely used as raw material in many industrial food processes (*e.g.* pasta and couscous manufacturing). Semolina is stored in hermetic containers at 4°C until measurements. Hygroscopic water content of semolina (16.8 g water / 100 g dry matter) is determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods (AACC, 2000). Particle size distribution of semolina is measured in triplicate by using a laser granulometer (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. Semolina is characterized by volume-equivalent diameters for which the number of particles is inferior to 10 ( $d_{10} = 67 \pm 1 \mu\text{m}$ ), 50 ( $d_{50} = 272 \pm 2 \mu\text{m}$ ) and 90% ( $d_{90} = 523 \pm 4 \mu\text{m}$ ) of the total number of particles. The span is  $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 1.67$ . The true density of semolina ( $\rho_s^* = 1.478 \pm 0.005 \text{ g.cm}^{-3}$ ) and glass beads ( $\rho_s^* = 2.533 \pm 0.001 \text{ g.cm}^{-3}$ ) are determined in triplicate using a nitrogen pycnometer (Ultracycrometer 1000, Quantachrome

Instruments). The slope angles of semolina ( $\alpha = 43.8 \pm 0.3^\circ$ ) and glass beads ( $\alpha = 23.6 \pm 0.1^\circ$ ) are measured in triplicate using a powder tester (Erweka, France).

The coefficients of friction between the grains and a glass surface ( $\mu$ ) are determined using a mobile glass wall equipped with a numerical inclinometer (Ovarlez *et al.*, 2003). Grains are disposed on the horizontal glass wall. The glass wall is then progressively inclined from the horizontal. The frictional angle ( $\theta$ ) is then measured at the sliding of the grains. The wall friction coefficients for semolina ( $\mu = \tan \theta = 0.38 \pm 0.04$ ) and glass beads ( $\mu = 0.23 \pm 0.01$ ) are calculated based on twenty measurements. The higher value of wall friction coefficient for semolina particles than for glass beads could be explained by a higher level of friction of the semolina in contact with a glass surface.

#### IV.2.2.3.2. The uniaxial mixing cell



**Figure IV.23.** Schematic representations of the experimental set-up. (a) Glass cell, (b) Blade (not to scale) and (c) Measurement procedure of the vertical stress  $\sigma_{zz}$  (front view of the cell).

An open glass cell container (51 x 100 x 160 mm) made of five transparent glass walls (sides and base) is specially built for the present study (Fig.IV.23). Three flat and rectangular steel probes of different dimensions and constant thickness (0.97 mm) are especially designed (Cryotec, France) to fit into the glass container (Fig.IV.23). Two small probes (length x width: 44.6 x 9.95 mm, 44.8 x 19.7 mm) are used to simulate blades of a mixing device and allow local measurements of the vertical stress in the powder bed. One large probe (length x width: 50.5 x 98.5 mm) is used to simulate the bottom of the cell and allows global measurements of the

vertical stress. Each probe is screwed on a rod that is linked to a load cell of a texture analyser (TA.XT2, Table Micro System), which is used as a force sensor.

#### IV.2.2.3.3. Vertical stress measurements

Before experiment, the probe is set to a specific position in the cell which is defined according to the horizontal ( $x$ ) and vertical ( $z$ ) axes (Fig.IV.23). Three position parameters are defined. The horizontal position ranges from  $x = 0$  at the center of the cell, to  $x = 5 \text{ cm}$  at the side wall. The vertical position ranges from  $z = 0$ , at the surface of the powder bed, to  $z = H$  where  $H$  is the powder bed height. The third position parameter is related to the vertical distance to the bottom of the cell (Fig.IV.23). Powders are sprinkled with a funnel (outlet diameter of 1.23 cm), placed in the middle of the cell, at 50 mm height from the upper side of the cell, until powders reach a definite height in the cell. As different studies demonstrate a marked influence of the construction procedures on stress distributions in a granular pile (Brockbank *et al.*, 1997; Vanel *et al.*, 1999; Tixier *et al.*, 2004), we take care to keep constant and reproducible the filling procedure of grains in the cell. Experiments are realized at constant powder bed compactness for the two granular materials ( $\phi = 0.45$  for semolina and  $\phi = 0.62$  for glass beads). In both case, the initial compactness of the powder bed is lower than the critical compactness ( $\phi_c$ ) at the dilation transition (Lemaître *et al.*, 2009), above which the granular medium dilates to allow grains' rearrangements at a local state (*i.e.* in the vicinity of the blade) in response to the blade displacement. At  $\phi < \phi_c$ , no fluctuations linked to a dilatancy phenomenon or rearrangements of particles are thus supposed to occur during the blade displacement.

Force measurements under static conditions are carried out with the small probes and the large probe. When using the small probes, the height of the powder bed is kept constant ( $H = 14 \text{ cm}$ ) and stress measurements are carried out at different positions in the cell (according to the  $x$  and  $z$  axes). When using the large probe, the probe position is fixed at the bottom of the cell and different heights of the powder bed are introduced in the cell ( $1 < H < 14 \text{ cm}$ ). Force measurement under static conditions (without any movement of the blade) is done during 2 sec. The entire procedure (*i.e.* probe positioning, cell-filling with grains and force measurement) is repeated five times for each probe position. Vertical stress values are calculated by dividing the measured force by the probe surface ( $S_p$ ).

Force measurements under dynamic conditions are carried out during the vertical rise of the small probe (length x width: 44.8 x 19.7 mm) in the cell. Before each test, the small probe is first positioned at the bottom of the empty cell, which is then filled with the powder to reach  $H = 14$  cm height. The probe is moved up from the bottom ( $z = 14$  cm) to the surface ( $z = 0$  cm) at 20, 30 and 40 mm.s<sup>-1</sup>, with five replications each.

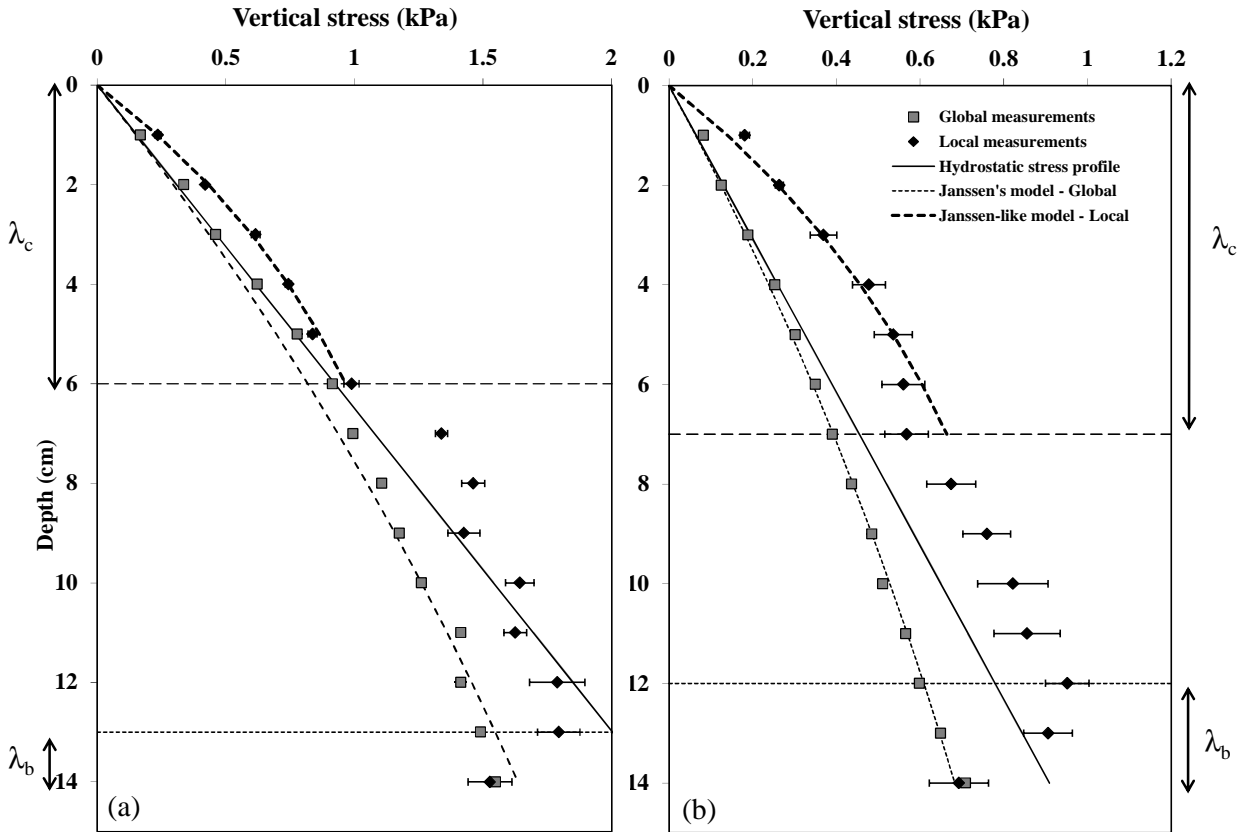
#### IV.2.2.4. Results and discussion

##### IV.2.2.4.1. Global vertical stress profiles

We first use the large probe under static conditions to measure the influence of powder bed height on the vertical stress measured at the bottom of the granular medium, in a same way than the Janssen experiments. The depth of the probe in the powder bed ( $z$ ) is considered equivalent to the height of the powder bed ( $H$ ).

For the two granular materials (semolina and glass beads), the global vertical stress first increases linearly with an increase of the probe depth in the powder bed (from the surface to 5-6 cm depth), and follows the hydrostatic stress profile (*i.e.*  $\sigma_{hyd} = \phi \rho_s^* g z$ ) (Fig.IV.24). The measured stress then corresponds to the column of grains surmounting the probe ( $\sigma_{hyd} \approx M_c g / S_p$ ), with  $S_p$  the surface area of the probe and  $M_c$  the mass of the column of grains over the probe. For deeper positions of the probe in the powder bed (from 5-6 cm to 14 cm depth), the measured vertical stress has lower values than the hydrostatic profile (Fig.IV.24). The difference between the vertical stress profile and the hydrostatic profile increases with depth. Janssen (Janssen, 1895; Sperl, 2006) assigned this phenomenon to a lateral redirection of the vertical stress to the side walls through the formation of a force network. The measured stress corresponds to the apparent weight, shielded by the effect of lateral walls. Experimental data are fitted with the Janssen's model from a non linear optimization procedure (Gauss Newton procedure) (Eq.IV.13-14). We thus calculate the Janssen's length ( $\lambda_j$ ) for glass beads ( $\approx 24$  cm) and semolina ( $\approx 23$  cm). Values of  $K$  are calculated with Eq.IV.14 in the case of (i)  $D_h$  equal to the hydraulic column diameter where  $D_h = 4S / P$ , with  $S$  the cell sectionnal area (m<sup>2</sup>) and  $P$  the cell internal perimeter (m) and, (ii)  $D_h$  equal to the diagonal of the rectangular cell section (Rotter *et al.*, 2002), both for glass beads ( $K \approx 0.3$  or  $0.5$ , respectively) and semolina ( $K \approx 0.19$  or

0.31, respectively) (Fig.IV.24). These values of  $\lambda_j$  and  $K$  are quite low compared with published values ( $K = 0.65 - 1.7$ ) for different types of granular materials (e.g. glass beads or pasta products) (Vanel *et al.*, 2000; Ovarlez *et al.*, 2003; Sperl, 2006; Di Felice and Scapinello, 2010; Qadir *et al.*, 2010).



**Figure IV.24.** Vertical stress profiles under static conditions (a) for the glass beads and (b) for the semolina particles: comparison between local and global measurements.

It should be noticed that our experimental cell is a little small, with only 15 cm height. The saturation phenomenon of vertical stress would be better described using a longer cell (height > 23 cm). Finally, these results of global vertical stress confirm that the proposed approach with a non-cylindrical cell is equivalent to the traditional Janssen's experiment even if the non-axisymmetry of the rectangular cell certainly implies a different arching pattern (Rotter *et al.*, 2002).

#### IV.2.2.4.2. Local vertical stress profiles in the middle of the cell

The local vertical stress profile under static conditions is constructed using the small probe (19.7 mm width) and a constant powder bed height (14 cm). The probe is positioned in the middle of the cell ( $x = 0$ ), at different depths ( $z$ ) in the powder bed (Fig.IV.24). From the surface to  $z = 4$  cm, the local vertical stress increases quasi-linearly and is not tangent to the standard hydrostatic stress profile whatever the tested granular media (semolina or glass beads). From  $z = 4$  cm to  $z = 6$  cm (for glass beads) or  $7$  cm (for semolina), the vertical stress slightly increases and tends to reach a plateau value. From  $z = 6$  cm (for glass beads) or  $7$  cm (for semolina) to  $z = 12-13$  cm depth, we observe a sudden high increase in the vertical stress. From  $z = 12-13$  cm depth to  $z = 14$  cm (*i.e.* at the bottom), the vertical stress decreases.

The comparison of the local stress profile with the global one highlights three main differences. (i) Whatever the depth, all the measured values of local vertical stress are higher than the values of global vertical stress, and of hydrostatic stress. (ii) At  $z = 6$  cm (for glass beads) or  $7$  cm (for semolina), we observe an "inflection" point in the local vertical profile. This depth is a critical length ( $z = \lambda_c$ ) that depends on the granular medium and can be supposed to correspond to the depth from which the force network percolates laterally from a side wall to the other. (iii) At a certain distance from the bottom (1-2 cm), we observe a sharp decrease in stress values. This highlights a characteristic length of influence of the bottom ( $\lambda_b$ ). Actually, the resolution of the static vertical stress measurements, with an acquiring every centimeter depth, does not allow a precise determination of  $\lambda_b$  for both granular materials. We suppose that  $\lambda_b$  ranges between 1 and 2 cm for semolina and between 0 and 1 cm for glass beads (Fig.IV.24).

These differences demonstrate that the local vertical stress profile is not equivalent to the global vertical stress profile and thus cannot be fully represented by the Janssen's model. To consider that an unique phenomenon, peculiar to the granular matter, manifests itself differently depending on the depth inside the confined powder bed, we define three specific zones in the granular bed (*i.e.* close to the surface, intermediate, close to the bottom), separated by two characteristic depths ( $\lambda_c$  and  $H - \lambda_b$ ).

This phenomenon is visible for local vertical stress measurements and refers both (i) to the stress transmission mode via friction points between grains which is due to the discrete nature of the granular matter, and (ii) to the low width of probe which is intermediate between the grain scale

and the powder bed scale. The probe measures the apparent mass of the bed of grains surmounting it. Because the probe width is between the characteristic size of the chain forces, estimated as 10 fold the particles diameter (Radjai, 2008), and the size of the cell, the probe is weighing the mass of the column of grains above it (*i.e.* "hydrostatic" column), adjusted by a variation of mass. This mass variation is linked to (*i*) the contribution (positive or negative) of the assembly of grains "connected" to the force network acting on the probe, and (*ii*) to the contribution of the walls (side and bottom) of the cell, which are able to shield a part of the vertical stress. The weight can thus be increased by the contribution of grains positioned on both sides of the vertical "hydrostatic" column, which participate to force chains established above the probe (between the probe and the bed surface). On the other hand, the weight carried by the probe can also be decreased because of a shielding effect of the walls or due to the fact that the force network of the powder bed above the probe does not act directly on it.

When starting from the surface ( $z = 0$ ), local vertical stress results show first of all that the mass of the "loaded" grains is added to the mass of the column of grains surmounting the probe. In order to quantify the contribution of grains participating in the vertical resultant of force chains, a "hydrostaticity" coefficient (noted  $m$ ), ratio between the measured stress profile and the hydrostatic one ( $m = \sigma_{zz} / \sigma_{hyd}$ ), is established. In the case of the Janssen experiment (*i.e.* global stress), the whole bed of grains in the hydrostatic zone is supported by the probe ( $m = 1$ ). Close to the surface, the local vertical stress profile is quasi-linear and can be superimposed to the hydrostatic profile by considering:  $m = 2.3$  for semolina and  $m = 1.7$  for glass beads. Thus,  $K$  is higher, while  $m$  is lower, for glass beads than for semolina. This quite intuitive result is explained by the fact that when the value of  $K$  is high, the lateral redirection of vertical stress is important, thus  $\sigma_{zz}$  is low and the resulting  $m$  too. From the surface to a critical length ( $\lambda_c$ ), the vertical stress only slightly increases and deviates from the "corrected" hydrostatic profile. Between the surface and the critical length ( $\lambda_c \approx 6$  cm for glass beads and  $\approx 7$  cm for semolina), we observe that the variation of the local vertical stress with depth follows a Janssen-like law, corrected by the  $m$  coefficient (Eq.IV.15).

$$\sigma_{zz} = m \phi \rho_s^* g \lambda_c \left[ 1 - \exp\left(-\frac{z}{\lambda_c}\right) \right] \quad (\text{Eq.IV.15})$$



From  $z = \lambda_c$  to a depth close to the bottom (at  $z = H - \lambda_b$ ), the force network percolates on both sides of the cell so that the side walls support a part of the mass of the granular bed. This point is discussed in details in section IV.2.2.4.3.

At a depth close to the bottom ( $z \approx H - \lambda_b$ ), the sharp decrease in stress value is explained by a shielding effect of the bottom. Ovarlez and Clément (2005) obtained the same discrepancy of “local” vertical stress profile near the bottom using numerical tridimensional simulations of a granular medium laterally confined and assimilated to an isotropic, elastic, and homogeneous medium. They suggested that the bottom supports a certain proportion of the vertical stress and redirects this stress laterally according to the Janssen's mechanism of vertical stress redirection to the side walls.

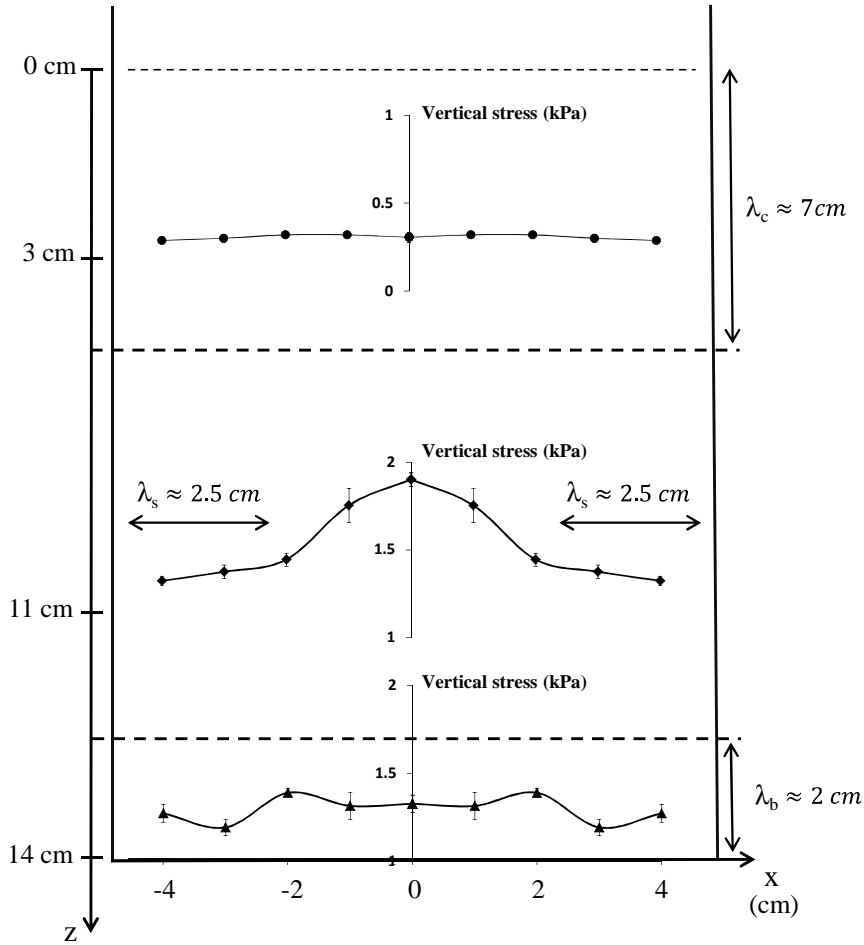
#### IV.2.2.4.3. Horizontal uniformity of the static vertical stress ?

In order to determine the characteristic distance over which the shielding effect of the side walls significantly occurs, values of vertical stress are determined at different positions of the probe (9.95 mm width), according to the horizontal and vertical axes (Fig.IV.25). As the cell is symmetrical and the powder is sprinkled in the middle, measurements are reduced to one part of the cell (for  $x > 0$ ). Results for semolina are presented figure IV.25.

Near the surface, the vertical stress is horizontally uniform (Fig.IV.25). The hypothesis of lateral uniformity of stresses made by Janssen for laterally confined granular material at  $z < \lambda_c$  is valid (Janssen, 1895; Sperl, 2006). The lateral transmission of stresses does not percolate up to the side walls which thus do not shield the weight.

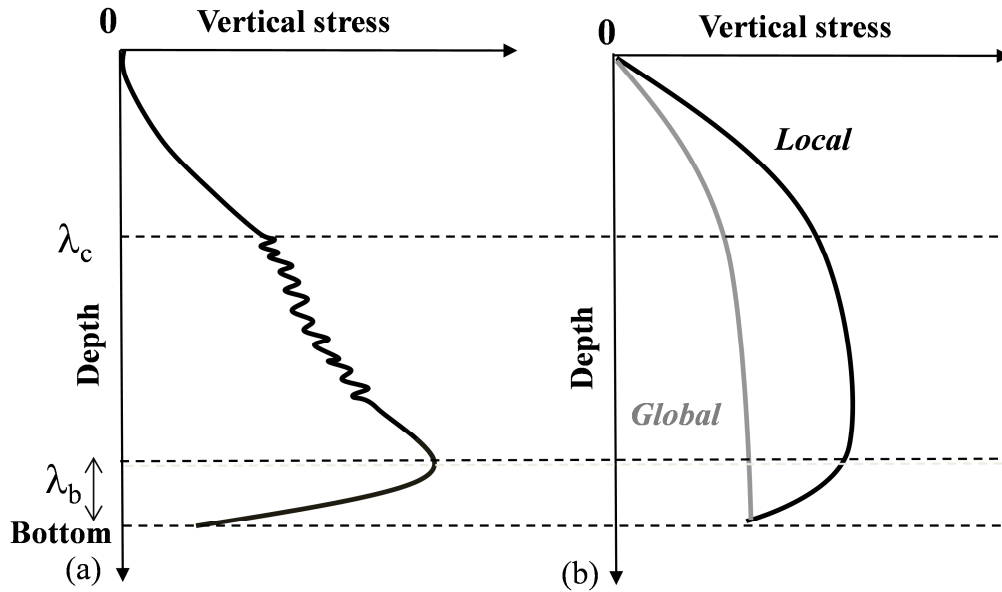
At intermediate depth ( $\lambda_c < z < H - \lambda_b$ ), we demonstrate that the side walls play a shielding role (Fig.IV.25), which is stronger for grain layers located at the proximity of the walls. The vertical stress is then not horizontally homogeneous. The stress is higher in the center of the cell than near the side walls. This result confirms that at intermediate depth (*i.e.* at  $z$  below  $\lambda_c$  and above the characteristic length of influence of the bottom,  $\lambda_b$ ), the force network percolates from one side of the cell to the other. The hypothesis of lateral vertical stress uniformity made by Janssen (Janssen, 1895; Sperl, 2006) is not relevant at  $z > \lambda_c$ . This non-uniformity has already been observed experimentally by Williams *et al.* (1987). The authors assimilate the horizontal profiles of vertical stresses to parabola which are symmetrical relatively to the middle of the silo. At intermediate depth, a part of the vertical stress is effectively laterally redirected to the side walls

and does not weigh vertically on the bottom of the cell anymore. From the side walls, the vertical stress is almost constant over a characteristic horizontal length ( $\lambda_s$ ) and then increases up to the middle of the cell ( $x = 0$ ). This characteristic length defines the limits of the side walls effect in the shielding of vertical stresses. The force network percolates from one side wall to the other, but the shielding of vertical stress (lateral transmission of  $\sigma_{zz}$  in  $\sigma_{xx}$ ) only occurs near the side walls.



**Figure IV.25.** Horizontal profiles of vertical stress (kPa) at 3, 11 and 14 cm depths for a bed of semolina particles laterally confined in the cell (height of the bed = 14 cm).

The vertical stresses close to the bottom ( $z = 14 \text{ cm}$ ) are lower than those measured at 11 cm (Fig.IV.25), whatever the horizontal position in the cell. The shielding effect of the bottom is efficient over a characteristic length, close to the influence length of the side walls ( $\lambda_b \approx 2 \text{ cm}$  and  $\lambda_s \approx 2.5 \text{ cm}$  for semolina particles). We can thus propose to spatially structure the powder bed according to different behavior area, separated by one characteristic vertical length and two characteristic horizontal lengths (Fig.IV.26).

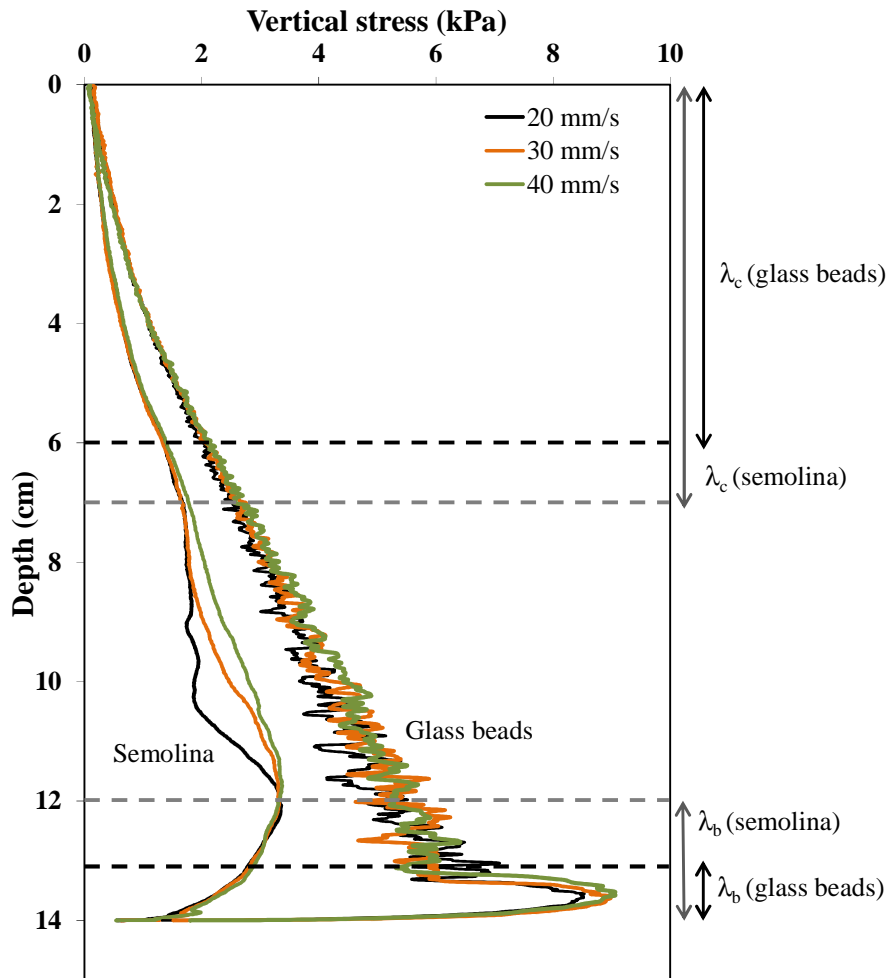


**Figure IV.26.** Schematic representation of the shapes of the obtained experimental data. (a) Under a mechanical solicitation. (b) Under static conditions for local and global measurements, as defined in this work. The shapes of the static profiles are in accordance with the numerical observations made by Ovarlez and Clément (2005).

#### IV.2.2.4.4. Vertical stress profile under dynamic conditions

Disturbances of the local vertical stress profile are induced by the upward motion of the probe which leads to particles' displacements in the powder bed. Several phenomena can be identified from the measurements of the vertical stress during the blade displacement (Fig.IV.27) and from observations through the transparent glass wall of the cell (Fig.IV.28). The stress - depth curves were measured during the rise of the probe. At the bottom, the initial vertical stress corresponds to the static value.

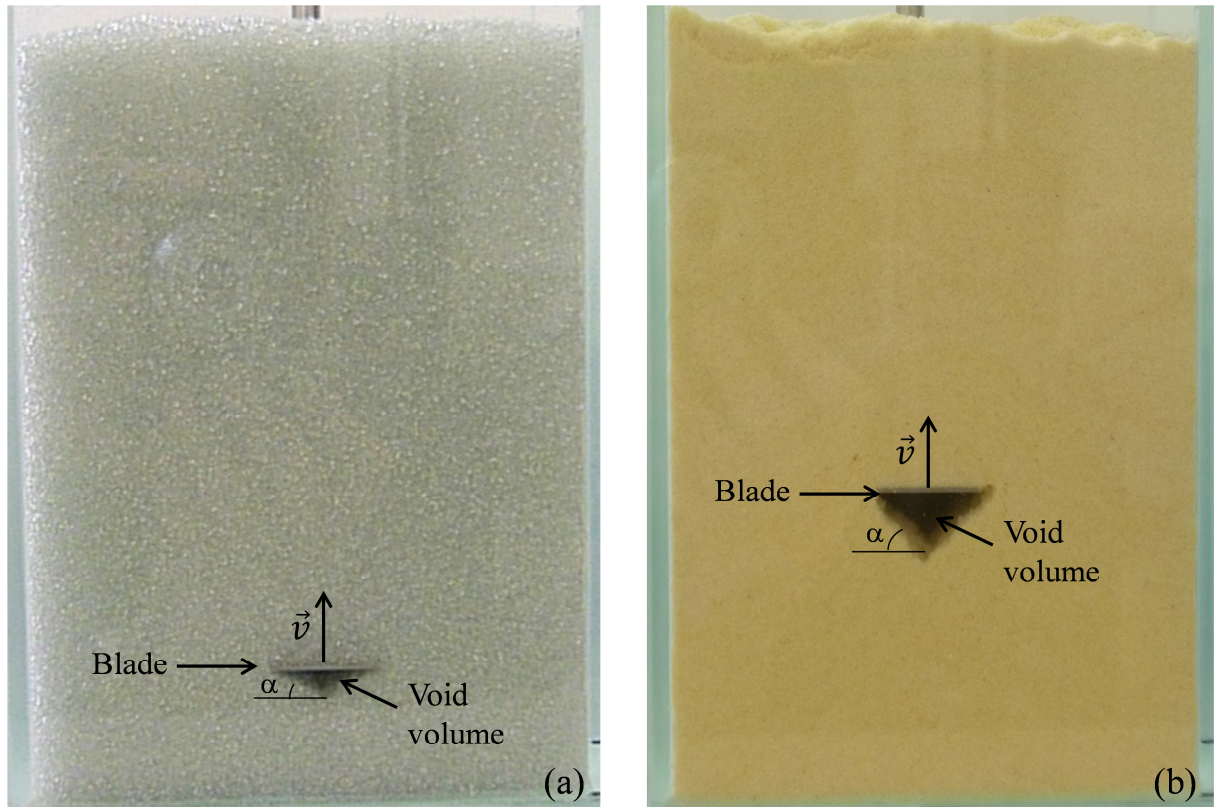
During the rise of the probe, we first observe a sharp increase in stress value up to a peak of stress. Whatever the blade speed, the depth at the maximum stress peak could be related to the shielding effect of the bottom, because it occurs at depths close to values of  $\lambda_b$  for both granular materials ( $\lambda_b \approx 2$  for semolina,  $\lambda_b \approx 0.3$  for glass beads). During the probe rise, we also observe the creation of a triangular void volume, (*i.e.* dihedron with an equilateral triangle section), taking place just below the probe (Fig.IV.28). The height of the void could be calculated from the probe width and the angle of repose of the granular material ( $\alpha$ ). The void volume could be “created” from the compaction of the granular layers just upon the probe.



**Figure IV.27.** Vertical stress profiles under dynamic conditions for glass beads and semolina at blade speeds of 20, 30 and 40 mm/s.

During the void formation and all along the probe displacement, we observe that particles above the probe are evacuated by micro-avalanches in the free volume and form a concave heap (crater-like) on both sides of the probe (Fig.IV.28). Other works studied the drag force of an intruder in motion in a granular medium, except that the displacement is horizontal (Albert *et al.*, 1999; Gravish *et al.*, 2010). The complex nature of stress propagation in the granular medium can explain the properties of the drag force as well as the complex spatiotemporal dynamics in and around the zone of disturbed material.

Above the depth at the maximum stress peak, a relaxation phase is observed for both granular materials. For semolina, the shapes of the dynamic profiles at different probe speeds are not superimposed from the stress peak up to a characteristic depth close to the critical length identified in static.



**Figure IV.28.** Picture of the glass cell filled with (a) glass beads and (b) semolina during the vertical upward motion of the blade ( $\alpha$  is the slope angle).

This result confirms the existence of a force network percolation transition at  $z = \lambda_c$ . From this depth to the surface, the profiles are overlaid. At  $z < \lambda_c$ , the granular flow is supposed to occur in a dense frustrated regime whereas at  $z > \lambda_c$ , the flowing regime is dense but less frustrated and may be fluidized at the powder bed surface depending on the values of compactness and probe speed (Albert *et al.*, 1999; Gravish *et al.*, 2010). The same observation is made for glass beads except that whatever the probe speed, the vertical stress fluctuates between the depth at stress peak and the critical length with a decrease of the fluctuation amplitude when getting closer to  $\lambda_c$ . From  $\lambda_c$  to the surface, the profiles are also overlaid.

#### IV.2.2.5. Conclusions

Vertical stress profiles are measured in a granular bed (*i.e.* glass beads and semolina particles) laterally confined in an instrumented rectangular cell. At the whole bed scale, experimental vertical stress profiles are correctly fitted by the Janssen's model. The Janssen's length is identified as a representative parameter of the static state of a powder bed in a container of a

fixed hydraulic diameter. For the ideal granular material (*i.e.* glass beads) and for the complex granular material (*i.e.* semolina particles), the local pressure profiles present similarities but are not identical to the global one. Horizontal non-uniformity of the vertical stress appears when the depth reaches a critical length ( $\lambda_c$ ). This length is identified for both granular materials and seems to correspond to the depth at which the lateral percolation threshold of force chains is achieved. Near the bottom, the local stress profile fails. This wall effect is related to a phenomenon attributed to a shielding effect of the bottom, which is supposed to be similar to the influence of the lateral side walls. Under a vertical mechanical solicitation, we show that the critical length and the influence length of the bottom are implied in the behavior of the bed of laterally confined particles. The transmission of the vertical stress is quite depending on the position of the blade relative to these lengths. In the context of wet agglomeration in a mixing device, these results allow to consider the role of the Janssen's length and the importance of other characteristic lengths in the mixing bowl.

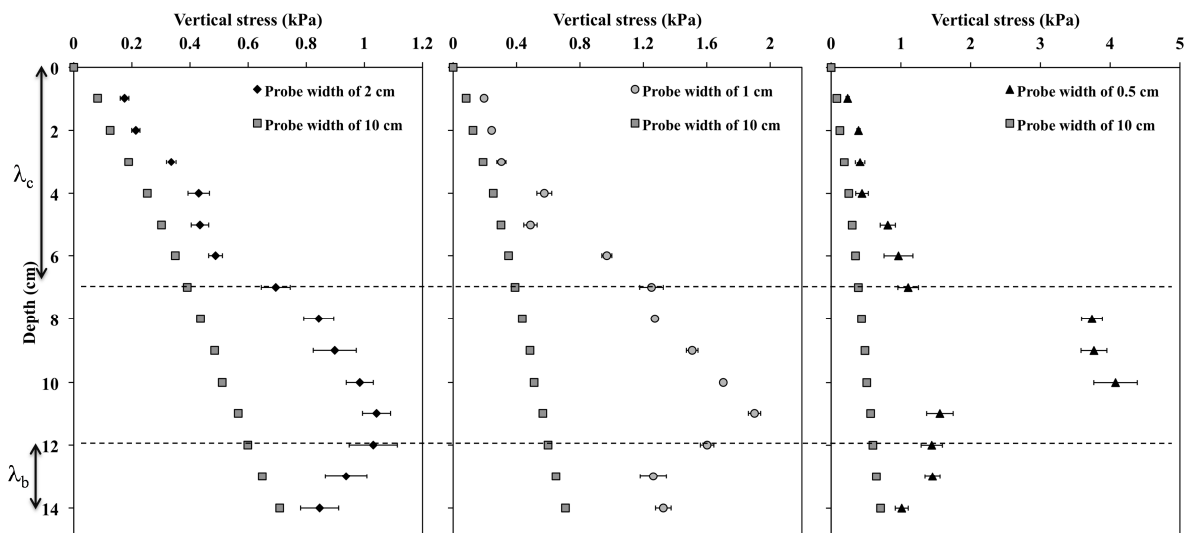
**Acknowledgments** - The authors would like to thank the French National Research Agency for its financial support through the scientific program "Reactive Powder".

### IV.2.3. Influence de la largeur du capteur et cartographie 2D des contraintes verticales

Le travail présenté dans cette section consiste (i) à identifier comment la valeur de la largeur du capteur permet de mesurer la contrainte verticale définie à son échelle, (ii) à établir la « cartographie 2D » (selon  $x$  et  $z$ ) de la contrainte verticale locale dans un lit de semoule ensilé, et (iii) à confirmer les observations du chapitre IV.2.2. (Mandato *et al.*, 2012b) relatives aux conditions de validité des hypothèses de Janssen (*e.g.* hypothèse d'uniformité latérale des contraintes verticales notamment).

#### IV.2.3.1. Profils locaux de la contrainte verticale au centre de la cellule – Influence de la largeur du capteur

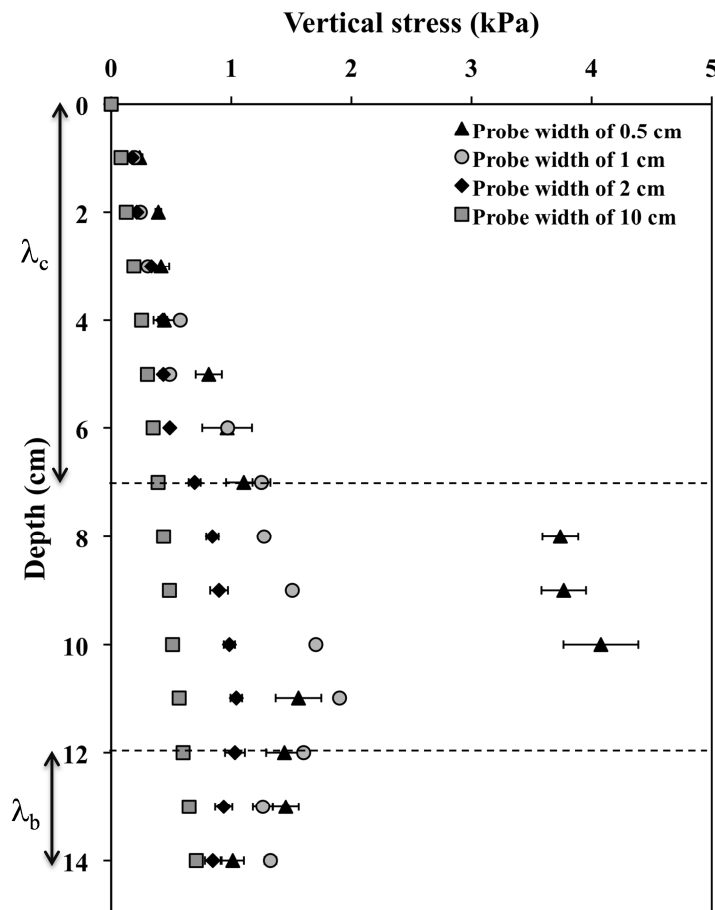
A l'état statique, les profils locaux de contrainte verticale sont obtenus avec des capteurs de différentes largeurs ( $\sim 0,5$  ; 1 et 2 mm), placés au centre de la cellule ( $x = 0$  cm) et à différentes profondeurs dans un lit de semoule de hauteur fixe ( $H = 14$  cm) (Fig.IV.29). Le choix de ces tailles est relatif à la taille médiane des particules de façon à respecter un rapport d'au moins égal à une dizaine de diamètres de particules. C'est à cette échelle que sont définies les chaînes de forces élémentaires que l'on qualifie de voûtes. Il est nécessaire que les voûtes puissent « porter » sur le capteur, afin d'y transmettre les forces qu'elles relayent.



**Figure IV.29.** Profils des contraintes verticales en fonction de la profondeur dans un lit de semoule confiné latéralement (pour des capteurs de 0,5 ; 1 et 2 cm de largeur). Le profil de contraintes mesuré à l'échelle globale (*i.e.* similaire à l'expérience de Janssen) est aussi présenté.

Les profils locaux obtenus avec les capteurs de 0,5 mm et 1 mm de largeur présentent une allure similaire au profil de contrainte verticale obtenu avec le capteur de 2 cm de largeur et déjà décrit précédemment (Mandato *et al.*, 2012b – Chapter IV.2.2). Quelle que soit la profondeur, les valeurs de contrainte verticale des trois profils locaux sont supérieures aux valeurs de la pression à la base. Rappelons que la contrainte verticale globale est mesurée à la base du lit de poudre de hauteur donnée, et que conformément à la démarche de Janssen, la courbe hauteur/pression est assimilée sans justification à la répartition de la contrainte verticale moyenne dans le milieu granulaire ; la hauteur du lit devenant la profondeur tandis que la pression à la base devient la contrainte verticale à cette profondeur.

Les trois zones déjà identifiées au Chapitre IV.2.2. (Mandato *et al.*, 2012b) à partir de l'analyse du profil local établi avec la pale de 2 cm de largeur sont aussi mises en évidence pour les profils établis avec les capteurs de 0,5 et 1 mm de largeur avec toutefois des spécificités (Fig.IV.29-30).



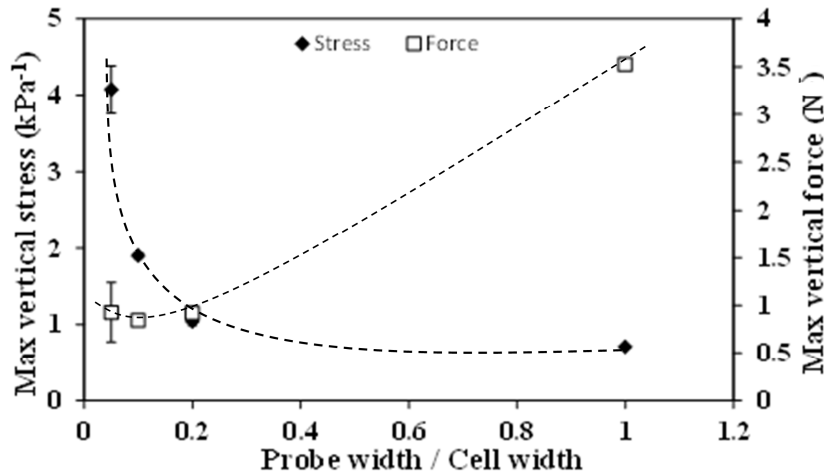
**Figure IV.30.** Profils des contraintes verticales en fonction de la profondeur dans un lit de semoule confiné latéralement (pour des capteurs de 0,5 ; 1 et 2 cm de largeur). Le profil de contraintes mesuré à l'échelle globale (*i.e.* similaire à l'expérience de Janssen) est aussi présenté.



A partir de la surface ( $z = 0$ ), les trois profils locaux sont quasi-superposés jusqu'à 4 cm de profondeur. Le poids porté par le capteur est proportionnel à la surface de la pale. Entre 4 et environ 7 cm de profondeur, les trois profils se distinguent, mettant en évidence des variations de la valeur de la contrainte verticale avec la largeur du capteur. A 7 cm de profondeur et jusqu'à environ 11 cm de profondeur, une soudaine augmentation de la contrainte verticale peut être observée quelle que soit la largeur du capteur (Fig.IV.29-30). Cette augmentation respecte la proportionnalité à l'inverse de la surface du capteur. Ainsi, entre 7 et 8 cm de profondeur, une multiplication par 4 de la contrainte verticale est observée pour le profil local établi avec le capteur de 0,5 cm de largeur. Rappelons que la profondeur de 7 cm a déjà été identifiée comme une longueur critique de percolation des chaînes de force ( $\lambda_c$ ) d'un bord latéral de la cellule à l'autre (Mandato *et al.*, 2012b – Chapter IV.2.2). Ce point est important, car la mesure montre que la force exercée sur le capteur est la même, quelle que soit la surface du capteur. Cela indique que le poids se transmet bien via un réseau de contact et que lorsque le capteur a une taille supérieure à la taille caractéristique des voûtes, il ne « ressent » que la contribution de quelques points de contacts en lien avec les voûtes adjacentes. A partir de 11 cm de profondeur jusqu'au fond de la cellule (14 cm), la contrainte verticale décroît quel que soit le capteur considéré. Dans le cas des capteurs de 0,5 et 2 cm de largeur, la contrainte verticale mesurée au fond (*i.e.* à 14 cm de profondeur) est presque égale à celle mesurée à l'échelle globale sur la section entière de la cellule. Nous mettons de nouveau en évidence une longueur d'influence du fond ( $\lambda_b \approx 2-3$  cm), visible pour les trois largeurs de capteurs. Le fond, de la même manière que les parois latérales, semble écranter une partie de la contrainte verticale. Dans le cas d'une mesure locale, entre 0 et 11 cm de profondeur, la pale est trop loin du fond pour en ressentir l'effet. Dans le cas du profil global, la mesure de la contrainte verticale est réalisée sur toute la section de la cellule et pour une hauteur de semoule croissante. L'effet du fond serait donc présent à chaque hauteur ( $y$  compris entre 0 et 11 cm de hauteur du lit). A 14 cm de profondeur, il n'est donc pas étonnant d'observer des valeurs de contrainte verticale quasi-identiques pour les profils locaux et pour le profil global. Là encore, ce résultat contre intuitif indiquerait que la loi de Janssen, donne la valeur de la contrainte globale à la base de la colonne, donc une valeur écranterée par le fond du récipient. Cette explication est cohérente avec les valeurs du profil de contrainte verticale locale.

Dans la zone intermédiaire ( $\lambda_c < z < H - \lambda_b$ ) se situe la valeur maximale de la contrainte verticale pour chacun des trois profils locaux. La figure IV.31 représente la variation de la contrainte maximale de chaque profil (et de la force maximale correspondante) avec le rapport entre la

largeur de la pale et la largeur de la cellule. La contrainte maximale augmente avec la diminution de ce rapport. En revanche, la force verticale maximale semble constante quelle que soit la largeur de la pale pour les trois profils locaux. Elle augmente fortement dans le cas du profil global (pour une largeur de pale de 9.85 cm).



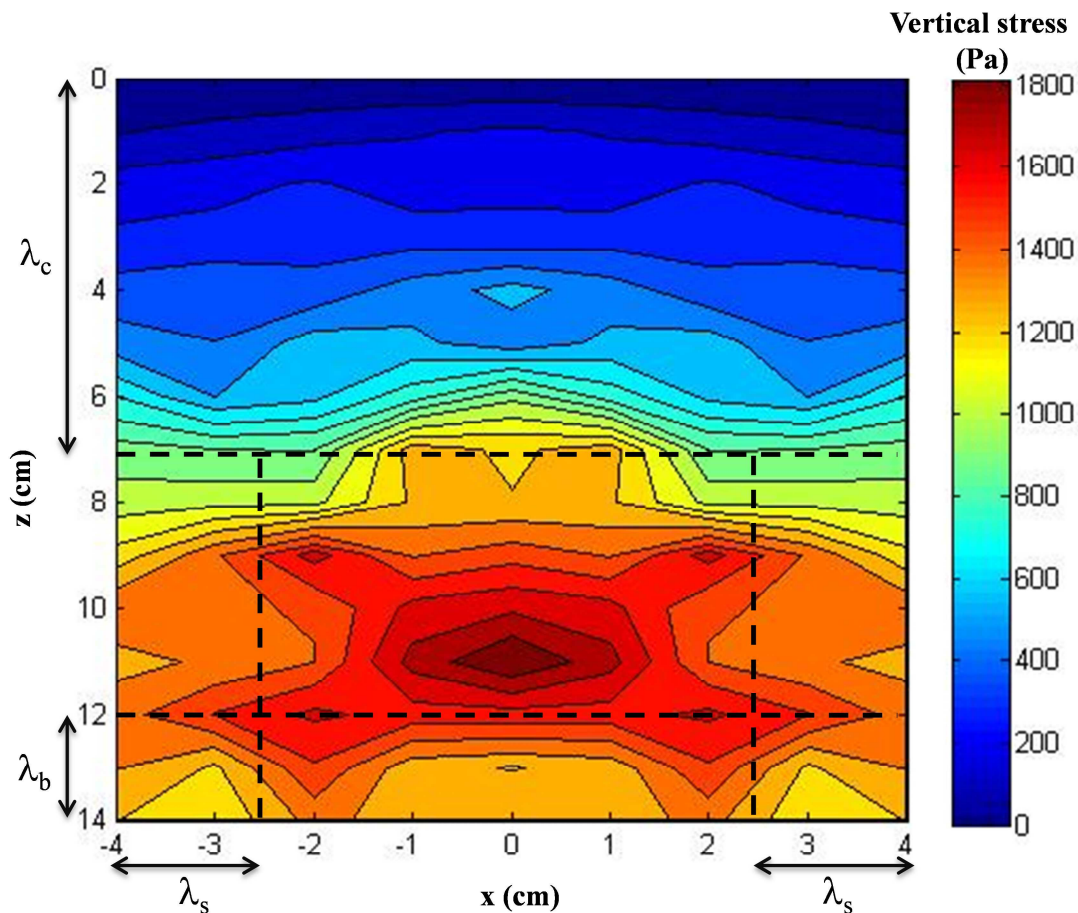
**Figure IV.31.** Influence du rapport entre la largeur du capteur et la largeur de la cellule sur la contrainte maximale et la force maximale correspondante obtenues par mesures locale au centre de la cellule.

L'établissement des profils locaux de contrainte verticale avec des capteurs de différentes largeurs permet de définir une largeur de pale minimale à partir de laquelle le milieu granulaire peut être assimilé à un milieu continu. Cette taille minimale pourrait correspondre à l'ordre de grandeur de la taille d'une voûte. Dans la mesure où le profil local obtenu avec la plus petite des trois pales testées (0,5 cm de largeur) est marqué par une discontinuité de la contrainte verticale pour les profondeurs de 8, 9 et 10 cm, nous pouvons en déduire que la largeur de ce capteur est proche de la limite de continuité du milieu. Avec une pale de largeur inférieure à 3 mm (*i.e.*  $\sim 10$  diamètres de grains, soit l'échelle de taille d'une chaîne de forces (Radjai, 2008), une divergence de la contrainte verticale pourrait être observée). En effet, la notion de "contrainte verticale moyenne" n'aurait plus de sens puisque le milieu ne pourrait plus être considéré comme équivalent à un milieu continu à l'échelle du capteur.

#### IV.2.3.2. Cartographie de la contrainte verticale en statique

Une cartographie 2D de la contrainte verticale au sein du milieu granulaire ensilé est établie par mesures de contrainte verticale en statique à différentes positions dans le lit de semoule ( $H = 14$

cm) avec le capteur de 1 cm de largeur (Fig.IV.32). Une hypothèse de symétrie par rapport à un plan vertical passant par le centre de la cellule, permet de réduire l'acquisition à une seule moitié de l'axe des x (e.g. de 0 à 4 cm). Conformément au schéma présenté Fig.III.2, les valeurs de  $\sigma_{zz}$  présentées ont été mesurées en chacun des points du quadrillage (x,z) et prises égales à la moyenne de 5 répétitions. Le champ de contraintes verticales obtenu est représenté graphiquement dans le plan bidimensionnel (x,z) sous la forme d'iso-contraintes. La représentation en dégradés de couleurs, associées à des variations d'intensité de la contrainte verticale, a été réalisée sous le logiciel MATLAB 7.0.4 software (The MathWorks, Inc) (Fig.IV.32).



**Figure IV.32.** Cartographie des iso-contraintes au sein de la semoule latéralement confinée.

La cartographie 2D des contraintes verticales montre une distribution qui peut être décomposée en trois zones distinctes suivant la profondeur (Fig.IV.32). En parcourant la profondeur de la cellule de la surface du lit de grains vers le bas, il apparaît une première zone (zone haute de couleur bleue) définie pour  $0 \leq z \leq \lambda_c$  et pour laquelle, à chaque profondeur, la contrainte verticale est horizontalement quasiment uniforme (Fig.IV.25,32). Il s'agit d'une zone

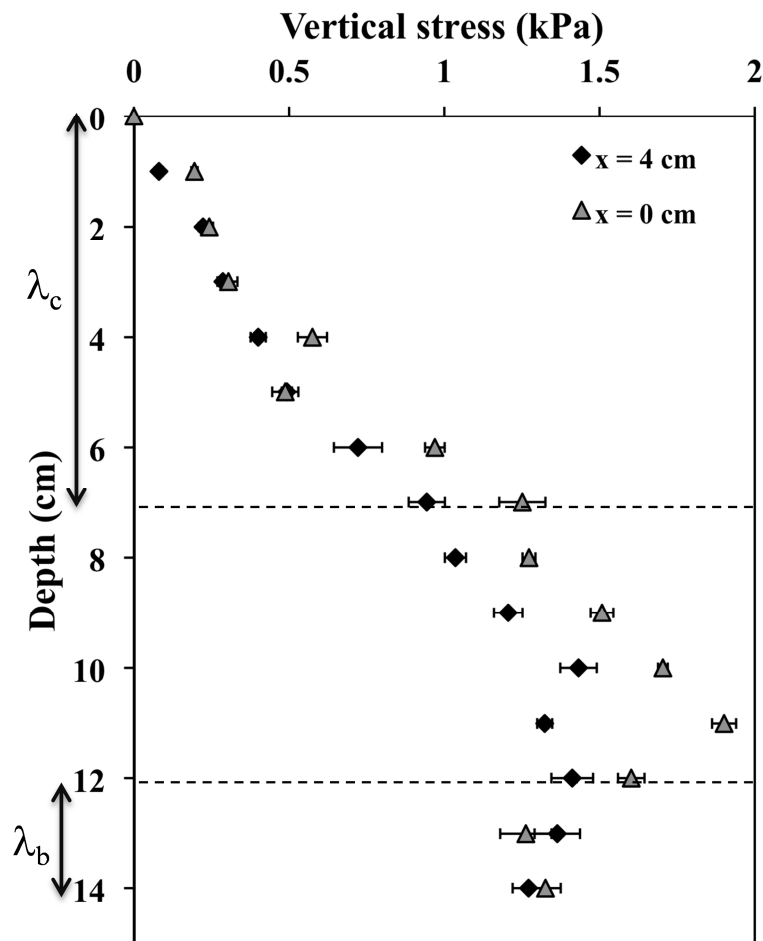
« hydrostatique » où la contrainte verticale croît progressivement avec la profondeur (de 0 à 0,6 kPa). Dans cette zone, l'hypothèse d'uniformité latérale des contraintes faite par Janssen (Janssen, 1895; Sperl, 2006) est valide. La transmission latérale des contraintes ne percole pas jusqu'aux parois qui en retour n'écrantent pas le poids de la colonne.

A partir de 7 cm et pour des profondeurs plus élevées, on constate l'apparition progressive d'une non-uniformité croissante (zone de transition verte/jaune), puis l'émergence d'un « noyau » central (couleur de plus en plus rouge sur la figure IV.32) indiquant un gradient de contrainte décroissant du centre vers le bord. Dans cette deuxième zone, définie pour  $\lambda_c \leq z \leq H - \lambda_b$ , la forme du profil de la contrainte verticale indique que les parois jouent un rôle d'écrantage (Fig.IV.25,32). Ce résultat confère à la longueur caractéristique  $\lambda_c$  le sens physique de la profondeur à partir de laquelle le réseau de forces percole de part et d'autre de la cellule. L'hypothèse d'uniformité des contraintes faite par Janssen n'est plus valide dans cette zone, comme discuté précédemment (Mandato *et al.*, 2012b – Chapter IV.2.2). Notons qu'une analyse mathématique plus fine de l'allure des profils établis dans cette étude, nous permet de conclure à un profil de type Gaussien plutôt que parabolique (Fig.IV.25,32). A partir du bord, la contrainte verticale est presque uniforme sur une longueur caractéristique  $\lambda_s \approx 2,5 \text{ cm}$  puis augmente ensuite jusqu'au centre ( $x = 0$ ).

A l'approche du fond, une troisième zone apparaît pour  $H - \lambda_b \leq z \leq H$ . On constate en effet qu'indépendamment de la position latérale (suivant  $x$ ), la contrainte verticale décroît dans une « couche » de grains d'épaisseur voisine de  $\lambda_b \approx 2 \text{ cm}$ ; ce qui confirme les premières observations effectuées au chapitre IV.2.2 (Mandato *et al.*, 2012b) et réalisées à partir de l'étude des profils horizontaux de contrainte verticale à 14 et 11 cm de profondeur. La longueur caractéristique relative à l'effet du fond a une valeur très voisine de la longueur caractéristique relative à l'effet de bord :  $\lambda_b \approx \lambda_s$ . Nous sommes logiquement tentés d'assimiler ces deux longueurs à une seule et unique qui rend compte des effets de bord car *le fond est un bord comme un autre...*

L'étude précise des profils de contrainte verticale dans cette zone fait apparaître un autre phénomène très surprenant (Fig.IV.25,32). En effet, on observe que le profil a une allure en forme de « bosse de chameau » présentant une « dépression » au centre (en  $x = 0$ ). Cette allure est caractéristique de celle de la pression à la base d'un tas de grains obtenu suite à un versement par entonnoir est connu sous le nom de « trou du tas » (Vanel *et al.*, 1999). Une hypothèse

directe qui permettrait d'expliquer cette allure au voisinage du fond, consiste à conclure que l'état de contrainte garde en mémoire l'existence d'un tas enfoui sous les couches de grains. Ce tas recouvert serait celui qui s'est initialement formé lors du remplissage de la cellule. Le profil des contraintes devait être celui « classiquement » observé pour un mode de versement par entonnoir, puis le recouvrement aura figé cet état de contrainte. Si la colonne de grains garderait en « mémoire » l'état mécanique du tas primal réalisé à sa base, notons cependant que ce profil est ici moins marqué que celui mesuré sur un tas de grains non confiné en raison de la présence de matière de part et d'autre du tas (dû à la présence de parois latérales) qui fait augmenter la valeur de la contrainte près des bords par rapport à un tas « libre ». La validation (ou non) de cette interprétation pourrait être effectuée en réalisant la même expérience de mesure de la contrainte, mais avec un mode de versement par « pluviation ». En effet, ce mode de versement permet d'assurer un profil latéral de contraintes plus uniforme au centre et surtout sans dépression.



**Figure IV.33.** Profils locaux des contraintes verticales en fonction de la profondeur sur l'axe central de la cellule ( $x = 0$  cm) et à la périphérie ( $x = 4$  cm) pour un capteur de 1 cm de largeur.

La figure IV.33 présente les profils locaux des contraintes verticales  $\sigma_{zz}$  selon l'axe vertical (*i.e.* coupes selon  $z$  à différentes positions latérales suivant  $x$ ) pour  $x = 0 \text{ cm}$  et  $x = 4 \text{ cm}$ . On constate que les allures sont très proches et dépendent peu de la position horizontale. Bien qu'en apparence similaire au profil de Janssen, ces courbes présentent des différences notables et ne peuvent pas être considérées comme des profils locaux conformes à la description de Janssen. L'analyse de Janssen paraît donc limitée à l'évaluation de la valeur de la pression à la base d'une colonne. On constate vers le fond la décroissance de la contrainte. Ce phénomène qui a été présenté précédemment pour le profil au centre en  $x = 0$ , est ici observé pour toutes les positions testées (Fig.IV.32-33). La longueur caractéristique  $\lambda_b$  qui marque la manifestation de cet « effet de fond » est la même indifféremment de la position horizontale. Ce résultat permet de renforcer un peu plus l'hypothèse selon laquelle l'effet de fond est un effet de bord comme un autre, avec les mêmes caractéristiques, soit :  $\lambda_b \approx \lambda_s$ .

La comparaison des deux profils locaux à  $x = 0$  et  $x = 4 \text{ cm}$  (Fig.IV.33) correspondant à la variation des contraintes respectivement sur l'axe central et à proximité de la paroi de la cellule, en fonction de la profondeur, montre un décalage pour des profondeurs comprises entre 6 et 11 cm. Ce décalage est de l'ordre de 0,3 kPa en moyenne et atteint son maximum à 11 cm (alors égal à 0,5 kPa), révélant un effet des parois très accentué à cette profondeur.

#### IV.2.3.3. Conclusions

Ce travail a montré l'influence de la largeur du capteur sur les valeurs de contrainte mesurées et a mis en évidence des longueurs caractéristiques d'influence du fond et des parois ainsi qu'une longueur critique de percolation du réseau de forces pour un matériau granulaire naturel et complexe (*i.e.* la semoule de blé dur). La cartographie 2D des iso-contraintes verticales dans un lit de semoule constitue un résultat original. Il s'agit à notre connaissance de la première représentation de l'état de contrainte verticale à l'échelle du lit et établie par mesure expérimentale. La cartographie invalide l'hypothèse d'uniformité des contraintes verticales sur une horizontale pour des profondeurs supérieures à la longueur critique ( $\lambda_c$ ), mettant en évidence un effet d'écrantage des parois sur une distance caractéristique ( $\lambda_s$ ). Une validation de ces résultats sur un milieu modèle comme les billes de verre pourrait permettre de généraliser l'existence de longueurs caractéristiques quelle que soit la nature du milieu granulaire. Dans le contexte de l'agglomération en voie humide et dans la mesure où les propriétés des particules de

semoule (taille, friction, rugosité, compacité, *etc.*) évoluent au cours du mouillage-malaxage, il semblerait pertinent d'étudier l'influence de ces propriétés, en plus de l'influence de paramètres géométriques du contenant, sur les valeurs des longueurs caractéristiques identifiées. Enfin, des expériences complémentaires utilisant un mode de versement des particules par « pluviation » pourrait permettre de valider l'existence d'un « effet mémoire » lié à l'histoire de construction du tas dans le cas d'un versement localisé par un point source.

#### **IV.2.4. Characterization of particles' motions in a granular bed under a mechanical solicitation**

##### **IV.2.4.1. Abstract**

The study of stress transmission and typologies of motions in a powder bed under mechanical solicitation constitutes a challenging issue to achieve a monitoring of the agglomeration process. This work relies on the visualization of the behaviour of non-hydrated grains in the neighbourhood of a blade in ascendant vertical motion. Force measurements and a particle image velocimetry technique allow to identify different types of particles' motions (compaction, loading and rupture of the chain forces, lateral collapsing, avalanches, *etc.*) and the mechanical behaviour of the granular bed. Fluctuations of stress are identified and depend on the dimensionless blade speed. We show that it is explained by successive loading and rupture cycles of horizontal force chains above the blade, leading to fluctuations of the vertical transmission of stress. The qualitative analysis of instantaneous velocity fields reveals the existence of a dihedral-shape assembly of grains which constitutes a permanent disturbance zone above the blade during its vertical rise whatever the blade speed. Finally, a specific study of the velocity gradient vertically generated above the blade is carried out for the different blade speeds.

##### **IV.2.4.2. Introduction**

The understanding of wet agglomeration mechanisms in low shear mixer is highly dependent on the knowledge of granular flows under mechanical solicitation. The capacity of a mixer to agglomerate hydrated particles depends on its aptitude (*i*) to induce a stress field in the powder bed and (*ii*) to transmit uniformly the stresses at the granular medium, in order to enhance the contact and adhesion between hydrated particles through capillary bridges. The study of stress transmission and typologies of motions in a powder bed under mechanical solicitation constitutes a challenging issue to achieve a monitoring of the agglomeration process, which yield is still limited to 30 or 40 % in some food processes (*i.e.* couscous process).

This work relies on the visualization of the behaviour of non-hydrated grains in the neighbourhood of a blade in ascendant vertical motion. An experimental mixing cell with transparent glass walls allows to study particles' motions in two dimensions. The rectangular blade is linked to a texture analyzer which allows an adjustable blade speed and the recording of vertical force. Using a high-speed camera placed in front of the transparent glass of the mixing



cell, velocity fields are obtained by a particle image velocimetry technique (PIV) conducted during the blade motion. Different values of a characteristic speed  $v^*$ , equivalent to a Deborah number, are tested by varying the blade speed from 2.5 to 40 mm.s<sup>-1</sup>.

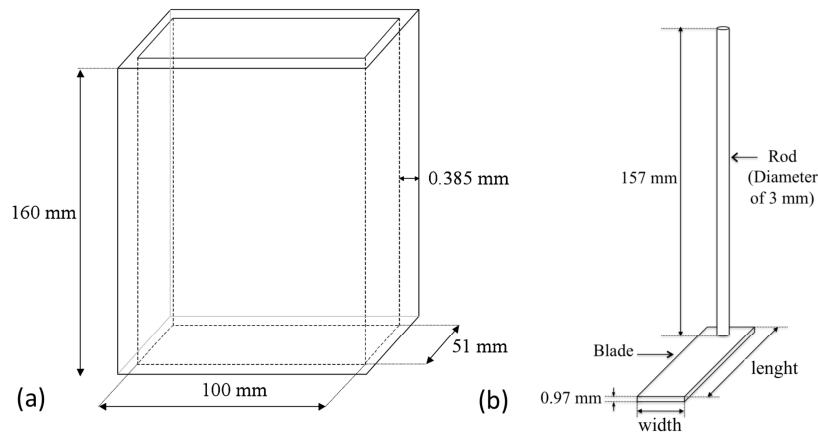
#### IV.2.4.3. Materials and methods

##### IV.2.4.3.1. Materials

Experiments are conducted using durum wheat semolina of industrial quality as granular material. Semolina is stored in hermetic containers at 4°C until measurements. Hygroscopic water content of semolina (16.8 g water / 100 g dry matter) is determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods (AACC, 2000). Particle size distribution of semolina is measured in triplicate by using a laser granulometer (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. Semolina is characterized by volume-equivalent diameters for which the number of particles is inferior to 10 ( $d_{10} = 82 \pm 7 \mu\text{m}$ ), 50 ( $d_{50} = 287 \pm 8 \mu\text{m}$ ) and 90% ( $d_{90} = 530 \pm 12 \mu\text{m}$ ) of the total number of particles. The span is  $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 1.56$ . The semolina true density ( $\rho_s^* = 1.478 \pm 0.005 \text{ g.cm}^{-3}$ ) is determined in triplicate using a nitrogen pycnometer (Ultrapycnometer 1000, Quantachrome Instruments). The slope angle of semolina ( $\alpha = 43.8 \pm 0.3^\circ$ ) is measured in triplicate using a powder tester (Erweka, France).

##### IV.2.4.3.2. The uniaxial mixing cell

A low shear mixing device, developed in Mandato *et al.* (2012), is used for the present study. It consists of an open glass cell container (51 x 100 x 160 mm) made of five transparent glass walls (sides and base) (Fig.IV.34). A flat and rectangular steel blade (length x width x thickness: 44.8 x 19.7 mm x 0.97 mm) is especially designed (Cryotec, France) to fit into the glass container (Fig.IV.34). The blade is screwed on a rod that is linked to a load cell of a texture analyzer (TA.XTplus, Table Micro System) which allows an ascendant vertical motion of the blade associated with an adjustable blade speed, and the recording of vertical force in the powder bed.



**Figure IV.34.** Schematic representations of the experimental set-up. (a) Glass cell, (b) Blade (not to scale).

#### IV.2.4.3.3. Vertical stress measurements

Force measurements under dynamic conditions are carried out during the vertical rise of the blade in the cell. Before each test, the blade is first positioned at the bottom of the empty cell. Semolina is sprinkled with a funnel (outlet diameter of 1.23 cm) in the middle of the cell until it reaches a height  $H$  of 14 cm. The blade is moved up at six vertical speeds (2.5, 5, 10, 20, 30, and 40  $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ) with five replications each.

#### IV.2.4.3.4. Experimental procedure for PIV measurements

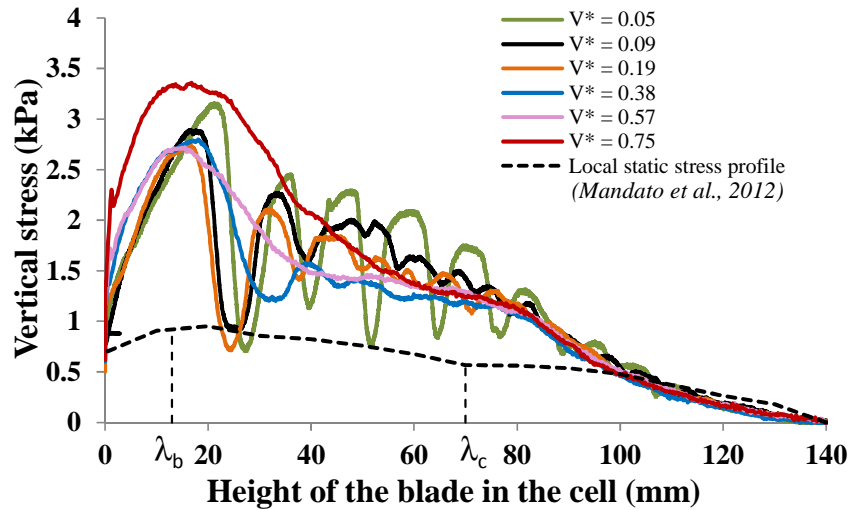
The visualization of the behaviour of non-hydrated grains of semolina in the neighbourhood of a blade in ascendant vertical motion is carried out using a high-speed camera of type CMOS monochrome, with a recording frequency of 100 frames per second and image resolution of 1392 x 1024 pixels. The camera is placed in front of the mixing device and the glass wall surface is illuminated by halogens lamps. The area of interest is 0.14 x 0.10 m, which corresponds to the size of the 2D granular bed. The number of images recorded during the vertical blade motion depends on the blade speed. The particles' motions in two dimensions have been studied by a particle image velocimetry analysis. PIV techniques consist in determining the distance covered by the particles in the time between two consecutive frames (Lueptow *et al.*, 2000; Conway *et al.*, 2005; Ostendorf and Schwedes, 2005; Slominski *et al.*, 2007). In the case of granular flow, because the number of tracer is high, it is not possible to measure the displacement of each tracer separately. Each 8-bit frame is thus divided into interrogation areas of 32 x 32 pixels, each with

an overlap of 60%. PIV calculations are performed using the Direct PIV software (R&D Vision, France). A separate grain of semolina is described approximately with 7 pixels. A single-pass process is performed between each two consecutive frames and a velocity vector is calculated for each of the interrogation areas. An iterative local filter (with 75% maximum and 10 iterations) is applied in order to eliminate wrong vectors. Instant velocity fields are obtained for the entire granular bed under vertical solicitation and represented using a classical colour scale.

#### IV.2.4.4. Results and discussion

Disturbances of the local vertical stress profile are induced by the upward blade motion which leads to particles' displacements in the bed. Several phenomena can be identified from the measurements of the vertical stress during the blade displacement (Fig.IV.35), and from the description of particles' motions by PIV visualizations (Fig.IV.36). Stress - height curves were measured for different blade speeds (0 to 40 mm.s<sup>-1</sup>). The blade speed affects the position and the shape of the stress curves (Fig.IV.35). The shift between the profiles is indeed reduced when the blade speed ( $v_b$ ) is rescaled by the characteristic speed of grains in gravity (G.D.R Midi, 2004):  $v^* = v_b / \sqrt{gd_{50}}$ , where  $v^*$  is the characteristic speed and  $\sqrt{gd_{50}} = 5.3 \text{ cm.s}^{-1}$  with  $g$  the acceleration due to gravity (m.s<sup>-2</sup>) and  $d_{50}$  (m) the median diameter of grains. Thus,  $v^*$  ranges between 0 and 0.75. This dimensionless parameter is equivalent to the Deborah number, which is the ratio between the characteristic relaxation time of a grain ( $\sqrt{d_{50}/g}$ ) and the characteristic solicitation time of the blade ( $d_{50} / v_b$ ). The lower  $v^*$ , the longer is the rearrangement time of the grains in the neighbourhood of the moving blade. The experiment at  $v^* = 0$  corresponds to the static vertical stress profile of the granular medium in the center of the bed. This profile has a similar shape than the well-known Janssen's profile (Janssen, 1895; Sperl, 2006) but the two profiles are not layered. It has been observed that the static stress profile obtained locally, in the center of the container, decreases near the bottom. This side effect is explained by the deflection of vertical stresses, which takes place at a characteristic length from the bottom. This phenomenon has been highlighted experimentally by Mandato *et al.* (2012b) (Chapter IV.2.2) and numerically by Ovarlez and Clément (2005). Actually, a detailed experimental study of the static vertical stress profile in the center of a laterally confined granular medium has been carried out by Mandato *et al.* (2012b) (Chapter IV.2.2) and highlights two characteristic lengths, relative to (i) the influence length of the bottom ( $\lambda_b \sim 2 \text{ cm}$  from the bottom) and (ii) the percolation of the force network from one side wall to the other ( $\lambda_c \sim 7 \text{ cm}$  from the surface). It is shown that

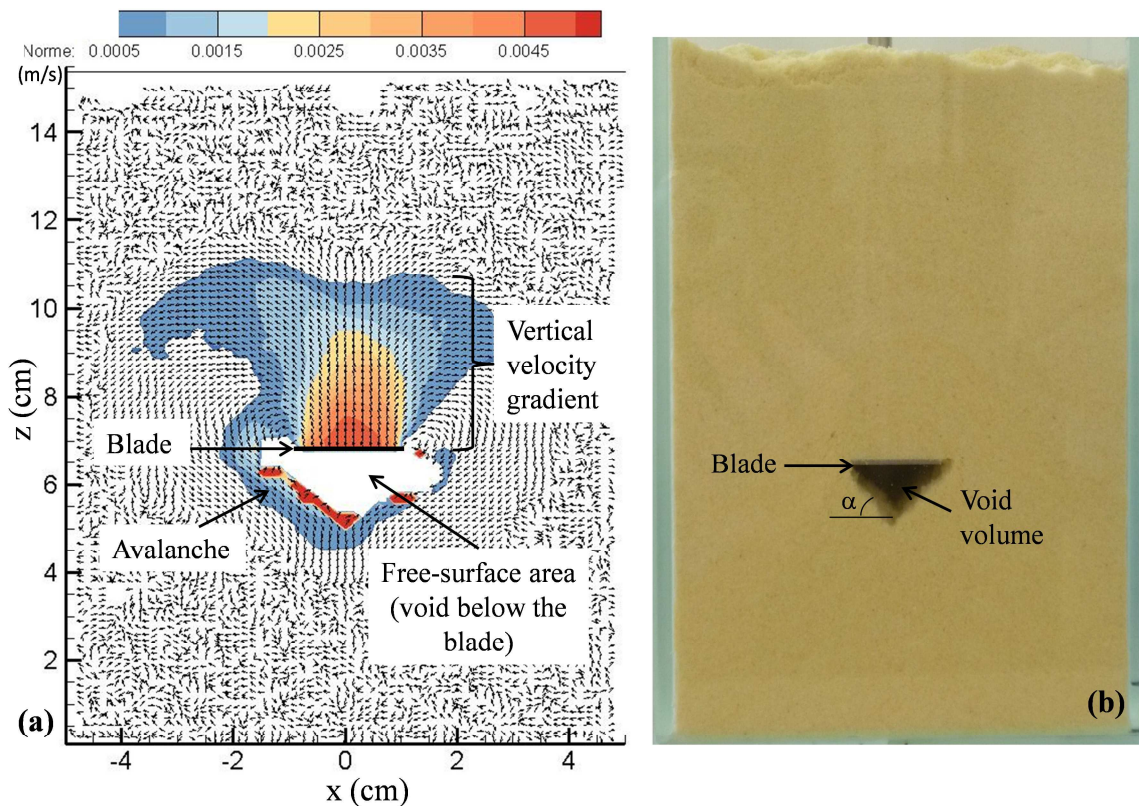
these two lengths separate three distinct zones from the bottom to the surface of the granular medium. Concerning dimensionless blade speeds which are different from zero, the shapes of the stress-height curves suggest that the dynamic of the granular medium is subdivided from the bottom to the surface into the three following phases: (i) loading, (ii) fluctuations (loading/unloading), and (iii) relaxation (Fig.IV.35).



**Figure IV.35.** Vertical stress profiles during the blade vertical rise in the semolina at  $v^*$  from 0.05 to 0.75 (corresponding to a blade speed from 2.5 to 40 mm/s).

*Loading phase* – At the bottom, the initial vertical stress corresponds to the static value. During the rise of the blade, we observe a sharp increase in stress value up to a first peak of stress. At the first peak, the maximum stress value is quite uncorrelated to the dimensionless speed ( $mean = 3 \pm 0.2 \text{ kPa}$ ). The stiffness ( $mean = 0.11 \pm 0.02 \text{ kPa}\cdot\text{mm}^{-1}$ ) and the height value at first peak ( $mean = 17.3 \pm 1.8 \text{ mm}$ ) are also not influenced by  $v^*$  (Fig.IV.35). During this loading phase, a rearrangement of the inter-granular voids above the blade is observed and corresponds to the creation of a void volume taking place just below the blade (Fig.IV.36). The void volume seems to be “taken” from the compaction of the granular layers upon the blade. As the initial compactness of the powder bed ( $\phi = 0.45$ ) is lower than the critical compactness ( $\phi_c$ ) above which the granular medium dilates to allow grains' rearrangements at a local state in response to the blade displacement, it is relevant to assume the formation of a compacted zone just above the blade. During the formation of the compacted zone and all along the blade displacement, particles above the blade are evacuated by micro-avalanches in the free volume and form a concave heap (crater-like) on both sides of the blade (Fig.IV.36b). The stress peak reaches a

maximum and then sharply decreases, which seems to correspond to the rupture of the chain forces located above the blade.



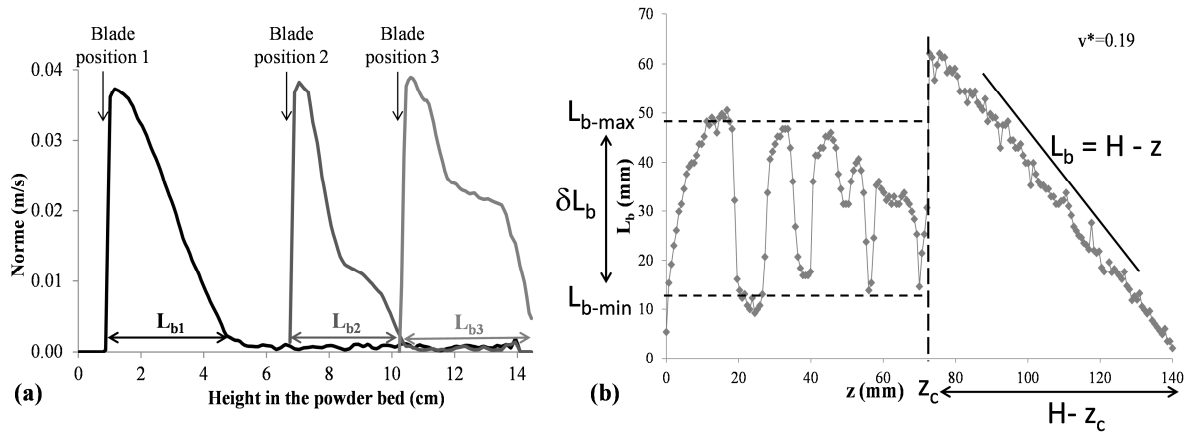
**Figure IV.36.** (a) Instantaneous velocity fields obtained by PIV analysis when the blade is moving vertically at 5 mm/s. Velocity norm values below 0.0004 m/s are represented in white. (b) Picture of the mixing cell filled with semolina during the vertical rise of the blade.

*Fluctuation phase* – Above the height at maximum stress peak, periodic fluctuations are noticed in the vertical stress profile (Fig.IV.35). Their intensities and frequencies are depending on the blade speed. These fluctuations could be explained by successive phases of loading, compaction, breakage, and relaxation of the force network above the blade. Loadings are linked to the force intensity of inter-granular vaults which act against the blade upward motion and deflect laterally the stresses, and to the compaction of the bed zone located just at the top of the blade and up to the front of the disturbance zone vertically generated (Fig.IV.36a). When the stress applied exceeds the stress value at the rupture of the force network, particles of the rupture zones collapse and are then evacuated by avalanches in the void zone under the blade (Fig.IV.36a). In the same time, the stress exerted on the blade is rapidly relaxed. After this discharge, the measured stress increases progressively by the emergence of a new vertical contact network activated by the vertical motion (Fig.IV.35). This mechanism is periodic until it weakens

entirely. The frequency and intensity of the fluctuations increase with the decrease of the blade speed (Fig.IV.35). Maladen *et al.* (2009) also reported successions of compaction and breakage on experimental curves of force/displacement relative to a blade-like sensor moving horizontally at constant speed in a bed of sand.

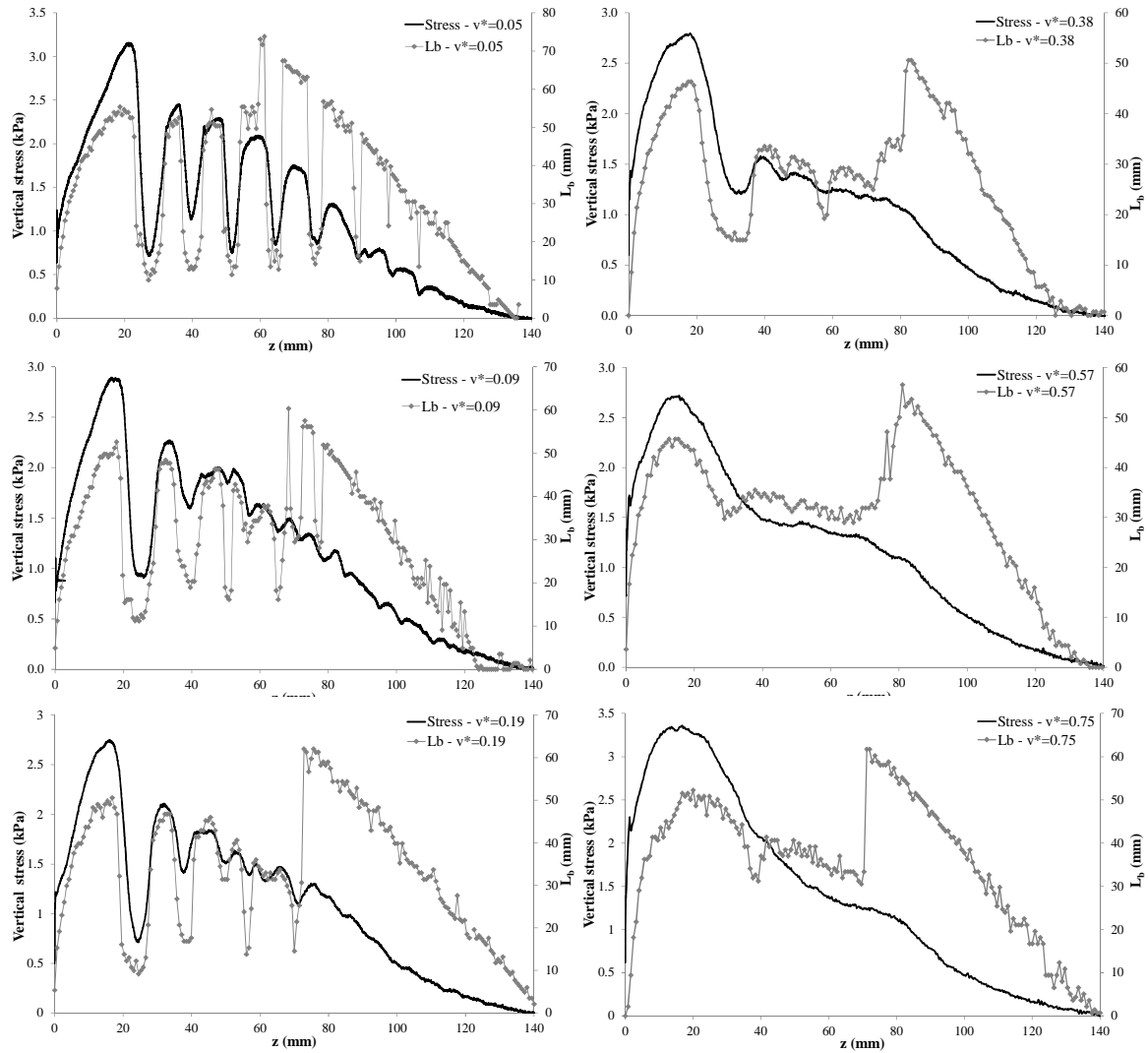
*Relaxation phase* – When the blade enters the higher part of the powder bed (located between a critical length and the surface), vertical stresses progressively relax to the surface and decrease to zero. This observation remains true whatever  $v^*$  and could be explained by both a lack of global stiffness of the granular medium (*i.e.* the vaults do not percolate up to the side walls of the cell) and the decrease of the mass weighing on the blade. The height of the blade at which the transition between the fluctuation phase and the relaxation phase occurs seems to increase with the decrease of  $v^*$  (Fig.IV.35). This transition point takes place at a blade height which is close to  $\lambda_c$  and depends on  $v^*$ . As the vertical stress fluctuations (loading/relaxation) are supposed to depend on loading and rupture phases of the chain forces above the blade, we suggest to study more particularly the blade vertical influence length ( $L_b$ ) which is the height of the zone above the blade, at  $x = 0$  (*i.e.* in the middle of the cell) where velocity gradients are localized (Fig.IV.36a and 37a). Values of  $L_b$  were measured as a function of the blade height during its vertical rise in powder bed at each dimensionless speed (from 0.05 to 0.75) (Fig.IV.38). The analysis of these kinetic curves allows the quantification of the blade influence on the grain assembly in the vertical direction (Fig.IV.37b). Whatever  $v^*$ , a specific height ( $z_c$ ) is registered, starting from which the blade rise sets in motion the grains located at the surface of the bed (Fig.IV.37b and 39).

(i) Below this position (for  $z < z_c$ ), the qualitative analysis of instantaneous velocity fields reveals the existence of shear banding zones which define the lateral limits of the blade influence zone and constitutes an interface between an assembly of static grains surrounding the grains in motion (Fig.IV.39). The vertical extension of the velocity gradient seems to be limited only by phenomenon of vaults rupture, which sets against the propagation of vertical transmission of stress. At each  $v^*$ , the blade vertical influence length fluctuates between two extrema (min and max) of  $L_b$  during the blade motion (Fig.IV.37b and 38).



**Figure IV.37.** (a) Variations of the velocity norm (m/s) measured in the vertical direction above the blade at  $x = 0$  according to the height in the powder bed for three different positions of the blade during its vertical rise in the bed of semolina particles. (b) Typical curve showing the variations of  $L_b$  according to the position of the blade in the powder bed during its vertical rise at  $v^* = 0.19$ . Different parameters are shown ( $L_{b-max}$ ,  $L_{b-min}$ ,  $\delta L_b$ , and  $z_c$ ).  $H$  corresponds to the height of the powder bed ( $H = 14$  cm).

As  $L_{b-min}$  is different from zero, we can deduce the persistence of a zone of grains in motion above the blade even after the rupture of the force network. A dihedral-shape assembly of grains constitutes a permanent disturbance zone induced by the blade motion. Motions of these grains are in the same vertical direction as the blade. In this coherent zone, the horizontal components of the velocity vectors are almost equal to zero and grains constitute a jammed system (Bi *et al.*, 2011). For each dimensionless blade speed,  $L_{b-min}$  is almost independent of the blade position, whereas  $L_{b-max}$  decreases progressively during the blade rise (Fig.IV.38). Mean values of  $L_b$  extrema for each  $v^*$  are reported figure IV.40b. The extension of the permanent zone above the blade ( $L_{b-min}$ ) increases with  $v^*$ . It can be explained by a higher volume of particles dragged by the blade with the increase of  $v^*$ . On the contrary, the extension of the fluctuating zone ( $\delta L_b$ ) above the permanent one decreases with the increase of  $v^*$ . At high  $v^*$ , the characteristic time of particles to rearrange is not sufficiently high relatively to the solicitation time. The force networks are alternatively recreated and removed (*i.e.* non permanent) and do not allow enough time to establish loading and rupture cycles of the vaults above the blade. The transmission of stress from the blade to the surface occurs gradually at the grain scale through a vertical contact network established above the blade. Thus, when the network is not persistent in a sufficiently long time comparatively to the characteristic time of solicitation, the transmission is limited in space.

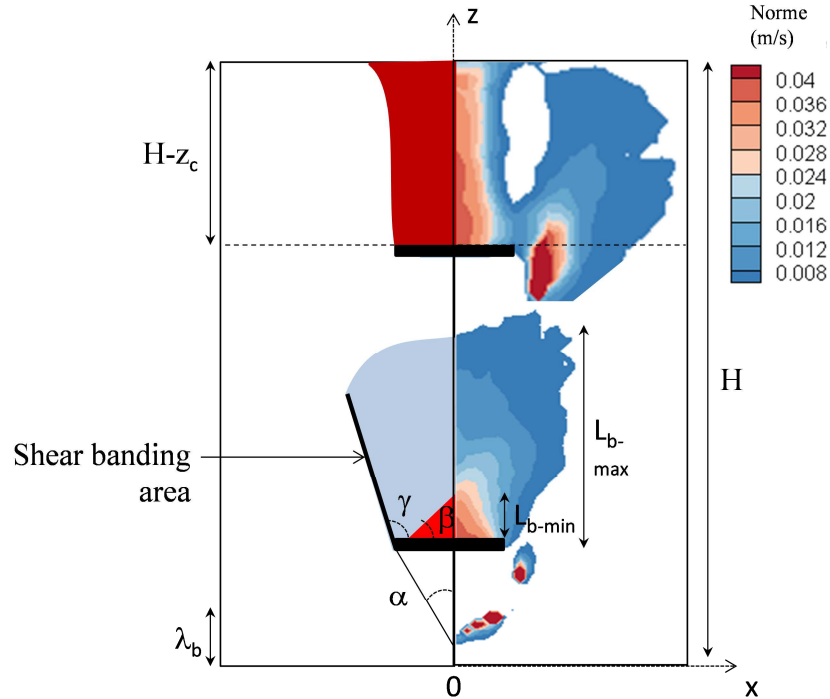


**Figure IV.38.** Variations of the vertical stress (kPa) perceived by the blade and the length of influence of the blade ( $L_b$ ) according to the height of the blade in the powder bed during its vertical rise at six different  $v^*$  (from 0.05 to 0.75).

On the contrary, the lower is  $v^*$ , the higher is the distance over which the vertical contact network spreads between grains. The extension of the vertical transmission of stress (*i.e.* length of the fluctuating zone,  $\delta L_b$ ) is then higher for lower  $v^*$ . When horizontal chain forces take place in the permanent zone and the applied stress becomes superior to the rupture threshold stress of the force chains, the force network is broken just above the permanent zone, thus inhibiting the vertical transmission of stress. Grains of the fluctuating zone are not correlated anymore (in term of speed) to the blade. The coupled analysis of dynamic (vertical stress) and kinematic ( $L_b$ ) curves shows a marked correlation between the vertical stress applied on the blade and the influence length of the blade with a small phase shift (Fig.IV.38). The stress relaxation follows the decrease of  $L_b$ , which can be explained by the disjunction from the vertical contact network



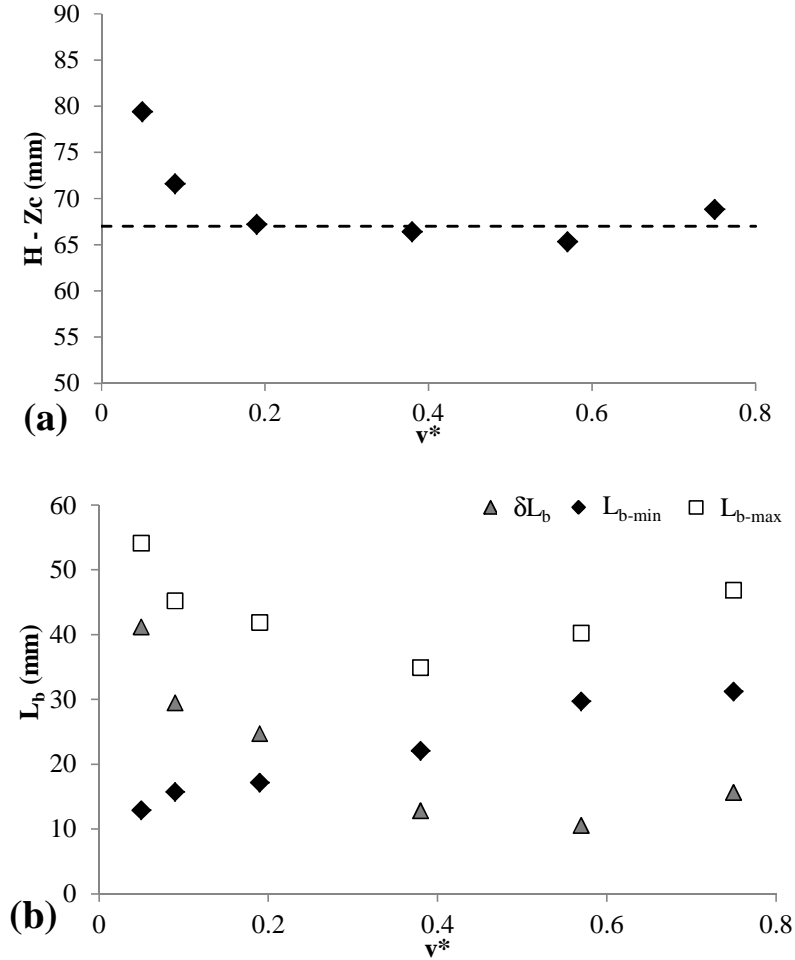
of a volume of grains which were weighing on the blade until then. As soon as these grains are not correlated to the blade anymore, the measured vertical stress is relieved of the mass of these grains. Thus, below  $z_c$  the fluctuations of  $L_b$  depend on the frequencies of a loading/rupture cycle of the chain forces above the blade and the fluctuations' amplitude ( $\delta L_b = L_{b-max} - L_{b-min}$ ) varies with  $v^*$  (Fig.IV.40b).



**Figure IV.39.** Representation of instantaneous velocity fields for two different heights of the blade during its vertical rise in semolina at  $v = 40\text{mm/s}$  (right) and scheme of the different zones and patterns observed in PIV, including the associated characteristic parameters ( $\gamma$ ,  $\beta$ ,  $\alpha$ ,  $z_c$ ,  $L_{b-min}$  and  $L_{b-max}$ ) (left).

(ii) When the blade reaches the position defined by  $z_c$ , the influence zone of the blade matches the height of the column of grains supported by the blade (Fig.IV.39). As the horizontal chain forces do not percolate to the side walls above  $z_c$ , collective particle motions take place and depend only on the local degrees of freedom (particle rotation, frustration...). A smooth frustrated regime, almost free-flowing, takes place in this zone.

Thus, the shape and the extension of the permanent zone depend on the dimensionless speed (for blade heights lower than  $z_c$ ) (Fig.IV.40b) but also of the relative position of the blade in the granular bed (Fig.IV.38 and 39).



**Figure IV.40.** Variations of (a)  $H - z_c$  and (b)  $L_{b-\min}$ ,  $L_{b-\max}$  and  $\Delta L_b$  according to  $v^*$ .

In accordance with this description, the length of the vertical velocity gradient induced by the blade can be represented by  $L_b = L_{b-\min} + \Delta L_b$  for  $0 \leq z \leq H - z_c$ , and  $L_b = H - z$  for  $H - z_c \leq z \leq H$  (Fig.IV.37b and 38). The transition between the fluctuations regime and the regime of linear decrease of  $L_b$  takes place at  $z = z_c$ , and depends on the dimensionless blade speed. Actually,  $H - z_c$  increases ( $z_c$  closer to the bottom) with the decrease of  $v^*$  (Fig.IV.40a). However, for  $0.2 < v^* < 0.8$ ,  $H - z_c$  is almost constant. The mean of  $H - z_c$  over this constant portion is equal to  $66.9 \pm 1.5$  mm and is very close to the critical length identified in static ( $\lambda_c \sim 70$  mm). Two regimes are highlighted: (i) a low  $v^*$  regime ( $v^* < 0.2$ ) for which  $z_c$  (height at which the length of influence of the blade reaches the surface) depends on  $v^*$  and (ii) a high  $v^*$  regime ( $v^* > 0.2$ ) for which this height only depends on the percolation critical length of the force network established at the static initial state of the granular bed. For low  $v^*$ ,  $L_b$  fluctuations persist for  $z > z_c$ . It can be explained by the characteristic time given to the grains to rearrange and create horizontal contact networks (*i.e.* vaults) above the blade. The rupture of these chains leads to a loading/relaxation

dynamic even for  $z > z_c$ . It is only when  $z$  reaches  $\lambda_c$  that the dynamic abates and finally ends even for the lowest dimensionless speeds.  $Z_c$  constitutes the critical height starting from which the vertical velocity gradient reaches the surface highlighting the entering of the blade in a zone where the ability of grains to vertically transmit stresses is high. The critical length ( $\lambda_c$ ) marks the transition between a fluctuating and a stable  $L_b$  throughout the blade vertical rise, which is explained by the non-percolation of the lateral force network between  $\lambda_c$  and the surface inducing a loss of grains' ability to laterally transmit vertical stresses.

#### V.2.4.5. Conclusions

In this work, a better understanding of the different phenomena occurring in the neighbourhood of an intruder (*i.e.* flat blade) vertically moving in a laterally confined granular bed is achieved. The PIV analysis allows to identify different types of particles' motions (compaction, loading and rupture of the chain forces, lateral collapsing, avalanches, *etc.*). A detailed comparison between the length of the velocity gradient vertically generated above the blade ( $L_b$ ) and the vertical stress perceived by the blade during its rise is carried out and highlights periodical fluctuations of  $L_b$  which are correlated to vertical stress fluctuations observed in a specific zone between the bottom and a characteristic height ( $z_c$ ), close to the critical length ( $\lambda_c$ ) identified under static conditions. The intensity and frequency of the fluctuations of stress and  $L_b$  are varying according to the Deborah number. These fluctuations are explained by successive loading and rupture cycles of horizontal force chains above the blade, leading to fluctuations of the vertical transmission of stress. Two regimes are identified depending on the value of  $\nu^*$ . Experiments testing the influence of the median particle size and the length of the blade could be further carried out to extend the generality of our observations. Our results give relevant data which will help the understanding of agglomeration in a low shear three-dimensional mixer.

### **IV.3. Capteurs de l'agglomération en voie humide**

L'étude bibliographique a mis en évidence l'existence de plusieurs techniques pour suivre en ligne le procédé d'agglomération. Les objectifs liés à l'utilisation de capteurs de l'agglomération sont multiples et renvoient à : la description des variations physico-chimiques et hydro-texturales induites par le procédé d'agglomération humide, la détermination d'un temps optimum d'agglomération, la mesure de l'efficacité du procédé, *etc.* Les mesures de consommation énergétique sont souvent réalisées pour des teneurs en eau croissantes et la courbe-type obtenue est mise en relation avec les variations des différents états de l'eau dans le milieu granulaire ou avec la variation de la compacité du lit. Bien que la littérature relative à des mesures énergétiques au cours de l'agglomération en voie humide soit très vaste, des questions subsistent quant à la répartition de l'énergie consommée par le malaxeur et en particulier la quantification de l'énergie réellement utilisée pour agglomérer. La troisième partie du chapitre IV concerne donc l'approche couplée des apports d'eau et d'énergie mécanique, avec l'établissement d'une méthodologie pour parvenir à définir les profils de consommation énergétique pendant l'agglomération humide de la semoule de blé dur. Ce travail est présenté sous la forme d'une publication déjà soumise :

*E. Rondet, M. Denavaut, S. Mandato, A. Duri, T. Ruiz, B. Cuq, Power consumption profile analysis during wet agglomeration process: Energy approach of wheat powder agglomeration, Powder Technology, 229, 214-221, 2012.*

Parmi l'ensemble des capteurs de suivi de l'agglomération, le potentiel de la spectroscopie proche infra-rouge a récemment été démontré dans le cas de l'agglomération de produits pharmaceutiques et de produits céréaliers avec la possibilité de proposer des corrélations entre les réponses spectrales et des variations de paramètres physiques et chimiques des agglomérats au cours du procédé. De plus, la revue bibliographique a montré la nécessité d'identifier des techniques non invasives pour le suivi en ligne du procédé d'agglomération, encore conduit industriellement avec beaucoup d'empirisme. Dans notre travail, présenté sous la forme d'une publication en préparation, nous nous intéressons à estimer la faisabilité de l'utilisation de la SPIR pour le suivi cinétique des modifications de composition chimique et de taille des structures générées au cours de l'agglomération humide de la semoule :

*S. Mandato, C.C. Taliani, T. Ruiz, B. Cuq, In-line monitoring of durum wheat semolina wet agglomeration by near infrared spectroscopy for two different water supply conditions. In preparation.*

### **IV.3.1. Power consumption profile analysis during wet agglomeration process: Energy approach of wheat powder agglomeration**

#### **IV.3.1.1. Abstract**

Mechanical energy input during mixing is one of the key stages of the mixer agglomeration process. It allows the distribution of water over the powder, the formation and growth of agglomerates, and homogenization of the agglomerates properties. The objective of the present work is to determine the power consumed by the wet agglomeration process of a reactive granular material, in the specific case of agglomeration of durum wheat semolina under the conditions of couscous grains production. Our study attempts to investigate the effects of process conditions (*i.e.* blade rotation speed, mass load, and water addition level) on the distribution of the different energy costs consumed by the mixer during the wet agglomeration process. As a baseline, we first measured the energy consumption by the motor for no-load mixing. To evaluate the energy consumption to transport inert load, we measured the energy consumption by the motor after introduction of different masses of durum wheat semolina without adding water. Finally, we study the energy consumption of the agglomeration process during mixing after water addition. Results demonstrate that the energy specifically consumed for agglomeration process increases with water content, from 9% (at 22% water content) to 26.6% (at 42% water content). However, the energy necessary to form and structure the agglomerates only represent at the maximum one third of the total energy consumed by the equipment.

#### **IV.3.1.2. Introduction**

In various industries, fine powders are produced in agglomerated form in order to improve their flowability, avoid lumping during rehydration, encapsulate sensitive components, or simply to improve the optical appearance of the product (Ennis and Litster, 1997; Iveson *et al.*, 2001; Litster and Ennis, 2004; Palzer, 2011). Depending on the powder properties different agglomeration technologies have to be applied to combine fine primary particles to larger ones (drying, fluid-bed, steam-jet, mixer, or different pressure agglomeration processes).

Mixer agglomeration, also referred to as wet-granulation, is a process commonly used in the pharmaceutical, food, detergent, and fine chemicals industries, to transform granular materials in larger semi permanent granules. During mixer agglomeration, the liquid binder is poured on moving particles and distributed thanks to the shear stress in the moving powder bed.

Mechanical energy input during mixing is one of the key stages of the agglomeration process as it allows the distribution of the particles and water in the whole volume of the mixer bowl, it induces the formation and the growth of agglomerates, and it allows homogenizing the agglomerates properties. Nevertheless, the understanding of the energy consumption by the agglomeration processes is still a scientific goal (Mort, 2009; Palzer, 2011). For mixer agglomeration, energy consumption can be rapidly estimated from the measurements of the torque of the mixer shaft (or equivalently the power consumption of the mixer motor), with reasonable precision in the granulating equipment.

Literature concerning power or torque measurements to describe agglomeration processes is considerable (Bier *et al.*, 1979; Werani, 1988; Rhodes, 1990; Knight *et al.*, 2000; Mackaplow *et al.*, 2000; Goldszal and Bousquet, 2001; Pietsch, 2002; Betz *et al.*, 2003; Gluba, 2005; Mort, 2005; Chopin *et al.*, 2007; Cazacliu and Legrand, 2008; Daumann *et al.*, 2009; Cazacliu and Roquet, 2009; Rondet *et al.*, 2009; Cavinato *et al.*, 2010; Collet *et al.*, 2011). Power measurements have been helpful for many purposes: to characterize the product evolution during process, to understand the underlying mechanisms, to depict the influence of formulation and process parameters, to control the process efficiency, to estimate the cohesion of powder particles, to provide guidelines for scale-up of the equipment operation, *etc.* Descriptions of power consumption profiles under continuous liquid addition have been conducted to identify specific transition times and highlight transient stages related to mechanisms occurring during wetting and mixing: nuclei formation (with moisture sorption), pendular state (with formation of liquid bridges), and funicular state (with equilibrium between granule growth and breakage). Power consumption measurements also helps end-product characterization, thanks to the establishment of relations between the energy spent during the operation and the characteristics of the agglomerates, such as tensile strength, cohesion, agglomerate size, or rate of particle consolidation.

Betz *et al.* (2004) defined the temperature - power consumption ratio by comparing temperature and power consumption profile during wet granulation and showed that this ratio is typical of product composition. Rondet *et al.* (2009) identified an initial peak of power consumption related to the start-up of the mixer engine. Then, the power consumption stabilizes after few minutes and reaches a plateau whose value depends on the powder bed water content and is related to the bed bulk solid volume fraction. Knight *et al.* (2001) showed that torque measurements can also be used as a suitable parameter to probe mixer design. Demeyre *et al.* (2007) demonstrated that an increase in the blade revolution speed induces an increase of the energy consumption when using mixer with two revolution movements.

The global measurement of the electric input power takes into account all the energy consumptions by the mixing equipment. However, only a part of the energy input is used for the process of granules' growth and consolidation during agglomeration. Part of the energy is also used for load transportation, for destructive mechanism occurring in the agglomerates bed, or is transformed into heat (Gluba, 2005). In addition, when studying mixing energy, inert materials have often been used and interactions between solid particles and liquid have rarely been considered.

The distribution of the mechanical energy input by the mixer during the agglomeration process of a granular material is thus still a real scientific question. The objective of the present work is to determine the power consumed by the wet agglomeration process of a reactive granular material, in the specific case of agglomeration of durum wheat semolina under the conditions of couscous grains production. Wet agglomeration was conducted using a batch planetary mixer. To identify the different origins of the total energy consumption by the mixer, experiments were conducted in three successive phases. (i) Mixing with no load to evaluate the energy consumption for blade rotation. (ii) Mixing of inert granular material to evaluate the energy consumption to transport inert load. (iii) Mixing of reactive granular material in presence of water to evaluate the energy consumption by the agglomeration mechanisms. Our study also attempts to investigate the effects of process conditions (*i.e.* blade rotation speed, mass load, and water addition level) on the distribution of the different energy costs consumed by the mixer during the wet agglomeration process.

### **IV.3.1.3. Materials and methods**

#### **IV.3.1.3.1. Materials**

Experiments were conducted using durum wheat semolina of industrial quality (Saad *et al.*, 2011). Semolina was stored in hermetic containers at 4°C until experiments. Water content of semolina (16.8 g water / 100g dry matter) was determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods. Particle size distribution of semolina was measured in triplicate by using laser granulometry (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. Semolina is characterized by  $d_{50} = 272 \pm 2 \mu\text{m}$  and span  $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 1.67$ . The binder used for agglomeration is tap water.

#### IV.3.1.3.2. Methods

Experiments were carried out using a batch planetary mixer (Kenwood Major 1200), equipped with a 5 liters fixed bowl and a K blade that rotates around a vertical axis in an adjustable speed range. The measurement of the electric consumption is continuously carried out via a wattmeter (Wattcom<sup>®</sup>). Electric input power curves were smoothed thanks to the Origin<sup>®</sup> software. Experiments were conducted in triplicate.

As a baseline, we first measured the energy consumption by the motor for no-load mixing over 60 min, at different blade rotation speeds (70, 80, or 90 rpm). To evaluate the energy consumption to transport inert load, we measured the energy consumption by the motor after introduction in the mixer bowl of different masses of durum wheat semolina (1125, 1875, or 2625 g) without adding water. For these experiments, mixing was first conducted under no-load conditions (for 60 min) to reach stable conditions, before the rapid introduction (in 10-15 sec) of the mass of semolina in the mixer bowl. The mixing was then conducted for additional 60 min period. Experiments were carried out at different blade rotation speeds (70, 80, or 90 rpm).

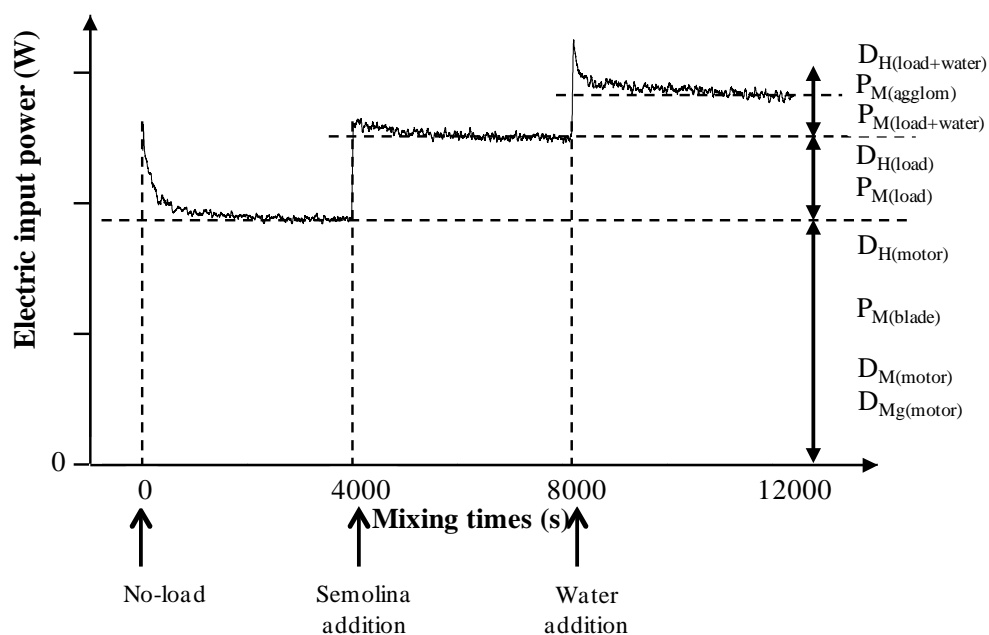
To study the energy consumption of the agglomeration process during mixing, water was added in the semolina to initiate the agglomeration mechanisms. Experiments were conducted under constant mass load (semolina + water = 1875 g) and constant blade rotation speed (70 rpm). For these experiments, mixing under no-load conditions was first conducted for 60 min, the semolina was then introduced in the mixer bowl and mixed for 60 min. Water was finally rapidly introduced (in 10-15 sec) in the mixer bowl containing the semolina. Mixing was remained for an additional 60 min period. Different water contents (22, 27, 32, 35, 38, or 42 g water / 100 g dry matter) were studied.

The extend of agglomeration of semolina particles was characterized by the changes in granulometric distribution of the agglomerates. Measurements were made at different mixing times by sieving approximately 100 g of the product over a column of sieves of decreasing mesh size (between 2 and 0.350 mm). The sieve column was moved by gentle manual stirring for 1 min to separate the agglomerate fractions. The repartition of the agglomerates on each sieve was measured by weighing. The size distribution was expressed as the percent of total weight.



#### IV.3.1.4. Results and discussion

The experimental approach we set up is based on the addition of the energy costs that are consumed by the wet agglomeration process of durum wheat semolina. On line recordings of the electrical input power were carried out under different usage conditions of the mixing equipment (Fig.IV.41). Calculations were conducted as the difference between the power draw and the baselines power consumption that can be measured by running the empty mixer (Mort, 2005, 2009).



**Figure IV.41.** Typical curve for the electrical input power that was recorded during mixing experiments under no-load (for 60 min), after semolina addition (for 60 min), and after water addition (for 60 min).

No load mixing - We first evaluated the performances of the equipment during mixing under no load (Fig.IV.41), at different rotation blade speeds. When starting up the mixer, we also observe an initial transitory phase with over-consumption peak of the electric input power, that gradually decreases after several minutes of mixing to reach a constant value (Rondet *et al.*, 2009). This initial transitory period is due to overconsumption of the engine at starting.

The power curves were described by the values of duration (min), total energy consumption (kJ) and energy overconsumption (kJ) of the initial transitory phase (Table IV.5). Increases of the blade rotation speed (from 70 to 90 rpm) induce an increase of the duration (from 9.2 to 17.1 min), total energy consumption (from 23.3 to 53.3 kJ), and energy overconsumption (from 0.6 to

2.7 kJ) of this starting phase. It should be noticed that the energy overconsumption remains low (2.7 to 5.1%) in comparison with the total energy consumptions over the same period. The analysis of the stabilized energy consumptions (*i.e.* measurements of "instantaneous" electric input powers) was conducted after 60 min mixing (Table IV.5). An increase of the blade rotation speed (from 70 to 90 rpm) induces a slight increase of the electric input power (from 41.1 to 49.2 W). Cavinato *et al.* (2010) also observed that torque increases almost proportionally with increasing the stirring speed and suggested a scaling factor for the blade speed.

**Table IV.5.** Influence of blade rotation speed on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power during mixing under no load conditions, at different blade rotation speeds.

Rotation speed (rpm)	Transitory initial period				Stationary electrical input power (W)
	Duration (min)	Over consumption energy (kJ)	Total energy consumption (kJ)	Over / Total consumption (%)	
70	9.2 ( $\pm 3$ )	0.63 ( $\pm 0.52$ )	23.3 ( $\pm 0.4$ )	2.7	41.1
80	16.4 ( $\pm 5$ )	2.01 ( $\pm 1.43$ )	44.6 ( $\pm 1.3$ )	4.5	43.3
90	17.1 ( $\pm 4$ )	2.70 ( $\pm 1.86$ )	53.2 ( $\pm 1.7$ )	5.1	49.2

It was not possible to determine the respective contribution of the different energy outputs, although we know that the measured electrical input power ( $P_{E(\text{no load})}$ ) is the sum of mechanical output power to rotate the blade ( $P_{M(\text{blade})}$ ) and dissipation terms: heat dissipation ( $D_{H(\text{motor})}$ ), motor magnetic dissipation ( $D_{Mg(\text{motor})}$ ), and motor mechanical dissipation ( $D_{M(\text{motor})}$ ), as presented in Eq.IV.16.

$$P_{E(\text{no load})} = P_{M(\text{blade})} + (D_{M(\text{motor})} + D_{Mg(\text{motor})}) + D_{H(\text{motor})} \quad (\text{Eq.IV.16})$$

The values of electrical input power measured under no load conditions ( $P_{E(\text{no load})}$ ) will be used as “baseline” to the following analyze of the energy distributions during mixing of inert load or during agglomeration of semolina with water.

Inert load mixing - Inert load mixing was conducted by introducing different masses (1125, 1875, or 2625 g) of native semolina in the mixer bowl. The electrical input power was then measured during 60 min mixing at different blade rotation speeds (70, 80, or 90 rpm)

(Fig.IV.41). Whatever the conditions, we observe over-consumption peak of electric input power immediately after the load addition. After the peak, the power decreases gradually to reach a constant value after several minutes. The over-consumption peak can be associated to temperature setting of the motor due to the mass load introduction and to temperature setting of semolina through mixing effects.

The power curves were characterized by the values of duration (min), total energy consumption (kJ) and energy overconsumption (kJ) of the transitory phase after the addition of the inert load (Table IV.6). The duration (9.2 - 54.3 min) and the energy overconsumption (0.30 - 8.31 kJ) of the transitory phase is affected by the mixing conditions (*i.e.* load mass and rotation speed). Maximal values were measured at 80 rpm and for a load mass of 2625 g. The energy overconsumption during the transitory phase remains low (0.9 to 3.4%) in comparison to the total consumptions over the same period. The energy overconsumption increases (from 0.3 to 8.4 kJ) with increases of the load mass (from 1125 to 2625 g). The specific overconsumption energy, which is the ratio of the energy overconsumption to load mass, also increases (from 0.27 to 2.4 kJ.kg<sup>-1</sup>) with the load mass, whatever the rotation speed. It thus exists a load mass effect on the energy overconsumption by the mixer during the transitory phase.

**Table IV.6.** Influence of blade rotation speed on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power during the transitory period of the mixing of inert load, at different blade rotation speeds and different load masses.

Load mass (g)	Rotation speed (rpm)	Duration (min)	Over consumption (kJ)	Specific over consumption (kJ/kg)	Total consumption (kJ)	Specific total consumption (kJ/kg)	Over / total consumption (%)
1125	70	9.9 ( $\pm 1.1$ )	0.64 ( $\pm 0.11$ )	0.57 ( $\pm 0.10$ )	29.5 ( $\pm 0.7$ )	26.2 ( $\pm 0.6$ )	2.2
	80	18.8 ( $\pm 6.0$ )	0.83 ( $\pm 0.58$ )	0.74 ( $\pm 0.52$ )	59.2 ( $\pm 1.1$ )	52.6 ( $\pm 0.9$ )	1.4
	90	9.0 ( $\pm 2.8$ )	0.30 ( $\pm 0.07$ )	0.27 ( $\pm 0.06$ )	31.4 ( $\pm 1.9$ )	27.9 ( $\pm 1.7$ )	0.9
1875	70	22.3 ( $\pm 4.2$ )	1.90 ( $\pm 0.62$ )	1.01 ( $\pm 0.33$ )	80.0 ( $\pm 3.3$ )	42.7 ( $\pm 1.8$ )	1.9
	80	35.4 ( $\pm 3.8$ )	3.58 ( $\pm 1.53$ )	1.91 ( $\pm 0.82$ )	135.2 ( $\pm 8.5$ )	72.1 ( $\pm 4.5$ )	2.6
	90	11.6 ( $\pm 5.3$ )	0.71 ( $\pm 0.38$ )	0.38 ( $\pm 0.20$ )	51.1 ( $\pm 1.7$ )	27.2 ( $\pm 1.1$ )	1.4
2625	70	36.2 ( $\pm 8.5$ )	4.47 ( $\pm 1.20$ )	1.70 ( $\pm 0.46$ )	162.7 ( $\pm 3.5$ )	62.0 ( $\pm 1.3$ )	2.7
	80	54.3 ( $\pm 1.4$ )	8.41 ( $\pm 1.31$ )	3.20 ( $\pm 0.50$ )	246.9 ( $\pm 5.4$ )	94.0 ( $\pm 2.1$ )	3.4
	90	51.0 ( $\pm 6.2$ )	6.23 ( $\pm 0.26$ )	2.37 ( $\pm 0.10$ )	277.9 ( $\pm 4.8$ )	105.8 ( $\pm 1.8$ )	2.2

The analysis of the stabilized energy consumptions (*i.e.* instantaneous electric input powers) was carried out after mixing the load for 60 min (Fig.IV.41). As expected, increases of the blade rotation speed (from 70 to 90 rpm) or of the inert mass load (from 1125 to 2625 g) induce increases of the instantaneous electric input power (Table IV.7). From the values of instantaneous electric input power (in W or kJ.s<sup>-1</sup>), load mass (kg) and rotation speed (rad.sec<sup>-1</sup>),

we calculated the values of specific mechanical energy (SME) ( $J.kg^{-1}$ ) that were consumed by the engine (Table IV.7). The calculated SME values are not affected by the blade rotation speed. On the other hand, we observed a large decrease of the SME values (from 230 to 140  $J.kg^{-1}$ ) with an increase of the load mass (from 1125 to 2625 g).

**Table IV.7.** Influence of blade rotation speed on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power during the equilibrium period of the mixing of inert load, at different blade rotation speeds and different load masses.

Load mass (g)	Rotation speed (rpm)	Electric input power		Apparent mechanical output power to mix, shear & displace the load		Energy ratio <sup>(a)</sup> (%)
		(W)	Specific (J/kg)	(W)	Specific (J/kg)	
--	70	41.1 ( $\pm 0.7$ )	--	--	--	
	80	43.3 ( $\pm 1.4$ )	--	--	--	
	90	49.2 ( $\pm 1.6$ )	--	--	--	
1125	70	48.5 ( $\pm 1.2$ )	232 ( $\pm 5$ )	7.4 ( $\pm 0.2$ )	35.4 ( $\pm 0.9$ )	15.3
	80	51.7 ( $\pm 1.0$ )	217 ( $\pm 4$ )	8.4 ( $\pm 0.2$ )	35.2 ( $\pm 0.7$ )	16.2
	90	57.6 ( $\pm 3.5$ )	214 ( $\pm 13$ )	8.4 ( $\pm 0.5$ )	31.3 ( $\pm 1.9$ )	14.6
1875	70	58.4 ( $\pm 2.5$ )	168 ( $\pm 7$ )	17.3 ( $\pm 0.7$ )	49.7 ( $\pm 2.1$ )	29.6
	80	61.9 ( $\pm 4.0$ )	156 ( $\pm 10$ )	18.6 ( $\pm 1.2$ )	46.7 ( $\pm 3.0$ )	30.0
	90	72.4 ( $\pm 2.9$ )	162 ( $\pm 6$ )	23.2 ( $\pm 0.9$ )	51.8 ( $\pm 2.1$ )	32.0
2625	70	72.8 ( $\pm 1.6$ )	149 ( $\pm 3$ )	31.7 ( $\pm 0.7$ )	65.0 ( $\pm 1.4$ )	43.5
	80	73.2 ( $\pm 1.7$ )	131 ( $\pm 4$ )	29.9 ( $\pm 0.8$ )	53.7 ( $\pm 1.2$ )	40.8
	90	87.8 ( $\pm 1.6$ )	140 ( $\pm 3$ )	38.6 ( $\pm 0.7$ )	61.6 ( $\pm 1.1$ )	44.0

<sup>(a)</sup> Ratio (in %) of the mechanical output really used to mix, shear, and displace the inert load, reported to total electric input power consumed by the engine.

To analyse the distribution of energy consumptions, we calculated the part of the electrical input power that is consumed to mix, shear, and/or displace the inert load inside the bowl. After the initial transitory phase, the electrical input power ( $P_{E(load)}$ ) is used as mechanical output power to rotate the blade ( $P_{M(blade)}$ ), mechanical output power to mix, shear and/or displace the semolina ( $P_{M(load)}$ ) and different dissipation terms: heat dissipation ( $D_{H(motor)}+D_{H(load)}$ ), magnetic and mechanical motor dissipation ( $D_{M(motor)}+D_{Mg(motor)}$ ), as presented in Eq.IV.17.

$$P_{E(load)} = P_{M(blade)} + P_{M(load)} + (D_{H(motor)} + D_{H(load)}) + (D_{M(motor)} + D_{Mg(motor)}) \quad (\text{Eq.IV.17})$$

The magnetic and mechanical dissipation terms are supposed not to be affected by the load mass, and thus similar to those determined under no load conditions (Table IV.5). The difference between Eq.IV.17 and Eq.IV.16 allows estimating the apparent part of the electrical input power that is consumed to mix, shear and/or displace the powder inside the bowl (Eq.IV.18).

$$P_{E(load)} - P_{E(no\ load)} = P_{M(load)} + D_{H(load)} \quad (\text{Eq.IV.18})$$

After mixing for 60 min, the measured semolina temperature remained almost constant, with only a slight increase of +1°C that expresses the very low friction forces at the interparticle contacts occurring during mixing (Betz *et al.*, 2004). However, we are not able to evaluate the part that is specifically consumed by heat dissipation due to the load presence. The calculated values of apparent mechanical output power ( $P_{M(\text{load})} + D_{H(\text{load})}$ ) that is used to mix, shear, and/or displace the semolina are presented in Table IV.7. We only observe a slight increase in the apparent mechanical output power with an increase of the blade rotation speed. Demeyre *et al.* (2007) have also observed by using a Triaxe<sup>®</sup> mixer that energy consumption in the stationary phase increases according to the blade rotation speed.

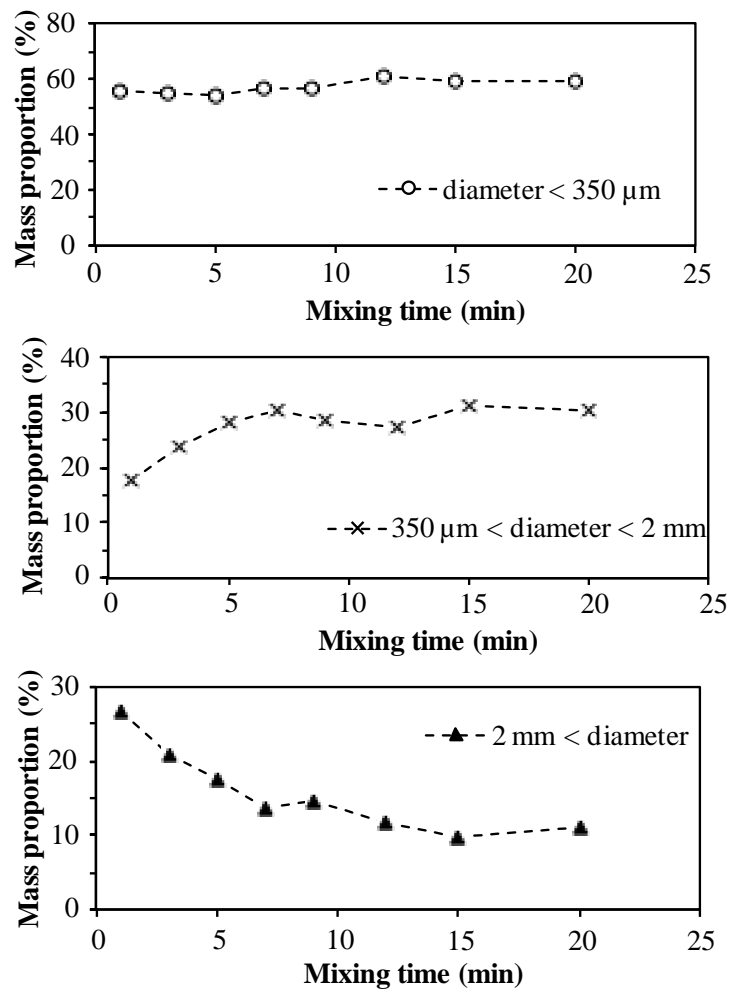
We also observe in Table IV.7 increases in values of apparent mechanical output power (from 7.4 to 38.6 W) with an increase of the load mass, whatever the blade rotation speed. The energy consumption and the torque have already shown to be proportional to the load mass or to the filling level of the mixer (Knight *et al.*, 2001; Betz *et al.*, 2004). A simple linear equation (Eq.IV.19) allows ( $R^2 = 0.91$ ) to describe the influence of the load mass (kg) on the apparent specific mechanical output power ( $\text{J.kg}^{-1}$ ) that is used to mix, shear and/or displace the semolina, where  $\omega$  is the blade rotation speed (en rad/s).

$$\frac{P_{M(\text{load})}}{\omega \text{ Load}} = 0.0174 \text{ Load} + 15.2 \quad (\text{Eq.IV.19})$$

We also calculated the SME values ( $\text{kJ.kg}^{-1}$ ) that were really consumed to mix, shear, and/or displace the load mass inside the mixer bowl (Table IV.7). The values are not affected by changes in blade rotation speed. On the other hand, we observe a high increase in the SME values (from 31 to 65  $\text{J.kg}^{-1}$ ) with an increase of the load mass (from 1125 to 2625 g), although the specific electric input power is decreasing. A significant part of the electrical energy consumed by the engine is really used to mix, shear, and/or displace the load mass in the mixer tank. This part increases strongly (from 15% to 42%) with an increase of the load mass, but is little affected by the variation of the blade rotation speed.

Reactive load mixing & agglomeration process - Agglomeration process occurs during mixing after the addition of water in the mixing bowl, as shown by the changes in particle size distribution (Fig.IV.42). Rapid changes in particle size distribution occur after the water addition, with simultaneous increase in the content of particles of intermediate sizes and decrease in the content of large particles. On the other hand, the content of small particles is apparently not affected during mixing. After 8-10 min mixing, the particle size distribution appears to be

more or less stable. We have considered that the agglomeration mechanism is almost accomplished after 10 min of mixing.



**Figure IV.42.** Changes in the mass proportion of the different particles types during agglomeration process of durum wheat semolina at 27% water content.

We investigated the mechanical output power directly consumed by mixing reactive load (*i.e.* semolina and water) and agglomeration process (Fig.IV.41). Different amounts of water (Table IV.8) were introduced to investigate different conditions of wet agglomeration (Saad *et al.*, 2011). As expected, we observed a rough increase of the electric input power immediately after the addition of water (Fig.IV.41). After the peak, the electric input power then decreases rapidly for the first few minutes, and then more gradually in a second stage so as to reach a steady state value for the long mixing times. Water addition in semolina initiates the agglomeration mechanism. The pouring of water being almost instantaneous, we made the assumption that the over-consumption period, starting from the water pouring until the slope break, corresponds to

the energy necessary to homogenise the water in the mixture and to the energy consumed by the agglomeration process.

**Table IV.8.** Influence of water addition level on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power by the agglomeration process during the mixing of the reactive load (semolina and water).

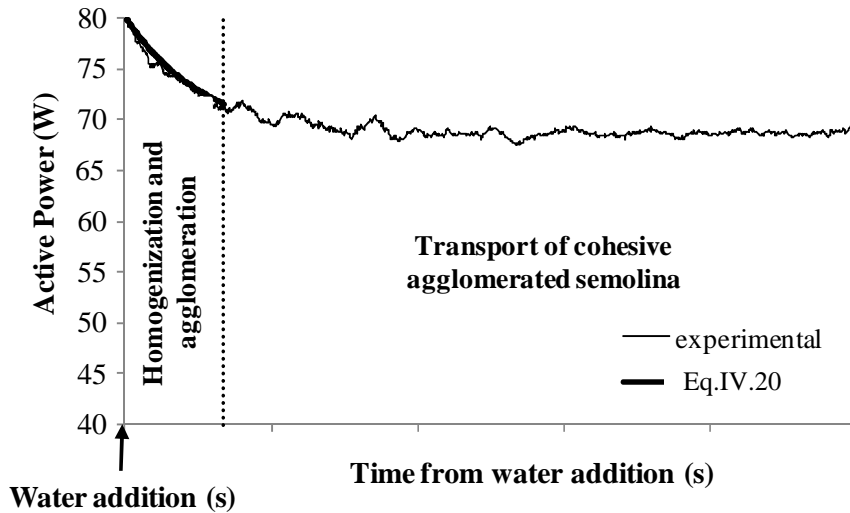
<sup>(a)</sup> The values of total electric input power consumption were determined during the transitory period by considering a constant time of 10 min.

Semolina mass (g)	Water mass (g)	$\tau$ (min)	Over consumption (kJ)	Specific over consumption (kJ/kg)	Total consumption <sup>(a)</sup> (kJ)	Specific total consumption <sup>(a)</sup> (kJ/kg)	Over/ total consumption (%)
1787	88	4.81 ( $\pm 0.42$ )	3.64 ( $\pm 0.93$ )	1.94 ( $\pm$ )	41.3	22.0	8.8
1717	158	3.27 ( $\pm 0.07$ )	3.68 ( $\pm 1.27$ )	1.96 ( $\pm$ )	41.7	22.2	8.8
1652	223	2.07 ( $\pm 0.13$ )	4.17 ( $\pm 1.09$ )	2.22 ( $\pm$ )	43.4	23.1	9.6
1615	260	1.28 ( $\pm 0.22$ )	4.20 ( $\pm 1.22$ )	2.24 ( $\pm$ )	45.4	24.2	9.2
1580	295	2.43 ( $\pm 0.42$ )	11.74 ( $\pm 1.47$ )	6.26 ( $\pm$ )	53.1	28.3	22.1
1535	340	1.42 ( $\pm 0.53$ )	16.72 ( $\pm 1.67$ )	8.92 ( $\pm$ )	62.9	33.5	26.6

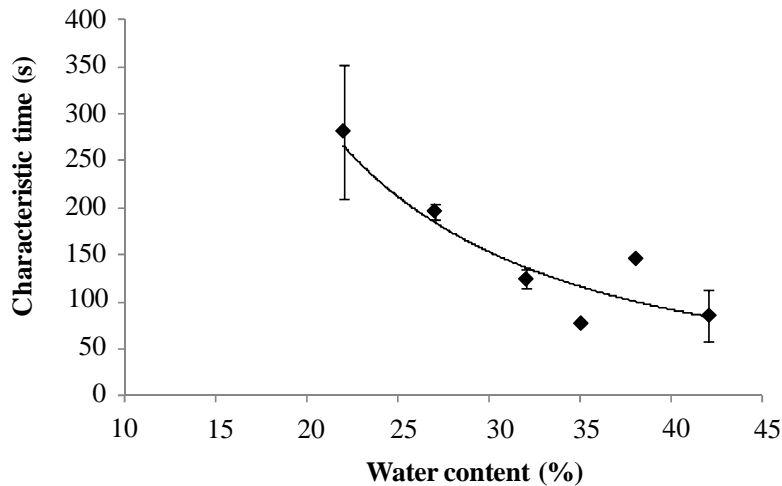
The mixing power curves were modeled to obtain a kinetic description of the agglomeration phenomenon at the process scale (Chopin *et al.*, 2007). We used a simple dynamic relaxation equation (Eq.IV.20) to describe the rapid decrease in electric input power during mixing after water addition.

$$P_{E(\text{load+water})}(t) = P_{E(Eq)} + (P_{E(0)} - P_{E(Eq)}) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) \quad (\text{Eq.IV.20})$$

Where  $P_{E(\text{load+water})}(t)$  is the measured electrical input power (W) as a function of the mixing time  $t$  (min);  $P_{E(0)}$  and  $P_{E(Eq)}$  are the electrical input power (W) measured at the beginning and at the end of the agglomeration mixing stage, respectively;  $\tau$  is the relaxation time (min) related to agglomeration phenomenon. The model coefficient ( $\tau$ ) was calculated to fit experimental data from a nonlinear optimization procedure (Gauss Newton procedure), using the software Excel (Microsoft). The dynamic relaxation model fits well ( $R^2 = 0.79 - 0.99$ , depending on water content) the changes in measured electrical input power as a function of mixing time, during the energy over-consumption period after water addition (Fig.IV.43). The calculated values of the model parameter ( $\tau$ ) decrease (from 4.7 to 1.4 min) as the bulk water content increases (from 22 to 42%) (Fig.IV.44). High bulk water contents could enhance the cohesion of the powder bed, and thus improve the efficiency of mechanical stress transfer in the granular medium and reduce the time necessary to complete the agglomeration phenomenon.



**Figure IV.43.** Mixing power curve of wheat semolina after water addition (at 32% water content). Experimental results versus model (solid line) calculated using Eq. IV.20.



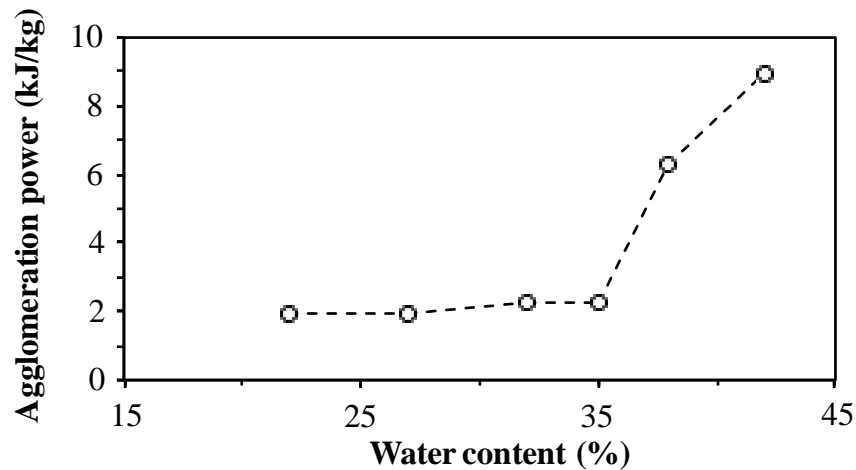
**Figure IV.44.** Impact of water addition level on the calculated values of the characteristic time ( $\tau$ ) for homogenization and agglomeration mechanisms, during agglomeration of durum wheat semolina.

The interpretation of the measured electrical input power curves has also been carried out by the measurements of total energy consumption (kJ) and energy overconsumption (kJ) during the transitory phase after the water addition (Table IV.8), as a measure of the transformation work being done in the product (Mort, 2005).

As expected, we observe an increase in the electric input power overconsumption (from 3.64 to 16.7 kJ) and specific electric input power overconsumption (from 1.94 to 8.92 kJ.kg<sup>-1</sup>) during the agglomeration phase, with an increase of the mass of added water (Table IV.8). A non-linear



relationship describes the effect of water content on the increase in electric input power overconsumption, with a low effect of the water content until 35%, and then a rough increase beyond 35% (Fig.IV.45). Similar abrupt increases were observed when plotting the torque profiles as a function of the amount of liquid added. This phenomenon is interpreted as the beginning of a significant granule growth (Cavinato *et al.*, 2010). The experiments beyond 42% water content were not possible due to the formation of continuous dough (Saad *et al.*, 2011).



**Figure IV.45.** Impact of water addition level on the electric input power overconsumption due to the agglomeration process of durum wheat semolina.

We also observed an increase of the total electric input power consumed by the engine during the transitory period. It is interesting to note that the proportion of the energy that is really used by the agglomeration process (compared to the total electric input power consumed by the engine) largely increases (from 8.8 to 26.6%) with an increase of the water content.

The analysis of energy distribution (*i.e.* measurements of "instantaneous" electric input powers) was carried out after the agglomeration phase, *i.e.* 10 min after the addition of water. As expected, an increase of the water content induces an increase of the instantaneous electric input power consumed by the engine (Table IV.9). From the values of instantaneous electric input power (W), load mass (kg) and rotation speed ( $\text{rad}\cdot\text{sec}^{-1}$ ), we calculated the SME values ( $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) consumed by the engine (Table IV.9). We also observed a large increase in the SME values (from 180 to 220  $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) with an increase of the water content.

**Table IV.9.** Influence of water on the critical parameters determined from the measurements of the electrical input power after the agglomeration phase.

Water content (%)	Electric input power		Apparent mechanical output power due to cohesive behaviour		Energy ratio <sup>(a)</sup> (%)
	(W)	Specific (J/kg)	(W)	Specific (J/kg)	
22	62.8 ( $\pm 3.8$ )	180 ( $\pm 10$ )	4.4 ( $\pm 0.3$ )	12.6 ( $\pm 0.8$ )	7,0
27	63.3 ( $\pm 3.2$ )	182 ( $\pm 9$ )	4.9 ( $\pm 0.2$ )	14.1 ( $\pm 0.7$ )	7,7
32	65.4 ( $\pm 1.8$ )	188 ( $\pm 5$ )	7.0 ( $\pm 0.2$ )	20.1 ( $\pm 0.6$ )	10,7
35	68.7 ( $\pm 2.9$ )	197 ( $\pm 8$ )	10.3 ( $\pm 0.4$ )	29.5 ( $\pm 1.2$ )	15,0
38	68.9 ( $\pm 3.2$ )	197 ( $\pm 9$ )	10.5 ( $\pm 0.5$ )	30.1 ( $\pm 1.4$ )	15,2
42	76.9 ( $\pm 3.1$ )	220 ( $\pm 9$ )	18.5 ( $\pm 0.7$ )	53.0 ( $\pm 2.1$ )	24,1

<sup>(a)</sup> Ratio (in %) of the mechanical output due to cohesive behavior of the agglomerated product, reported to total electric input power consumed by the engine.

To analyse the distribution of energy consumptions at the end of the agglomeration phase, we calculated the part of the electrical input power that is consumed to mix, shear, and/or displace the agglomerated product. We considered this as an additional term due to the cohesive behaviour of the agglomerated product ( $P_{M(\text{cohesion})}$ ), in addition of the term due to the load mass ( $P_{M(\text{load})}$ ). The cohesive behavior of the agglomerated bulk could be related to the slight decrease in the measured electrical input power for long mixing times, due to shearing (*i.e.* breakage of agglomerates), and coalescence (*i.e.* growth of agglomerates) effects. We analysed the measured electrical input power ( $P_{E(\text{load+water})}$ ) by its different components: mechanical output power to rotate of the blade ( $P_{M(\text{blade})}$ ), mechanical output power to mix, shear, and/or displace the load ( $P_{M(\text{load})}$ ), mechanical output power due to cohesive behaviour ( $P_{M(\text{cohesion})}$ ), and different dissipation terms: heat dissipation ( $D_{H(\text{motor})}+D_{H(\text{load})}+D_{H(\text{cohesion})}$ ), magnetic and mechanical motor dissipation ( $D_{M(\text{motor})}+D_{Mg(\text{motor})}$ ) (Eq.IV.21).

$$P_{E(\text{load+water})} = P_{M(\text{blade})} + P_{M(\text{load})} + P_{M(\text{cohesion})} + (D_{H(\text{motor})} + D_{H(\text{load})} + D_{H(\text{cohesion})}) + (D_{M(\text{motor})} + D_{Mg(\text{motor})}) \quad (\text{Eq.IV.21})$$

The difference between Eq.IV.21 and Eq.IV.17 allows estimating the apparent part of the electrical input power that is consumed through the specific cohesion behaviour of the agglomerated product (Eq.IV.22).

$$P_{E(\text{load+water})} - P_{E(\text{load})} = P_{M(\text{cohesion})} + D_{H(\text{cohesion})} \quad (\text{Eq.IV.22})$$

The temperature of the agglomerated bed bulk slightly increases ( $+2^\circ\text{C}$ ) after the agglomeration phase, due to the inter-particle friction forces occurring within the wet powder bed. However, we are not able to evaluate the part that is specifically consumed by heat dissipation. The values of apparent mechanical output power due to cohesive behaviour of the agglomerated product

( $P_{M(\text{cohesion})} + D_{H(\text{cohesion})}$ ) were calculated after the agglomeration phase (*i.e.* 10 min after water addition) (Table IV.9). As expected, we observe a significant increase in the apparent mechanical output power with an increase of the water content. A significant part of the electrical energy consumed by the engine is consumed through the cohesion behavior of the agglomerated products. This part increases strongly (from 7% to 24.1%) with increases of water content.

#### IV.3.1.5. Discussion

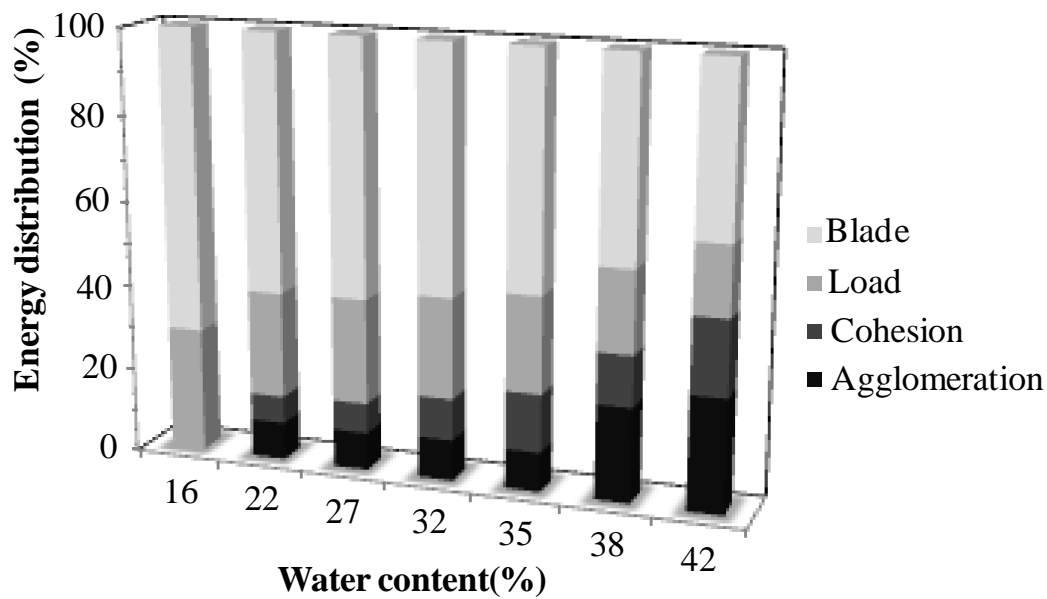
Our results demonstrate that it is possible to estimate the energy consumed specifically by the agglomeration operation during the wet agglomeration process, starting from the monitoring of the total electric input power. Thanks to our experimental approach of characterization of the energies consumed under different conditions, we estimated the effective distribution of the different energy consumptions. We considered a phase of 10 min mixing after the addition of water sufficient to insure the agglomeration process of semolina. The calculation leans on the values of total electric input power measured at the end of the 10 min mixing (Table IV.10).

**Table IV.10.** Energy distribution during mixing agglomeration of durum wheat semolina in presence of water.

Water content (%)	Total electric consumption (kJ)	Energy distribution (%)			
		Motor consumption	Load mixing	Agglomeration	Cohesive effects
16	35.0	70.9	29.1	0	0
22	41.3	60.1	24.7	8.8	6.4
27	41.7	59.6	24.5	8.8	7.1
32	43.4	57.2	23.5	9.6	9.7
35	45.4	54.7	22.5	9.2	13.6
38	53.1	46.8	19.2	22.1	11.9
42	62.9	39.5	16.2	26.6	17.7

The energy distribution is determined from the values of energies (mechanics and heat dissipation) really used by the agglomeration (Table IV.8), used by the cohesive effects of the agglomerates products (Table IV.9), used by the mixing, shearing, and displacement effects (Table IV.7), and used by no load mixing (Table IV.5). The calculated energy distribution values are presented in Table IV.10 and in Fig.IV.46. Whatever the water content, the energy is preferentially used to rotate the mixing blade, even if this energy cost decreases under high water content conditions. The share of energy necessary to the non-cohesive transport of the inert load in the mixer bowl also decreases with increasing the water content.

The trend is the opposite for the cohesive transport energy for the agglomerated product. Most interesting is to note that the energy specifically consumed for agglomeration process increases with water content. It varies from 9% (at 22% water content) to 26.6% (at 42% water content). The energy necessary to form and structure the agglomerates only represent at the maximum one third of the total energy consumed by the equipment. This result makes it possible to consider great possibilities in term of optimization of the energy consumption during wet agglomeration process.



**Figure IV.46.** Impact of water addition level on energy repartition during agglomeration of durum wheat semolina in presence of water.

#### IV.3.1.6. Conclusion

This research study focused on the energy aspects of the agglomeration process at a macroscopic scale. The first part of the work consists in identifying on the energetic signal the various studied phenomena (no-load mixing, inert load mixing, mixing of reactive powder during agglomeration process). Under the assumption that the mechanical and magnetic dissipation are constant, it could be highlighted that it is possible to approximate, except for the heat dissipation, the energy consumed at the different levels (equipment, load, and agglomeration mechanisms). The different types of energy, which are consumed, could be more or less extracted from the electric input power. We considered the total energy which is consumed by the blade rotation motion (not dissociated from the magnetic and mechanical dissipation) to be the sum of energy

consumed by the mixing and shearing effects of the mass load, by the agglomeration mechanisms and by cohesive behaviour of the agglomerated products.

The study of the signal intensity for the different process conditions (blade rotation speed, mass load and water content) made it possible to identify their influences on energy consumption. The energy consumption increases when blade rotation speed, mass load and water content increases. It is possible to calculate the energetic yields of the different phenomena involved in the wet agglomeration during mixing in a planetary mixer. The energy necessary for the agglomeration of the semolina is relatively small, if compared with total energy consumption. It requires, to the maximum, only a third of the provided energy. The remaining energy is used for the blade rotation, mixing of the load mass, or is lost through mechanical, magnetic or heat dissipation. Our methodology could be considered as an original method for the establishment of energetic audit concerning the wet agglomeration process.

**Acknowledgements** - We would like to thank the Région Languedoc Roussillon (France) for its financial support through the scientific program "Chercheur d'Avenir 2009, Energy, Powder and Interface".

### **IV.3.2. In-line monitoring of durum wheat semolina wet agglomeration by near infrared spectroscopy for two different water supply conditions**

#### **IV.3.2.1. Introduction**

The wet agglomeration process is used to increase the size of particles by adding a wetting liquid and mechanical energy to promote collisions and adhesion of wetted particles. This process is broadly used in a wide range of industrial applications (*e.g.* pharmaceutical industry, food processing, civil engineering, *etc.*). The principal challenge of the wet agglomeration process is to correctly disperse water in the powder bed and to ensure homogeneous water and particle size distributions in order to obtain wet agglomerates with desired properties. The management of the agglomeration process is still mainly conducted based on empirical knowledge and technical know-how of operators. This process has been traditionally monitored by visual and sampling procedures. Physical and hydro-textural changes (*e.g.* particle size, water content, compactness) of agglomerates are measured by different analytical methods according to the mixing time and/or the hydration level. Other methods are used to follow in-line the agglomeration process by using in situ sensors or probes, without off-lines measurements (*e.g.* power and torque measurements, near infra-red spectroscopy).

Near infra-red (NIR) spectroscopy appears as a useful non-invasive tool to extract physical and chemical information of powdered products during an on-going manufacturing process, particularly in the pharmaceutical and food industries (Miller, 1979; Frake *et al.*, 1997; Rantanen and Yliruusi, 1998; Robert *et al.*, 1999; Osborne, 1999, 2000, 2006; Bertrand and Dufour, 2000; Dowell and Maghirang, 2002; Wellner *et al.*, 2005; Alcalà *et al.*, 2009, Kaddour and Cuq, 2009). Several studies investigated the use of NIR spectroscopy to monitor bread dough mixing with the determination of NIR mixing curves and optimum mixing time, corresponding to the best dough development (Wesley *et al.*, 1998; Psołka *et al.*, 1999; Millar *et al.*, 2000; Alava *et al.*, 2001; Huang, 2001; Olewnik *et al.*, 2004; Kaddour *et al.*, 2007). On the contrary, only few works were carried out to evaluate the ability of NIR spectroscopy to in-line monitor powder agglomeration (Frake *et al.*, 1997; Rantanen and Yliruusi, 1998; Alcalà *et al.*, 2009; Kaddour and Cuq, 2009). Frake *et al.* (1997) demonstrated that NIR spectroscopy could be useful to follow in-line the increase in water content and size of particles during a granulation stage in fluidized bed. Kaddour and Cuq (2009) already demonstrated the high potential of NIR spectroscopy to follow

in-line the wet agglomeration process of cereal-based product, and more particularly wheat-based food powders, with the possibility to describe the agglomeration or breakage mechanisms. This study also reveals the interest of NIR spectroscopy to describe physical and physico-chemical changes occurring during the wetting and mixing stages of the agglomeration process.

The aim of this work is to investigate the ability of NIR spectroscopy to follow in-line the agglomeration process of durum wheat semolina according to two different water supply conditions, and to describe the associated structural changes of agglomerates. A FT-NIR spectrometer is used over the whole NIR wavelength range (1000-2500 nm) with a fiber optic probe directly in contact with the powder. Raw NIR spectra as well as second derivative NIR spectra are directly analyzed. Principal component analysis (PCA) is used to qualitatively describe physical and chemical variations occurring during the wet agglomeration and to identify specific kinetics that could be useful to monitor the process and determine characteristic times.

#### IV.3.2.2. Materials and methods

##### IV.3.2.2.1. Raw material and analytical methods

Durum wheat semolina of industrial quality (Panzani, France) is used for the experiments. Semolina is stored in hermetic containers at 4°C until measurements.

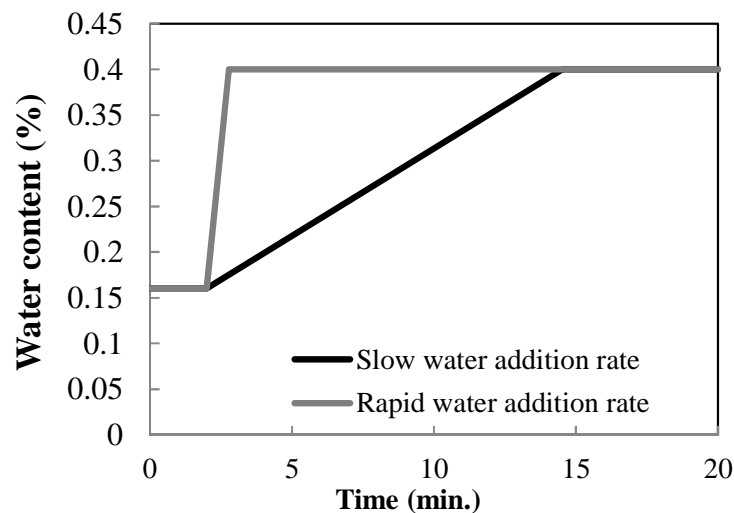
Water content - Water contents of native semolina ( $16.4 \pm 0.1$  g water / 100 g dry semolina) is determined in triplicate by drying at 105°C for 24h according to the AACC official methods (AACC, 2000).

Particle size distribution - Particle size distributions of semolina is measured in triplicate by using laser granulometry (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. Semolina is characterized by volume-equivalent diameters for which the number of particles is inferior to 10 ( $d_{10} = 82 \pm 7 \mu\text{m}$ ), 50 ( $d_{50} = 287 \pm 8 \mu\text{m}$ ) and 90% ( $d_{90} = 530 \pm 12 \mu\text{m}$ ) of the total number of particles. The span is  $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 1.56$ .

True density - The true density of semolina ( $\rho_s^* = 1.478 \pm 0.005 \text{ g.cm}^{-3}$ ) is determined in triplicate using a nitrogen pycnometer (Ultrapycnometer 1000, Quantachrome Instruments).

#### IV.3.2.2.2. Wet agglomeration protocol

Wet agglomerates are prepared by combining durum wheat semolina with water using a SPI10 mixer (VMI, France) equipped with a spiral blade. The bowl and blade mixing speeds are respectively fixed at 9 and 80 rpm and always kept constant during the experiment. A sample of 1.5 kg of semolina is firstly poured in the mixer bowl and mixed for 2 min without water addition in order to homogenize the initial powder and to equilibrate the temperature (at 20°C). Water is then sprayed directly on the powder inside the bowl using a single-fluid nozzle (Spraying Systems Co., France) in order to reach 40% water content at the end of water addition. Two types of water supply conditions are tested depending on the relative time of spraying compared to the total time of mixing (Figure IV.47). For water addition under slow rate conditions (at 24 mL.min<sup>-1</sup>), water is sprayed using nozzle TPU650017 (Spraying Systems Co.) connected to a regular water supply network. The spraying time (8.5 min) is then similar to the total mixing time of the experiment. For water addition under rapid rate conditions (at 383 mL.min<sup>-1</sup>), water spraying is conducted using nozzle TPU6501 (Spraying Systems Co.) connected to a peristaltic pump. The time of spraying is then short (47 sec) compared to the total time of mixing.



**Figure IV.47.** Typical examples of the two conditions for water addition rates (slow and rapid) during the agglomeration process experiments (to reach a final water content of 40%).

After water addition, the wet masses are still mixed and the evolution of the agglomerates properties is studied according to the mixing time during 60 min. For the slow and rapid water supply conditions, the resulting droplet diameters are estimated respectively to 170  $\mu\text{m}$  and 141  $\mu\text{m}$  (Mandato *et al.*, 2012a – Chapter IV.1). By combining the two investigated water flow rates



with the selected mixing speeds, we can indicate that the agglomeration processes are conducted under two different dimensionless spray flux values (respectively equal to 0.2 and 5.2). These values correspond to the intermediate regime of nucleation (*i.e.* spray flux between 0.1 and 10) according to Hapgood *et al.* (2003). However, the slow water flow rate condition induces a spray flux closer to the drop control regime than the spray flux using rapid water flow rate condition, which is then closer to the mechanical dispersion regime.

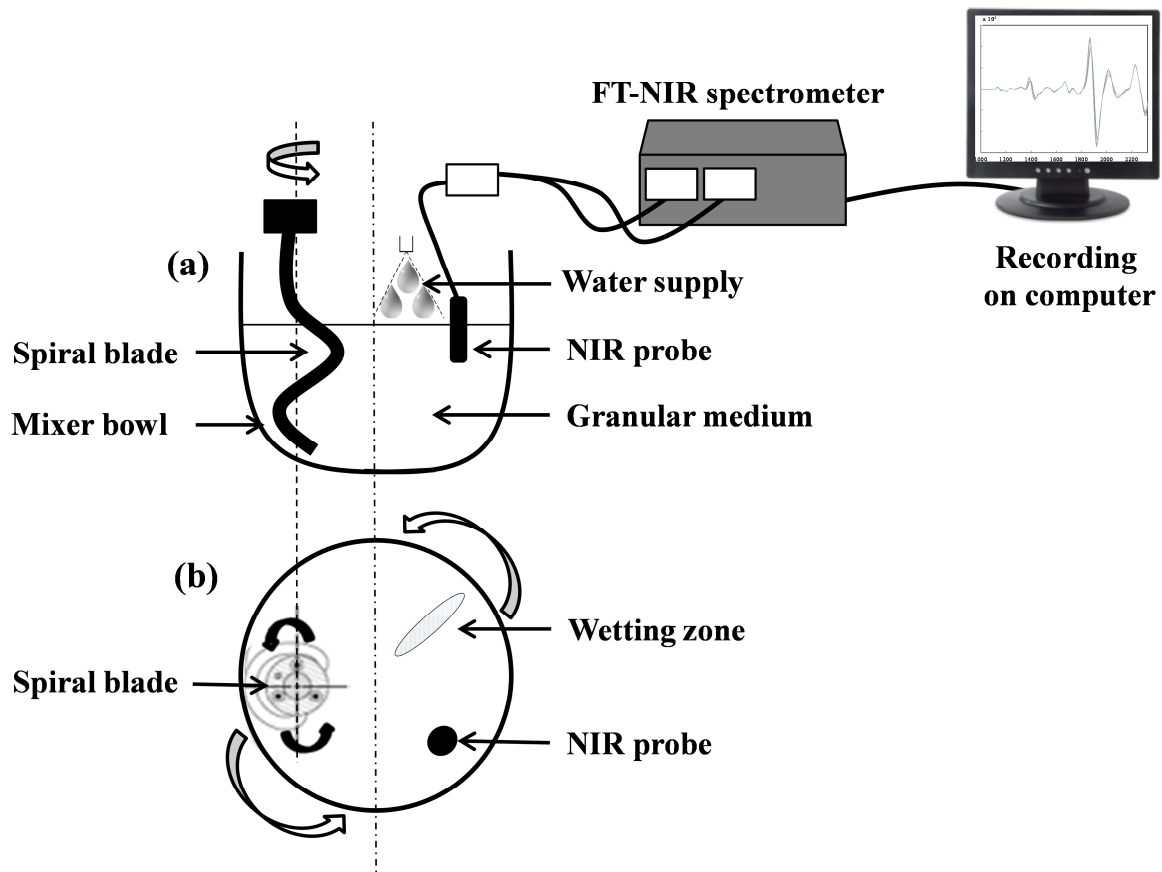
#### **IV.3.2.2.3. Physico-chemical properties of wet agglomerates**

*Size distribution* – The characterization of the size distribution of wet agglomerates is carried out using a sample of 250 g of agglomerates which is collected directly inside the mixer bowl. The sample is immediately transferred on the top of a column of 15 decreasing meshes (9, 8, 6.3, 5.6, 4, 2, 1.25, 0.9, 0.8, 0.71, 0.63, 0.5, 0.4, 0.315, and 0.25 mm). The sieve column is moved for 2 min and the granulometric distribution is obtained by weighing the mass of grains obtained on each sieve. The weight distribution according to size criteria is then expressed as the percent of total weight.

*Water content* – The global water content of the wet agglomerates is determined in triplicate by drying at 105°C for 24 h according to AACC (2000). Water content is also determined specifically for each class of agglomerates according to their diameters, in order to evaluate the distribution of water in agglomerates according to their sizes. The water content of collected samples on each sieve is determined in triplicate according to AACC (2000).

#### **IV.3.2.2.4. On-line measurements by near-infrared spectroscopy**

On-line recording of NIR spectra is carried out during the agglomeration of semolina directly inside the mixer bowl. NIR spectra during agglomeration process are recorded using a Nicolet Antaris FT-NIR Analyser (Thermo Electron Corporation, France) (Figure IV.48). The NIR instrument is connected to a fiber optic probe positioned inside the SPI10 mixer, allowing contact with the product during mixing (Figure IV.48).



**Figure IV.48.** Schematic representation of the experimental set-up used for the in-line monitoring of the wet agglomeration of durum wheat semolina by NIR spectroscopy.

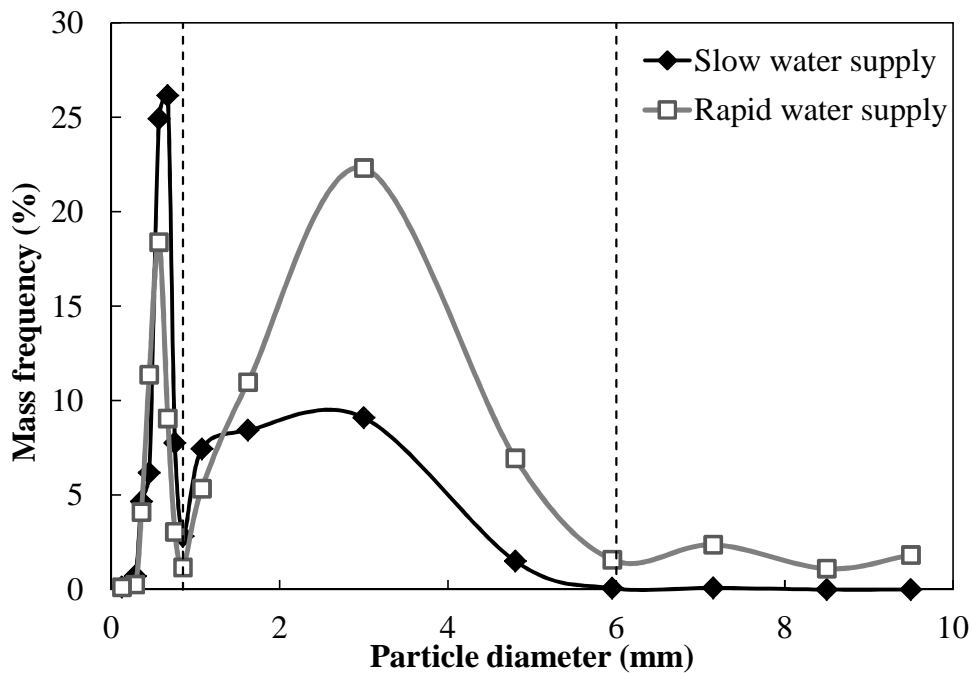
The NIR spectrometer gathers spectra in the range 1000–2500 nm at 2 nm intervals, 12 scans per 6 sec which are averaged to give 1 spectrum each 10 sec, and represented as values of  $\log(1/R)$  as a function of wavelength (nm). The NIR spectra are recorded during mixing and wetting stages, and analyzed using MATLAB 7.0.4 software (The MathWorks, Inc). A second derivative treatment of the raw spectra is performed using the Savitsky–Golay derivative available in the PLS ToolBox (Eigenvector).

The smoothing and derivative parameters, filter width, polynomial order and derivative order are respectively 61, 2, and 2. Chemometric methods are used to extract informations from the recorded spectra during the agglomeration process. Principal component analyses (PCA) are performed using the PLS ToolBox (Eigenvector) both on raw spectra after a mean centering processing, and on spectra after second derivative and mean centering processings.

### IV.3.2.3. Results and discussions

#### IV.3.2.3.1. Size distribution of the wet agglomerates

Agglomeration process of semolina by mixing under two different water spraying conditions is conducted to produce granular materials that are characterized by specific distribution of particles diameters. Typical size distribution curves are presented in Figure IV.49 for the two investigated water supply conditions. The size distributions seem to reveal the existence of three particle populations according to particle diameters: fine fraction (diameters  $< 0.9$  mm), medium fraction ( $0.9 \leq$  diameters  $< 6.3$  mm) and coarse fraction (diameters  $\geq 6.3$  mm). The relative proportions of the three particles populations seem to be affected by the water supply conditions (Figure IV.49).

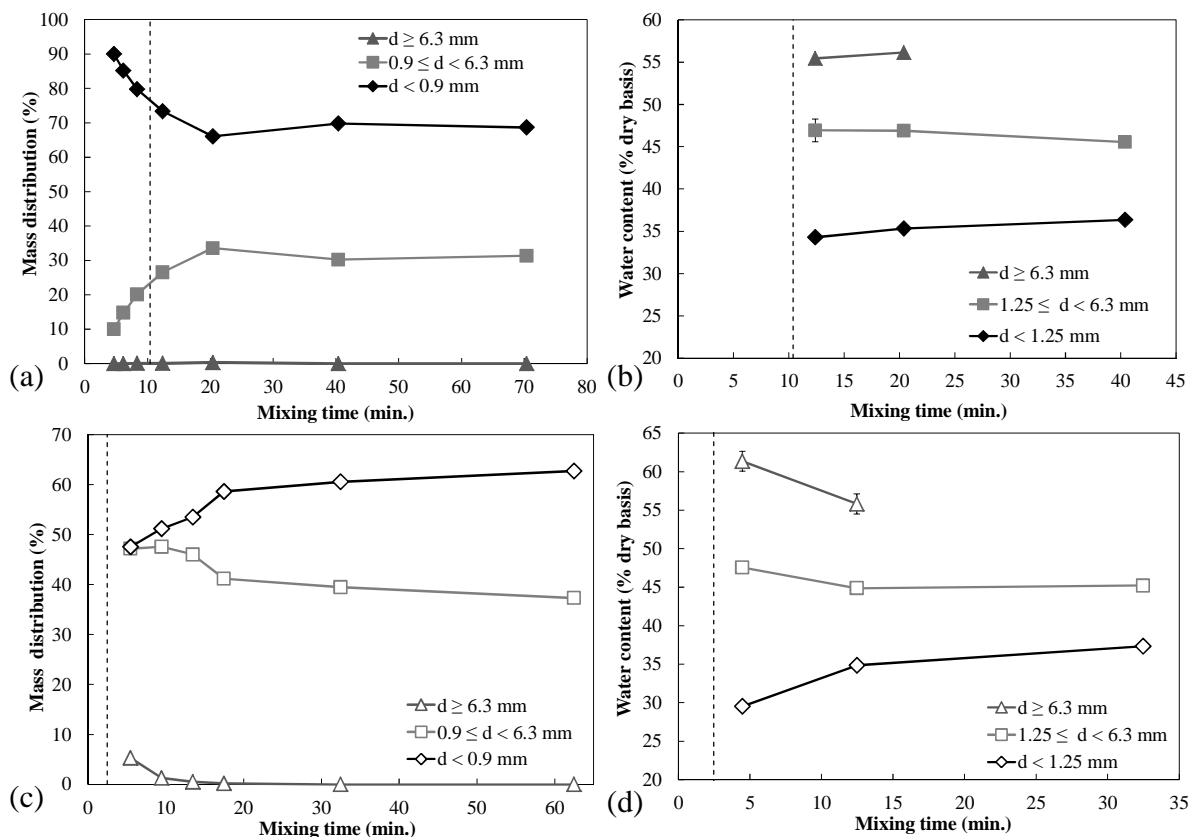


**Figure IV.49.** Mass frequency of agglomerate size fractions for the two conditions of water supply (*i.e.* rapid or slow), when measured respectively at 3 min or 2 min of mixing time after the end of water supply period. The dotted lines represent the diameter transitions between identified size fractions.

The evolution of the relative proportion of the three particle size fractions and of their respective water contents are considered to investigate the contribution of water supply conditions and mixing times on the agglomeration yields (Figures IV.50).

### IV.3.2.3.2. Agglomeration mechanisms during the water supply period

The description of the changes in particle size distribution during the water supply period was possible only under the slow water supply conditions. During the water supply period under **slow** water supply conditions (*i.e.* between 2 and 10.5 min mixing), we observe a decrease in the content of the fine particle fraction (from 90% to 73%), which occurs simultaneously with an increase in the content of the medium fraction (from 10 to 27%) (Figure IV.50a).



**Figure IV.50.** Changes in the relative mass content and water content distribution of the three particle populations (fine, medium, and coarse), respectively under slow (a-b) or rapid (c-d) water supply conditions, as a function of the mixing time during the agglomeration process. The vertical dotted lines represent the end of the water supply period.

In these conditions, only a low content of coarse agglomerates (0.1%) is obtained. These changes typify the agglomeration mechanisms of native semolina particle during the water supply period under slow water supply and mechanical mixing. As expected, adding water under mechanical mixing induces the formation of granular structures of larger diameters, as already observed and discussed by Saad *et al.* (2011). The agglomeration mechanisms are also described according to the water contents of the three particles populations (Figure IV.50b). Immediately after the water

supply period, we observe very large differences in water contents between the three particle populations. The water content seems to be proportional to the particle size: 34.3% for the fine fraction, 46.9% for the medium fraction, and 55.5% for the coarse fraction. This observation has already been carried out by Saad *et al.* (2011) for agglomeration experiments carried out on durum wheat semolina in almost the same water addition and mechanical energy input conditions. The size and water content of agglomerates obtained under **rapid** water supply conditions are not described immediately after the water supply period. Actually, due to the high water addition during a short period, it is not possible to collect homogeneous samples of agglomerates. The description of wet agglomerates is only conducted after 3 min of mixing after the end of the water supply period. The relative proportions of the three particle populations then indicate the presence of almost similar amounts of fine (47%) and medium (47%) fractions, and also the formation of significant amounts of coarse agglomerates (5%) (Figure IV.50c). The water content seems also to be proportional to the particle size: 29.5% for the fine fraction, 47.6% for the medium fraction, and 61.4% for the coarse fraction. Actually, the coarse fraction is particularly visible for the rapid water supply condition and corresponds to highly hydrated particles which water content is above 55% (Figure IV.50c-d), and thus, above the agglomerate-dough water transition of semolina. The rapid water supply condition certainly induces local zones of over-wetted particles as the dimensionless spray flux is closed to the mechanical distribution regime of nucleation.

We thus note significant effects of the water supply conditions (*i.e.* slow vs. rapid) on the agglomeration mechanisms that conduct to produce agglomerated powder with different size and water content distributions.

#### IV.3.2.3.3. Agglomeration mechanisms during the final mixing period

The description of the agglomeration mechanisms has also been conducted during the final mixing period (*i.e.* after the water supply period) for the two different water supply conditions, based on changes in mass proportions and water content of the three size populations (Figure IV.50).

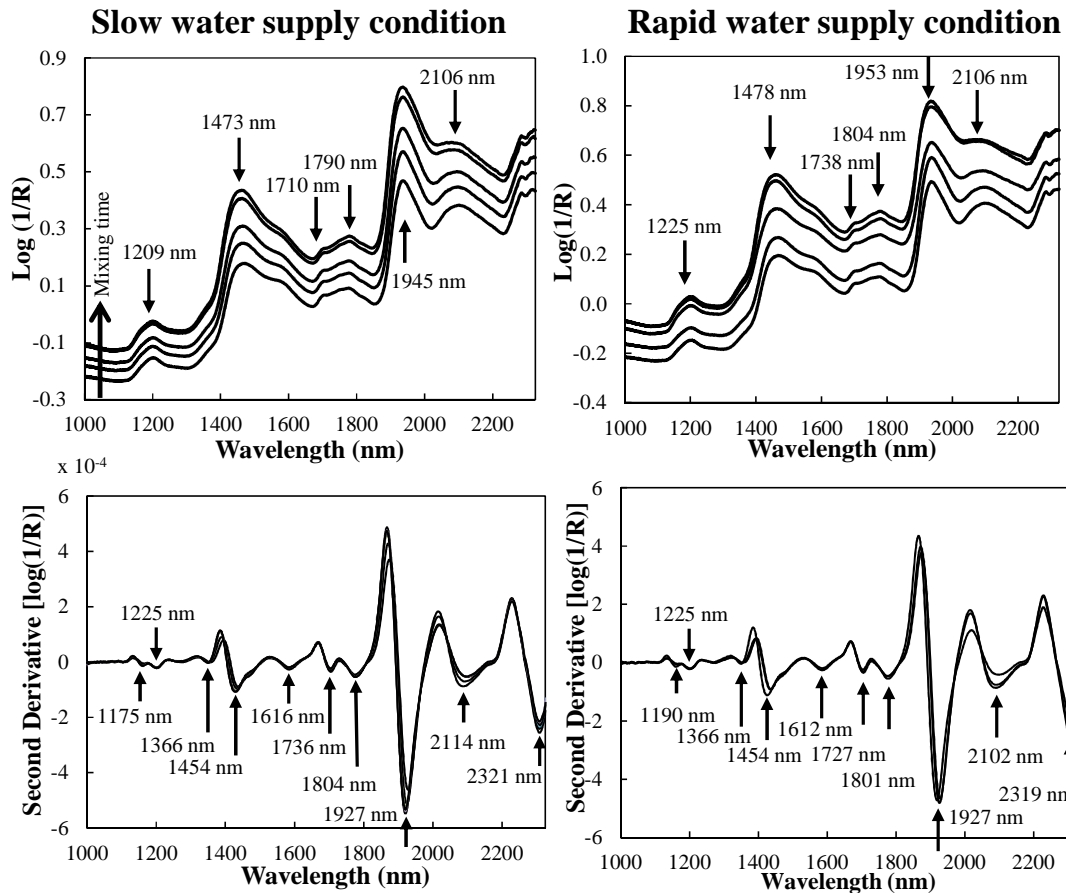
For the **slow** water supply condition, we observe simultaneous changes in the proportion of the fine and medium particle fractions. The proportion of the fine particle fraction first decreases to reach a minimum value (66%) after 20 min mixing and then slightly increases to reach a constant value of about 69% (Figure IV.50a). Simultaneously, the proportion of the medium particle

fraction first increases to reach a maximum value of 34% after 20 min mixing, and then slightly decreases to reach a constant value of about 31.3%. Two successive mechanisms seem thus to occur during the mixing period after the water supply stage. Immediately after hydration, structuring mechanisms are still occurring inside the mixer, through the efficient collisions between the sticky particles that generate large particles. For longer mixing time, we observe opposite trends, certainly due to collisions and breakage mechanisms of agglomerates, induced by the mechanical energy input of the mixer. On the other hand, we only observe very slight changes in the water content of the three particle populations during the final mixing period (Figure IV.50b). The water content distribution per size fractions does not significantly vary during the 30 min of the final mixing stage, and the water remains not evenly distributed over the three size fractions. The input mechanical energy and the time during the mixing period are thus not able to induce water exchanges between the different classes of particles. However, it has been observed a slight decrease of global water content (at the powder bed scale) from  $41 \pm 0.6\%$  to  $39.7 \pm 0.2\%$  during the 60 min of final mixing period, certainly due to slight water evaporation.

After the **rapid** water supply, we observe significant changes in the proportion of the particle fractions (Figure IV.50c) that can be analyzed in two periods. Until 15 min mixing, we first observe large changes in the proportion of the particle fractions, with increase in the fine fraction (from 47 to 58.6%) and decrease in the medium (from 47 to 41.2%) and coarse (from 5 to 0.5%) fractions. In addition, we observe a slight water homogenization during this period (from 5 to 12 min mixing), with increases in water content for the fine population (from 29.5 to 34.9%), and decrease in water content for the medium (from 50.3 to 44.9%) and coarse (from 61.4 to 55.8%) fractions (Figure IV.50d). Finally, during this period, a certain fraction of the medium and coarse particles are certainly broken by the mechanical energy input and gives highly hydrated particles of lower diameters which could contribute to the slight water content increase of the fine fraction. From 20 to 60 min mixing, we then observe similar changes but lower extend in the variation of the proportion of the particle fractions (*i.e.* slight increase in the fine fraction and slight decrease in the medium fraction). No significant changes of water distribution are observed during this period (Figure IV.50c). The residual agglomerates that have been generated after 20 min mixing time, thus become not sensible to the broken mechanisms and remain in the powder bed.

#### IV.3.2.3.4. Analysis of NIR spectra during wet agglomeration

NIR spectra are recorded over the 1000-2500 nm wavelength range during the successive phases of the wet agglomeration process of durum wheat semolina. The NIR spectra analyses are restricted to the 1000-2325 nm range due to noisy spectra between 2325 and 2500 nm.



**Figure IV.51.** Typical NIR raw spectra (*top*) and spectra after second derivative (*down*) during wet agglomeration of durum wheat semolina according to the two conditions of water supply.

*Raw spectra description* - Figure IV.51(*top*) presents typical raw NIR spectra recorded during the wet agglomeration process. Almost similar raw NIR spectra, except an apparent vertical shift of the baseline, are collected whatever the considered period of the mixing process and whatever the considered water supply conditions. The increase of the baseline from one spectrum to another one corresponds to a modification in the scattering properties of the semolina during the wet agglomeration mainly due to a change in the physical properties of agglomerates (Williams and Thompson, 1978; Norris and Williams, 1984; Manley *et al.*, 1994; Osborne, 2000; Alacalà *et al.*, 2009; Kaddour and Cuq, 2009). An increase in particle size can lead to a decrease in the

reflectance and thus to an increase in the absorbance,  $\log(1/R)$ . Light scattering diminishes and the light penetrates deeper into the solid material with larger particle size and therefore the absorbance increases. Moreover, the baseline is not horizontal which can be explained by physical changes of the granular material.

The fine description of the raw NIR spectra allow to identify specific wavelengths associated with two broad (at 1473-1478 and 1945-1953 nm) and four small (at 1209-1225, 1710-1738, 1790-1804, and 2106 nm) absorption peaks. According to Kaddour and Cuq (2009), those peaks can be associated to the O-H vibrations (1475, 1950, 2106) and C-H vibrations (1215, 1720, and 1800). The raw NIR spectra obtained during the wet agglomeration process of durum wheat semolina are very similar to those previously obtained by Kaddour and Cuq (2009) during wet agglomeration process of common wheat flour under low water content conditions. Due to the baseline change and the broad absorption peaks, it is difficult to directly extract useful information from raw NIR spectra.

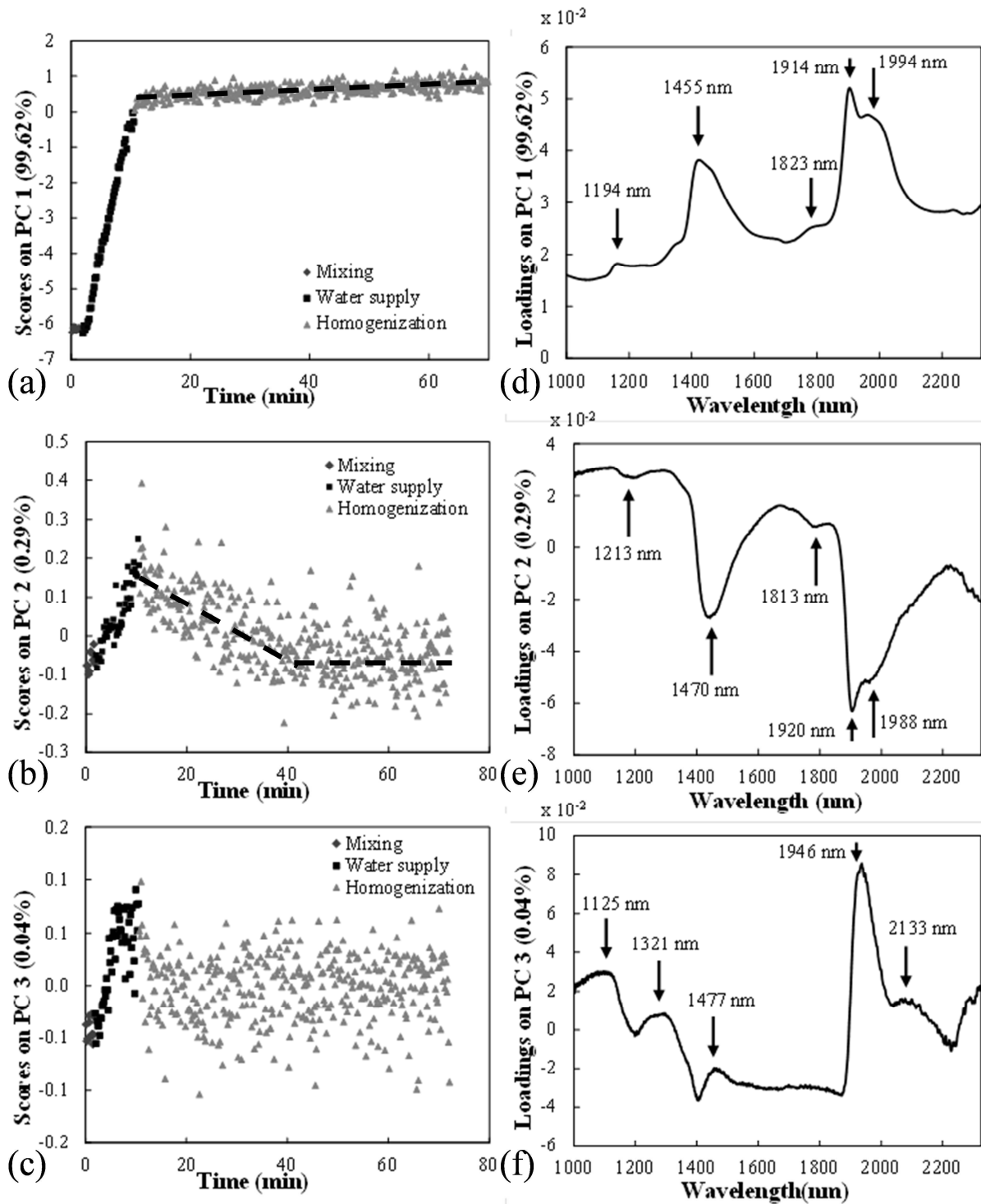
Description of NIR spectra after second derivative - Figure IV.51(down) presents typical NIR spectra after second derivative, obtained during the wet agglomeration of durum wheat semolina. The second derivative treatment is used to minimize the baseline shift between spectra. As the peak resolution is increased and overlapping absorbances are separated, the peak identification becomes easier. Numerous absorption features are detected at specific wavelengths respectively during the agglomeration process, whatever the water supply condition at 1175-1190, 1225, 1366, 1454, 1612-1616, 1727-1736, 1801-1804, 1927, 2102-2114, and 2319-2321 nm. Those peaks are more likely associated to chemical changes of the agglomerates components as the main physical variation is removed thanks to the second derivative treatment. The agglomeration of semolina with water is supposed to induce chemical changes during the water supply phase and final mixing phase of the agglomeration cycle, and more particularly associated to C-H vibration of the C-H<sub>3</sub> group (1180, 1225, 1730, and 1802 nm), to the starch vibrations (first overtone of O-H intermolecular vibration at 1614 nm, and the combination of the 2 x O-H deformation and 2 x C-O stretching at 2110 nm), and to the C=O stretching second overtone of the CONH group (1927 nm) (Osborne and Fearn, 1986; Kaddour and Cuq, 2009). The peaks centered at 1454, 1927 and 2110 nm present a marked evolution in their relative absorption during wet agglomeration of durum wheat semolina (Figure IV.51down).



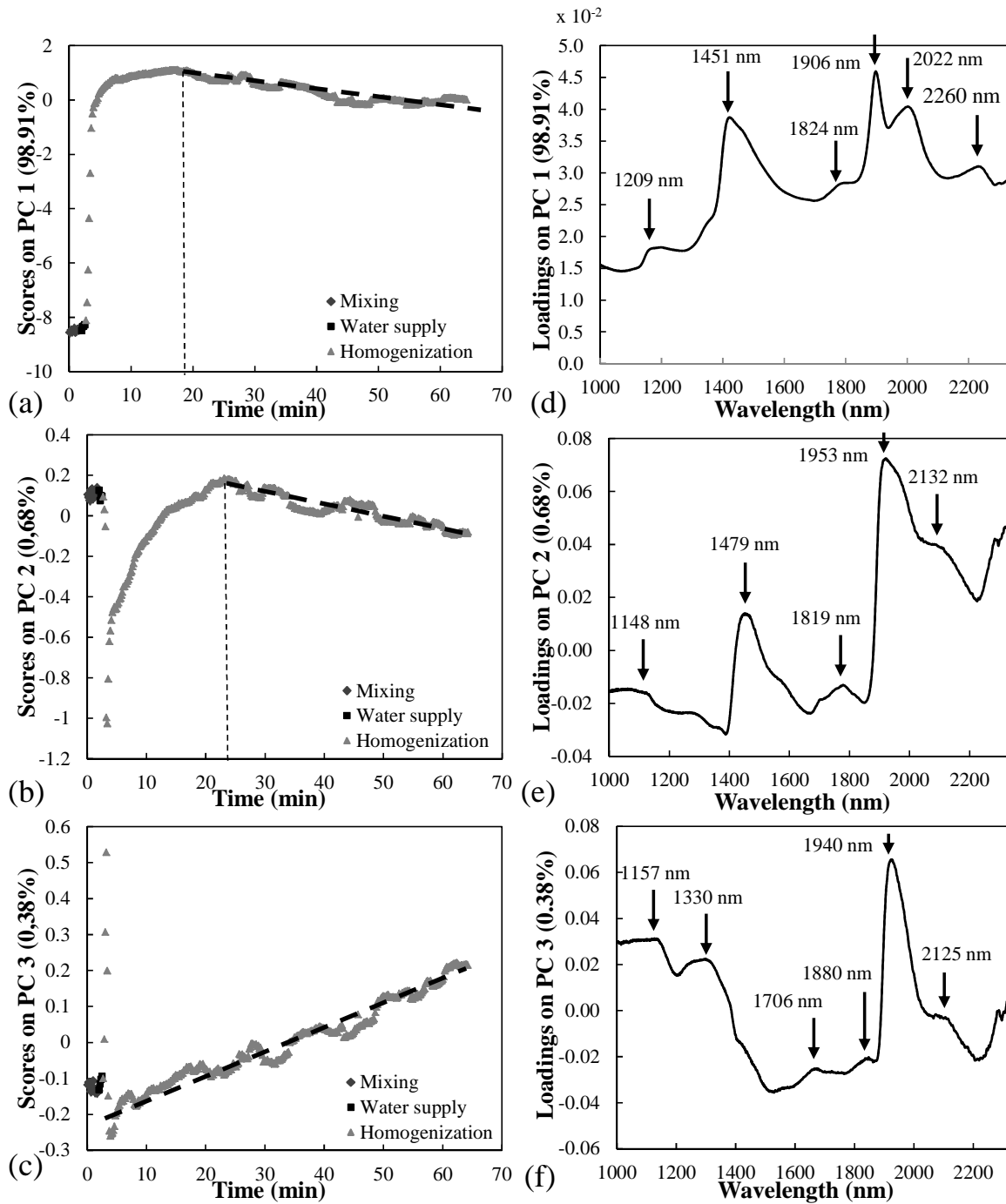
Principal component analysis (PCA) of the raw NIR spectra - PCA is used to analyse the changes in the raw NIR spectra recorded during the wet agglomeration process of durum wheat semolina. PCA is specifically applied to extract useful information from raw NIR spectra by reducing the number of variables and describing the registered spectral variations. Principal component scores ( $PC_1$  to  $PC_3$ ) are represented as a function of mixing time in Figure IV.52a-c and Figure IV.53a-c respectively for the slow and rapid water supply conditions. The first 3 principal components describe more than 99.9% of the cumulative variance, whatever the water supply conditions. For both water supply conditions, the scores of  $PC_1$ ,  $PC_2$ , and  $PC_3$  stay rather almost constant during the first step of native semolina mixing (*i.e.* before water addition), which seems logical as no physical or chemical changes are expected to occur during this phase.

When considering the **slow** water supply conditions, the  $PC_1$  captures more than 99% of total variance. Changes in the  $PC_1$  scores with mixing time present a strong linear increase during the water supply period, followed by a small linear increase during the final mixing stage (Figure IV.52a). Variations of  $PC_1$  could be associated to size variations of the medium fraction of particles (Figure IV.50a) with a strong increase of their mass percentage during the water supply period and a slight increase during the final mixing stage. The  $PC_2$  captures 0.29% of total variance with a slightly noisy distribution of the scores. The  $PC_2$  increases during the water supply period and thus can be associated to a linear increase in powder water content. During the final mixing period,  $PC_2$  decreases until it reaches a plateau value, which can also be associated to global water content variations. Moreover,  $PC_2$  variations could be linked to chemical changes of semolina components due to water addition and weak mechanical energy input. The  $PC_3$  describes only 0.04% of total variance and display almost similar trend to the one of  $PC_2$ .

When considering the **rapid** water supply conditions, we observe no variations of  $PC_1$ ,  $PC_2$  and  $PC_3$  scores during the initial mixing period and during the water supply period. Although physical and chemical variations are supposed to occur as soon as water is added, these changes may be localized in the wetting region during the short time of water addition (less than 1 min). It seems that the changes induced by the water addition during the water supply period are only detected by the NIR probe at the beginning of the next mixing period. The  $PC_1$  captures more than 98% of total variance.



**Figure IV.52.** Changes in NIR principal component scores PC<sub>1</sub>, PC<sub>2</sub>, and PC<sub>3</sub> (a, b, and c) as a function of mixing time and the respective spectra loadings (d, e, and f) calculated on raw spectra between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration according to slow water supply condition. Arrows identified the most important peaks.



**Figure IV.53.** Changes in NIR principal component scores PC<sub>1</sub>, PC<sub>2</sub>, and PC<sub>3</sub> (a, b, and c) as a function of mixing time and the respective spectra loadings (d, e, and f) calculated on raw spectra between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration according to the rapid water supply condition. Arrows identified the most important peaks. Dotted lines show general tendencies.

The changes in the PC<sub>1</sub> scores with mixing time show a marked increase at the beginning of the final mixing period until reaching a maximum value after 17.5 min of mixing, after which it decreases (Figure IV.53a). The time at which the maximum is reached is very close to the total mixing time (18 min) at which a marked slope change of the mass fraction of the medium population has been observed (Figure IV.50c). The PC<sub>2</sub> captures 0.68% of total variance. The PC<sub>2</sub> first decreases at the beginning of final mixing period, and then increases until it reaches a maximum after 23 min of mixing, after which it decreases again. The PC<sub>3</sub> describes only 0.38% of total variance. During the first minutes of final mixing period, changes of PC<sub>3</sub> are marked by a sudden decrease and then, a linear increase of the scores. At the beginning of the final mixing stage, the scores variations of PC<sub>2</sub> and PC<sub>3</sub> could be associated to the local patches of over-wetted particles associated to the coarse population (Figure IV.50c).

The loading spectra associated to the 3 PC scores are shown in Figure IV.52d-f and Figure IV.53d-f respectively for the slow and rapid water supply conditions. The loading spectra associated to PC<sub>1</sub> display a similar shape than the raw NIR spectra recorded during mixing whatever the water supply method, with three broad peaks (at 1455-1451, 1906-1914, and 1994-2022 nm) and two small peaks (at 1194-1209 and 1824 nm). A specific small peak is visible at 2260 nm for the rapid water supply conditions. As explained in Kaddour and Cuq (2009), the loading spectrum associated with the PC<sub>1</sub> could be associated to the particles movement relative to the probe position and to changes in scattering properties due to changes in particle size implied in the baseline variations. Alacalà *et al.* (2009) also showed that the PC<sub>1</sub> on raw NIR spectra correspond to scattering effects and is associated to particle size variations. Generally, the information related to chemical variations is found in the principal components of higher order (Robert *et al.*, 1996). The loading spectra associated to PC<sub>2</sub> present a non-horizontal baseline for both water supply conditions. Under slow water supply conditions, the loading spectrum related to PC<sub>2</sub> is in an inversed position. The non-horizontal baseline of the two loading spectra associated to PC<sub>2</sub> could describe a part of the physical modification occurring during agglomeration (*i.e.* particle size variations). For both water supply condition, loading spectra of PC<sub>2</sub> present three broad peaks (at 1470-1479, 1920-1953, and 1988-2132 nm) and two small peaks (at 1148-1213 and 1813-1819 nm). The band centered at 1470-1479 nm could be associated to the O-H stretching first overtone of water (1450 nm) and to the N-H stretching first overtone of CONH<sub>2</sub> (1460 nm) (Osborne and Fearn, 1986). The peaks located at 1920-1953 nm and 1813-1819 nm could be associated to the combination of O-H stretching and O-H deformation of the water molecules (Osborne and Fearn, 1986; Roger *et al.*, 2003). Thus, te

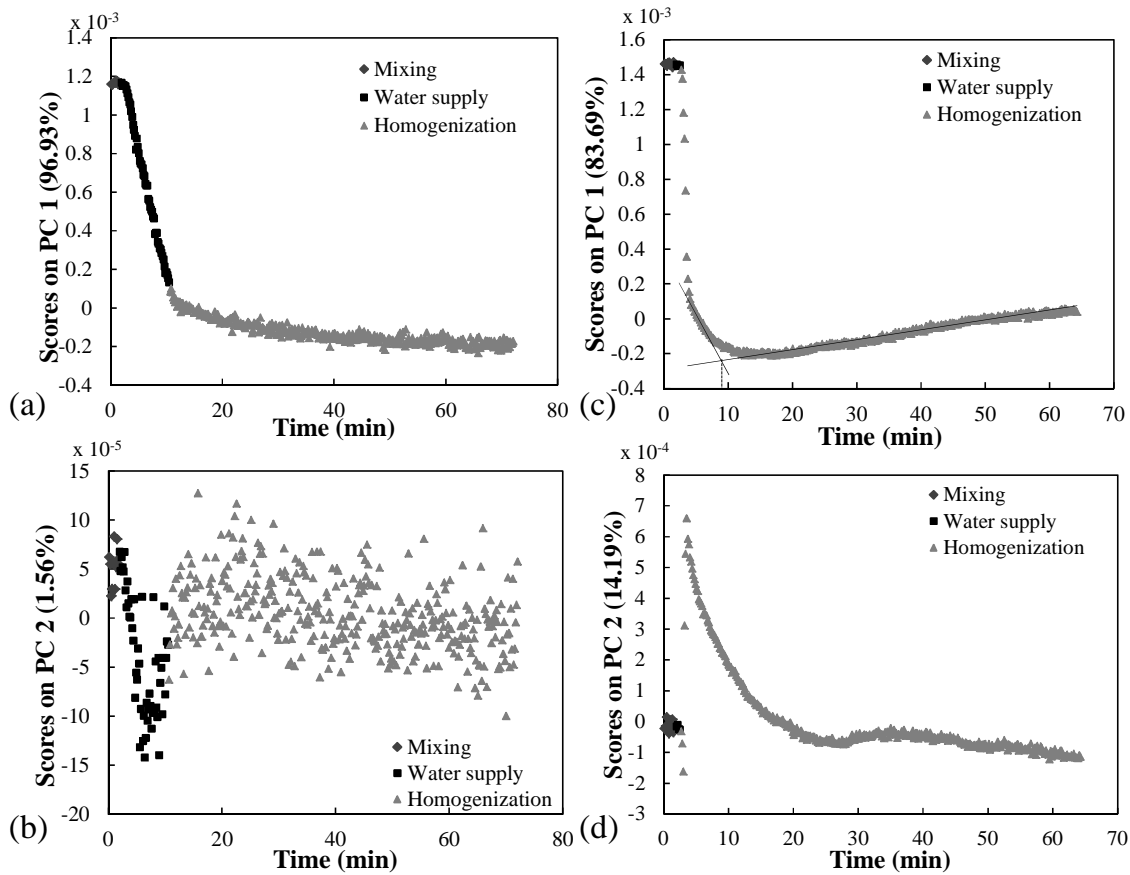
loading spectra associated to PC<sub>2</sub> could describe the hydration of the starch and proteins. The loading spectra of PC<sub>3</sub> present different absorption bands with a peak centered at 1477 nm which is specific of the slow water supply conditions. On the contrary, two peaks are identified at 1706 and 1880 nm in the loading spectrum specifically for the rapid water supply conditions.

It can be noted that the score and loading plots of the three repetitions (not shown) are very similar to those presented in Figure IV.52-53 for both water supply conditions. Thus, the observation of score and loading plots allows to check whether the agglomeration is processing under normal operating conditions. Moreover, score plots of both water supply conditions are very different from each other, so that it is possible to distinguish the specific agglomeration mechanisms that are induced by the two water supply conditions by using NIR spectroscopy.

*Principal component analysis of the second derivative NIR spectra* - Changes in principal components values (PC<sub>1</sub> and PC<sub>2</sub>) from second derivative NIR spectra are plotted as a function of mixing time for both water supply conditions (Figure IV.54a-d). For slow and rapid water supply conditions, the total variances explained by the first three scores are respectively of 99.2% and 98.8%. The PC<sub>1</sub> and PC<sub>2</sub> are associated to 96.9 / 83.7% and 1.6 / 14.2% of total variance respectively for the slow and rapid water supply conditions. The PC<sub>3</sub> scores (not shown) are very noisy.

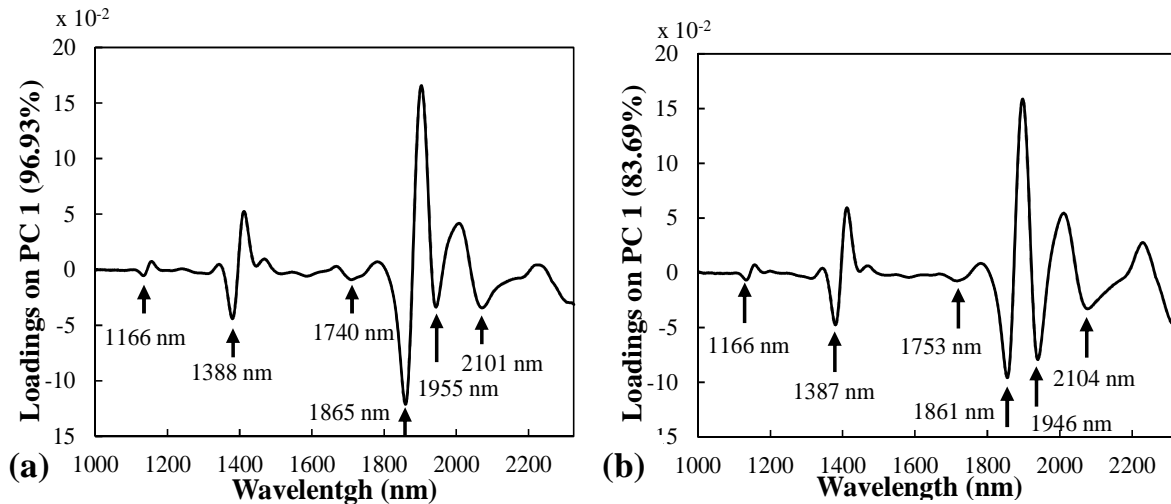
When considering the **slow** water supply condition, no variation of PC<sub>1</sub> on second derivative spectra is observed during the initial mixing period before water addition, as already observed on raw NIR spectra. The PC<sub>1</sub> scores show a high linear decrease during the water supply period (Figure IV.54a). A slope variation is observed with a small decrease of PC<sub>1</sub> during the final mixing period, until it almost reaches a plateau value. The PC<sub>2</sub> is very noisy excepted during the water supply period, when a decrease of PC<sub>2</sub> can be observed (Figure IV.54b).

When considering the **rapid** water supply condition, no variation of PC<sub>1</sub> and PC<sub>2</sub> are observed during the initial mixing period and during the water supply period. PC<sub>1</sub> first decreases strongly with time at the beginning of the final mixing period until it reaches a minimum value at 17 min mixing, and then, starts to increase. The intersection point of the two tangents give a value of characteristic time close to 9 min, which could correspond to the mixing time necessary to achieve water distribution homogenization (~12 min), previously determined from the Figure IV.50d. PC<sub>2</sub> first markedly increases during first minutes of the mixing period until it reaches a maximum value at 7 min, and then a first rapid decrease is observed followed by a slower one.



**Figure IV.54.** Changes in NIR principal component scores  $PC_1$  and  $PC_2$  as a function of mixing time calculated on spectra after second derivative treatment, between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration. (a, b) Slow water addition condition (c, d) Rapid water addition condition. Dotted lines show general tendencies.

For both water supply conditions, the loading spectra associated to  $PC_1$  present a similar shape than the second derivative NIR spectra recorded during agglomeration but in an inversed position (Figure IV.55). According to Kaddour and Cuq (2009), the pseudo-sinusoidal shape of the loading spectra associated to  $PC_1$  probably corresponds to a horizontal translation of the spectrum bands during wet agglomeration (Kaddour *et al.*, 2007). The maximum absorbance of the bands initially located at 1454 and 1927 nm on second derivative NIR spectra shift to lower wavelengths during mixing. Different bands are identified on the loading spectra associated to  $PC_1$ : 1166, 1387, 1740-1753, 1861-1865, 1946-1955, and 2101-2104 nm (Figure IV.55). These bands could be associated to C-H vibrations (1166 nm, 1388 nm, 1750 nm) (Law and Tkachuk, 1997; Kaddour and Cuq, 2009). No explanation related to the absorption peaks centered at 1863 nm is found in the literature. The peaks at 1950 nm could be associated to bending and stretching vibrations of water (Bertrand, 2002).



**Figure IV.55.** Changes in NIR spectra loadings calculated on raw spectra between 1000 and 2325 nm during semolina wet agglomeration according to the (a) Slow water addition rate condition (b) Rapid water addition rate condition. Arrows identified the most important peaks.

The loading spectra associated to PC<sub>1</sub> could principally be associated to changes in the gluten, starch and water vibrations occurring during mixing (*i.e.* hydration mechanisms of semolina components). The 1375-1525 nm region of the NIR spectra is associated to the OH first overtone, and could describe the changes in H-bonds between the wheat components and the water molecules (Kaddour and Cuq, 2009). The bands of the loading spectra associated to PC<sub>2</sub> for both slow and rapid water supply conditions (not shown) are respectively: 1184-1191, 1409-1413, 1691-1704, 1877-1885, 2033-2047, and 2238-2242 nm. Kaddour and Cuq (2009) showed that the loading spectra associated to PC<sub>2</sub> describe the modification of the protein structure in presence of water and weak mechanical energy in the case of wheat flour agglomeration. During the final mixing stage, for the rapid water supply condition, the first rapid and then slow decrease of PC<sub>2</sub> scores could correspond to modification of the protein structure associated to two modification rates (Figure IV.54d). The loading spectra associated to PC<sub>3</sub> are not analyzed due to noisy scores of PC<sub>3</sub>. This suggests that only two principal components are needed to analyze the wet agglomeration of durum wheat semolina using the second derivative treatment.

#### IV.3.2.4. Conclusions

This experimental study demonstrates the possibility to follow in-line the wet agglomeration of durum wheat semolina with water using NIR spectroscopy. More particularly, analyses of spectral variations can be useful to discriminate two different processes under two different

water supply conditions (*i.e.* rapid vs slow supply), which are associated to two different kinetic evolutions of agglomeration mechanisms inducing specific changes in size distribution and water content per size fraction. For both water supply conditions, kinetics variations of principal components (after PCA on raw and second derivative NIR spectra) are observed. NIR spectroscopy can thus be a pertinent tool to check that the on-going agglomeration process is properly done. Different characteristic times have been identified on PC scores and an attempt to link these times to changes of agglomerates physical and chemical properties have been done, mainly based on the analysis of associated loading spectra. However, additional experiments at different final water contents should be carried out to validate the proposed correlation between NIR characteristic times and out-lines measurement (size and water distributions) kinetics.



# **Chapitre V. Discussion générale**

---



Les principaux résultats de ce travail de recherche sont essentiellement de nature expérimentale. Ils reposent sur une tentative d'amélioration de l'instrumentation de l'opération d'agglomération de poudres réactives par voie humide et sur l'analyse des phénomènes d'écoulement d'un lit de grains sous l'effet d'une pale, afin d'apporter des éléments de réponse pour la maîtrise du procédé d'agglomération en mélangeur à faible taux de cisaillement. Ces résultats apportent plus spécifiquement une contribution *(i)* à la compréhension des phénomènes impliqués et *(ii)* au suivi et à la maîtrise de la conduite du procédé. Une démarche de type génie des procédés (couplée produit/procédé) a été mise en place afin d'étudier le rôle des grandeurs caractéristiques des équipements de malaxage dans les mécanismes d'agglomération. Cette étude a été réalisée dans le cas particulier des poudres alimentaires, et plus spécifiquement de la fabrication de la graine de couscous à partir de semoule de blé dur.

Notre étude a permis de mettre en place des outils et des méthodes pour décrire les aspects « mécaniques » et les écoulements, impliqués dans le procédé d'agglomération en voie humide.

- L'approche découplée des actions qui concourent à l'agglomération (mouillage et malaxage) s'est appuyée sur l'étude des apports d'eau d'une part et sur l'étude de la distribution des contraintes mécaniques et des typologies de mouvements de particules dans un lit granulaire sous sollicitation mécanique d'autre part. L'étude des apports hydriques a permis d'accéder à un meilleur contrôle des paramètres opératoires liés à l'apport d'eau, notamment par l'établissement d'un modèle par analyse dimensionnelle permettant de relier la taille des gouttes formées aux paramètres de formulation et du procédé de l'atomisation liquide. L'étude « mécanique » a conduit à proposer une approche locale de la répartition des contraintes verticales d'un milieu granulaire sec ou humide dans un malaxeur modèle, à l'état statique et sous sollicitation dynamique. Ces éléments permettent une description fine des typologies d'écoulement de particules selon les conditions de sollicitations mécaniques.

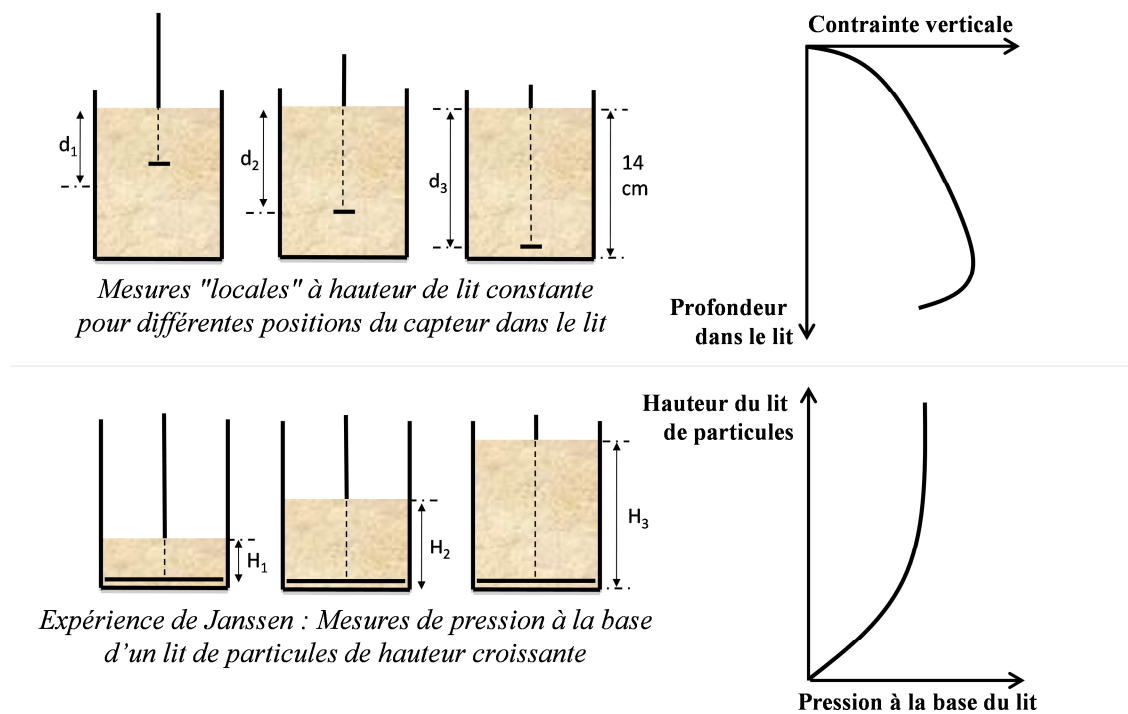
- L'approche couplée de l'étude du procédé d'agglomération humide a ensuite été conduite à deux niveaux. L'évaluation de la consommation énergétique du procédé d'agglomération, pour différents niveaux d'hydratation de la semoule de blé dur, a démontré la relative faible proportion d'énergie « efficace » réellement consommée pour agglomérer. Le suivi cinétique des variations des paramètres physico-chimiques des agglomérats est réalisé à partir de l'analyse de spectres d'absorption dans le proche infra-rouge, acquis en ligne et in situ au cours du procédé d'agglomération humide.

Concernant le premier axe d'étude de la thèse (Chapitre IV.1), nous avons montré qu'une approche de type analyse dimensionnelle est pertinente pour proposer une modélisation mathématique reliant les paramètres de formulation (*i.e.* caractéristiques physico-chimiques du liquide) et les paramètres du procédé d'atomisation (*i.e.* débits et pressions) à la taille des gouttes formées. Ce paramètre est important car il entre dans la constitution du flux de pulvérisation adimensionné, qui est la grandeur adimensionnelle de référence introduite par Litster *et al.* (2001) pour caractériser les régimes de nucléation. D'autre part, afin d'accéder à une meilleure maîtrise des conditions d'apport d'eau sur les mécanismes de mouillage et de nucléation du procédé d'agglomération humide, il semblerait justifié d'investiguer plus en avant d'autres paramètres de contrôle du procédé d'atomisation (*e.g.* angle de pulvérisation, vitesse des gouttes, dispersion de taille des gouttes dans le jet pulvérisé). En effet, l'angle de pulvérisation contrôle la surface de poudre mouillée, qui est l'un des autres paramètres pris en considération dans la définition du flux de pulvérisation adimensionné. De même, la vitesse des gouttes au moment de leur impact sur le lit de poudre est un paramètre de contrôle de l'étape de mouillage-nucléation, car elle influence la structure des nuclei formés (*e.g.* Agland et Iveson, 1999; Emady *et al.*, 2011). Ces deux variables (vitesse des gouttes et angle de pulvérisation) peuvent être mesurées par des techniques optiques (*e.g.* analyse PIV, ombroscopie, *etc.*). L'angle de pulvérisation peut aussi être mesuré par pulvérisation d'un jet de liquide coloré sur une feuille blanche puis par mesure de la zone mouillée (Jimenez, 2007). La dispersion de taille des gouttes au sein du jet pulvérisé (selon la position horizontale pour une distance fixe du nez de la buse) est un paramètre encore peu étudié mais qui pourrait être pris en considération lors de l'agglomération. Il serait par exemple intéressant de déterminer l'impact de la distribution de taille des gouttes et de leur répartition dans le jet sur la distribution de taille des nuclei formés.

Le deuxième axe d'étude de la thèse (Chapitre IV.2) a consisté en la description qualitative et quantitative des écoulements granulaires et des distributions de contraintes dans un lit de particules. Notre démarche a montré la nécessité de caractériser d'abord l'état statique du lit de particules avant même de tenter de décrire son comportement dynamique sous l'action d'une sollicitation mécanique générant un faible taux de cisaillement.

Par l'étude de la statique d'un lit de semoule semi-confiné, nous avons mis en évidence l'existence de longueurs caractéristiques, qui résultent en partie des propriétés frictionnelles des particules, capables de transmettre les contraintes sur des distances de l'ordre de grandeur de la taille caractéristique d'une voûte. Les longueurs identifiées en statique (longueur de percolation latérale du réseau de forces, longueur d'influence des parois latérales et du fond) se sont révélées

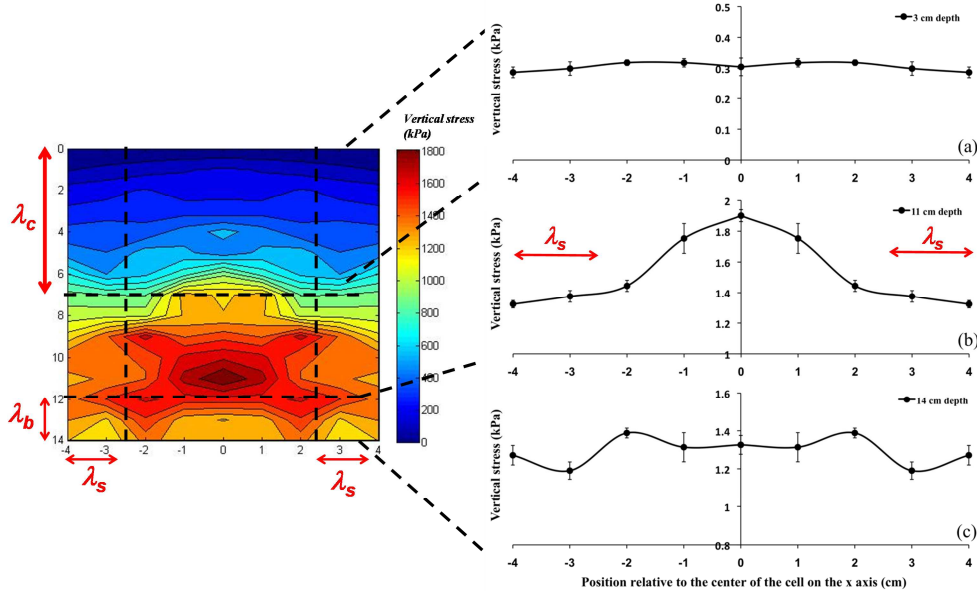
importantes dans la caractérisation des phénomènes d'écoulement sous sollicitation mécanique. Alors que l'expérience de Janssen consiste à mesurer la pression à la base d'une colonne de grains de hauteur croissante et à assimiler la pression mesurée pour chaque hauteur de grains à la contrainte verticale qu'aurait le milieu granulaire à la profondeur correspondante, l'expérience développée dans ce manuscrit permet d'accéder directement (par la mesure) à la répartition de la contrainte verticale dans tout le lit de grains (Fig.V.1). Les mesures locales de contrainte verticale ont clairement mis en évidence l'influence des parois dans le phénomène de redistribution latérale de la contrainte verticale. Pour la première fois, une cartographie 2D des iso-contraintes (Fig.V.2) est proposée et permet de remettre en cause une des hypothèses du modèle de Janssen (*i.e.* uniformité latérale de la contrainte verticale). Notre étude soulève aussi la question de l'influence du protocole de versement des particules sur l'état de contrainte statique du lit.



**Figure V.1.** Schématisation de l'expérience de mesures de la contrainte verticale à une échelle locale dans le lit de grains mise au point dans ce manuscrit (et de la courbe-type obtenue) (haut) et de l'expérience traditionnelle de Janssen (bas).

En dynamique, notre travail a consisté à décrire en deux dimensions le comportement de la poudre en régime frictionnel aux échelles du lit et d'un petit ensemble de particules. Ce travail s'inscrit dans un champ d'étude relativement peu étudié dans la mesure où les études portant sur le procédé d'agglomération s'intéressent majoritairement à un régime collisionnel sous un fort

taux de cisaillement et pour lequel la notion de collision de particules est pleinement justifiée. En régime frictionnel, l'écoulement est localisé au niveau des zones de cisaillement et les particules sont quasiment toujours en contact si bien que des réseaux de forces labiles se créent et se rompent en permanence.

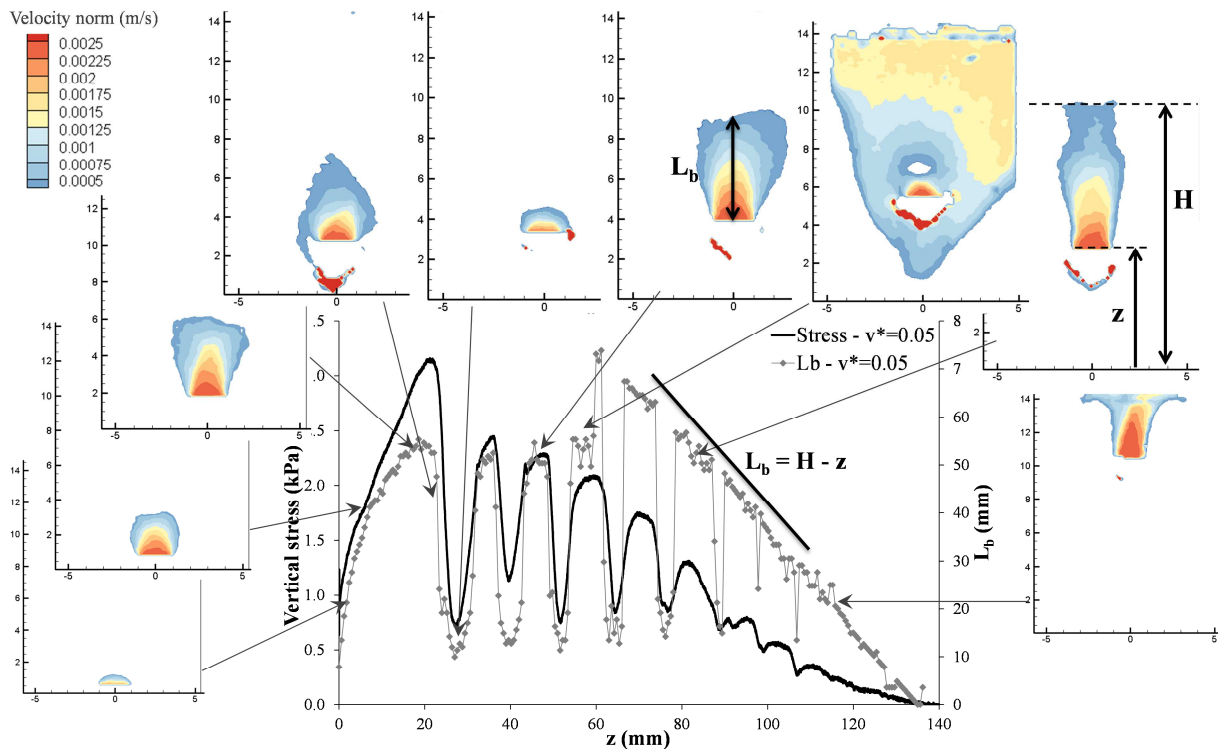


**Figure V.2.** Cartographie 2D des iso-contraintes verticales (gauche) et coupes selon x à différentes profondeurs mettant en évidence la longueur critique ( $\lambda_c$ ) et l'influence des parois ( $\lambda_b$  et  $\lambda_s$ ).

Dans le cas du système modèle de malaxage, nous montrons que l'intensité des contraintes mises en jeu dépend de la position de la pale par rapport à la longueur critique identifiée à l'état statique (Fig.V.3). Les modalités particulières de transmission des contraintes dans un milieu granulaire induisent différentes typologies d'écoulement selon la distance à la pale, la vitesse de la pale et sa position par rapport à la longueur critique. Ainsi, il apparaît nécessaire de prendre en compte des distributions (de vitesses de particules, de cisaillement mais aussi plus généralement de taille et de teneur en eau des particules) et non plus seulement des valeurs moyennes pour décrire le comportement des milieux granulaires sous sollicitation mécanique. Une étude à l'échelle intermédiaire ("méso") permet d'accéder aux distributions du cisaillement et des vitesses à l'échelle du lit. Il est alors possible de définir des critères pertinents relatifs aux mécanismes de l'agglomération, à savoir un volume de poudre réellement mis en mouvement par la pale et surtout d'accéder à la description des typologies des mouvements générés.

Pour préciser les théories de l'agglomération en voie humide pour des mélangeurs à faible taux de cisaillement, des efforts de compréhension doivent être menés pour répondre à deux questions fondamentales : comment les particules collent-elles entre elles ? Comment les particules se déplacent-elles ? Notre étude a déjà permis de proposer de nombreux éléments de

réponse sur les écoulements et les mouvements de particules en malaxeur modèle (2D). Les mouvements identifiés (avalanches, cisaillement, écoulements en masse, *etc.*) ont lieu sur des distances caractéristiques, qu'il faudrait à présent quantifier en fonction de l'agencement et de l'état d'organisation du milieu (*e.g.* compacité), des paramètres opératoires (*e.g.* vitesse de la pale) et des paramètres liés à la nature du milieu granulaire (*e.g.* distribution de taille, coefficient de friction, *etc.*). La diversité des mouvements de particules est susceptible de générer une diversité de mécanismes (*e.g.* adhésion, collage, rupture, attrition, rebond, *etc.*) dont il conviendrait de déterminer les influences dans un travail futur afin de proposer des éléments de réponse aux questions posées précédemment. Notre travail a montré que la vitesse critique (*i.e.* vitesse de la pale divisée par la vitesse caractéristique de déplacement des particules dans le champ gravitaire) modifie les gammes d'intensité de vitesse de particules et les distances caractéristiques des champs de déplacements (*e.g.* modification de la longueur d'influence de la pale,  $L_b$ ). Nous avons aussi montré que la contrainte verticale mesurée par la pale est corrélée à la longueur d'influence de la pale lors de son déplacement ascendant vertical, et ce quelle que soit la vitesse de pale testée (Fig.V.3).



**Figure V.3.** Courbes-types de la contrainte verticale mesurée au niveau de la pale et de la longueur d'influence de la pale dans le lit de particules ( $L_b$ ) lors de la remontée de la pale dans la semoule de blé dur ( $v^* = 0.05$ ). Les champs de vitesse instantanés obtenus par PIV pour différentes positions de pale sont aussi représentés.

Ainsi, les technologies et les paramètres de réglage associés modulent les typologies de déplacement des particules, et par lien de cause à effet, influent sur les mécanismes qui concourent à l'agglomération. L'étape suivante serait ainsi de coupler notre étude sur les écoulements granulaires en malaxeur modèle, à un apport d'eau puis de proposer une transposition en malaxeur « réel » (3D). Alors qu'en système simple « modèle », il existe un zonage géographique avec des zones de cisaillement facilement identifiables, les limites entre les zones en mouvement et les zones statiques dans un malaxeur « réel » sont bien plus floues. L'objectif serait à terme de définir des cartes de régime de fonctionnement permettant grâce à un nombre adimensionnel adapté de prédire le régime d'écoulement des particules, et voire même de localiser les déplacements de particules afin de déduire la proportion de particules en mouvement par rapport à celles non perturbées. Il est aussi nécessaire de prendre en compte l'effet de la cohésion de particules humides sur la capacité d'une poudre à transmettre les contraintes, par la quantification des distances et/ou volumes perturbés. En plus des longueurs caractéristiques identifiées, il serait pertinent d'accéder aux temps caractéristiques des mouvements induits par l'apport d'énergie mécanique afin de les mettre en relation avec les temps caractéristiques des mécanismes de l'agglomération (mouillage et nucléation, consolidation et croissance, rupture et attrition). Cela permettrait à terme de mieux contrôler le déroulement de l'agglomération en rendant possible le choix du mécanisme à favoriser par rapport à un autre. Le travail réalisé pour la détermination des champs de contraintes et de vitesses de particules dans le malaxeur modèle pourrait être enrichi par une diversification des géométries de la cellule (*e.g.* cellule de malaxage de base carrée pour s'affranchir de l'effet de non symétrie sur la répartition des chaînes de forces) et de la pale (*e.g.* pale inclinée à 45° par rapport à l'horizontale afin d'accéder à la contrainte latérale). Afin de transposer notre étude des écoulements granulaires d'un système simplifié de malaxage, à un malaxeur "réel", l'utilisation de la PIV est envisageable pour des mesures de vitesse en surface du lit et aux parois (pour un malaxeur avec des parois transparentes) mais cette technique ne donne pas accès à une description complète des trajectoires et vitesses de particules au cœur du lit granulaire (3D). Un couplage avec la PEPT renseignerait sur les mouvements de particules selon les trois dimensions à l'aide de traceurs radioactifs. L'instrumentation de pales avec des capteurs de contraintes pourrait également être pertinent afin de quantifier l'évolution de la contrainte perçue par la pale avec l'ajout de liant au cours de l'agglomération. Retrouverait-on une corrélation du type de celle observée entre la contrainte maximale perçue par la pale et la cohésion du lit d'agglomérats en système modèle de malaxage ?



Le troisième axe d'étude de la thèse (Chapitre IV.3) a démontré le potentiel de suivi en ligne du procédé d'agglomération par des mesures en spectroscopie proche infra-rouge ainsi que l'intérêt de mesures de puissance pour évaluer l'efficacité énergétique du procédé d'agglomération humide. Les mesures énergétiques que nous avons réalisées fournissent des ordres de grandeur pour alimenter les discussions autour d'une approche d'éco-conception. Il apparaît nécessaire d'identifier des systèmes d'apport d'énergie mécanique plus performants, *i.e.* qui transmettent efficacement l'énergie à l'endroit souhaité. La forme, la géométrie et la position de la pale dans le milieu granulaire contenu dans le malaxeur sont certainement des facteurs influant les modalités de transmission des contraintes imposées par la pale dans le lit ; en témoigne notre étude en système modèle, qui a montré que la longueur d'influence de la pale est plus élevée dans la zone haute (au-dessus de la longueur critique) que dans la zone basse du lit. De plus, des études complémentaires pourraient permettre d'identifier les conditions opératoires liées à l'apport d'énergie mécanique mais aussi à l'apport d'eau pour lesquelles l'énergie dépensée pour agglomérer est la plus faible possible tout en permettant d'obtenir des agglomérats aux propriétés contrôlées. Un travail amont pourrait aussi être envisagé pour diminuer les consommations énergétiques du malaxeur lors d'un mélange à vide ou en présence d'une masse inerte (sans ajout d'eau). La spectroscopie proche infra-rouge semble pouvoir être reliée aux variations de taille des particules et aux variations de leurs propriétés physico-chimiques. Mais qu'en est-il de la compacité (aux échelles du lit et des agglomérats) ? La compacité, ainsi que toute tentative d'estimation de changements de volume aux échelles du lit et des agglomérats au cours d'un procédé, restent aujourd'hui difficiles à suivre en ligne autrement que par prélèvements et par réalisation de mesures dont le degré de précision est tel qu'elles nécessitent un grand nombre de répétitions. La tomographie aux rayons X compte parmi les techniques potentielles pour apporter une solution pour mesurer avec précision la compacité des agglomérats ou d'un empilement granulaire. Cette technique non destructive permet la reconstitution d'images "en coupes" d'un objet en trois dimensions. Elle a par exemple été utilisée pour suivre les changements de volume d'un matériau granulaire lors de la décharge d'un silo à l'échelle laboratoire (Grudzień *et al.*, 2011). La tomographie aux rayons X pourrait également présenter un potentiel intéressant pour l'étude des écoulements de particules et des variations de compacité dans le système modèle de malaxage (2D). A condition que les temps d'acquisition soient compatibles avec les vitesses des phénomènes observés, cette technique permettrait même le suivi de l'agglomération à l'échelle entière du lit (3D). La technique PIV pourrait permettre aussi d'accéder aux évolutions de taille des particules, voire même de compacité du lit en mettant au point des analyses d'images adaptées à partir d'images 2D.

Dans ce travail de thèse, nous avons fait le choix de simplifier l'étude du procédé d'agglomération en découplant les apports d'eau et d'énergie mécanique et en développant un système modèle de malaxage muni d'un déplacement de pale selon une seule direction. Ce travail a été valorisé par l'identification de critères pertinents pour qualifier les apports d'eau et d'énergie mécanique. Dans un objectif d'intégration des résultats présentés dans ce manuscrit, l'analyse dimensionnelle, initiée sur l'étude du procédé d'atomisation, pourrait être conduite à l'échelle du malaxeur et sur la base des longueurs caractéristiques déjà identifiées. Elle permettrait d'établir des nombres adimensionnels exprimant la physique des phénomènes que l'on cherche à décrire, à comprendre et à modéliser. Une modélisation de la croissance des particules pourrait être réalisée par un bilan de population afin de décrire plus précisément l'évolution de la distribution de taille des particules au cours du procédé d'agglomération. La simulation numérique pourrait se révéler être un bon outil afin de réaliser des expérimentations numériques permettant de tester l'effet de certaines variables (*e.g.* teneur en eau, protocole de versement de la poudre, taille des particules, vitesse de sollicitation, *etc.*) sur le comportement du milieu granulaire. Toutefois, les expériences numériques présentent deux contraintes majeures qui sont la limite maximale du nombre de particules qu'il est possible de prendre en compte et les temps de calcul parfois très longs.

Se pose ensuite la question de la généralité de nos résultats. Serait-on capable de généraliser nos conclusions et notre démarche à d'autres malaxeurs que les malaxeurs à faible taux de cisaillement et à des matériaux granulaires autres que la semoule de blé dur ? Concernant la transposition possible en malaxeur à fort taux de cisaillement, notre démarche pourrait être rapidement testée en mesurant l'influence de très fortes vitesses de pales sur les typologies de mouvements identifiées. Le comportement du milieu correspondrait alors à un régime collisionnel avec une proportion élevée de zones du lit où les temps de contact entre particules seraient faibles. Les longueurs caractéristiques identifiées dans ce travail (*e.g.* longueur critique de percolation du réseau de forces) auraient certainement moins de sens pour un lit de particules sous sollicitation à fort taux de cisaillement. Pour une transposition à un apport d'énergie pneumatique (*i.e.* lit fluidisé), la démarche à suivre serait la même qu'en malaxeur à fort taux de cisaillement à ceci près qu'il faut intégrer la contribution du séchage, simultané aux mécanismes d'agglomération. Sur ces thématiques, les mécanismes de structuration (par granulation humide) et de consolidation (par séchage) au cours des procédés de texturation de poudres céréalières font actuellement l'objet de la thèse de doctorat de Melle Inès Hafsa depuis novembre 2012, au sein de l'UMR 1208 IATE. La démarche envisagée dans le

cadre de ce travail en cours s'appuie sur la confrontation d'approches scientifiques complémentaires (physique, physico-chimiques, génie des procédés et technologiques) pour étudier les dynamiques de structuration, de croissance, de rétraction et de consolidation. La méthodologie envisagée s'appuie sur la mise en œuvre d'une approche multi échelles : (i) à l'échelle des procédés, avec une approche technologique et avec la construction d'une analyse adimensionnelle des processus, (ii) à l'échelle des mécanismes pour étudier la génération de contacts (*i.e.* mécanismes de croissance) et la consolidation des interfaces (*i.e.* mécanismes de solubilisation et de séchage) et, (iii) à l'échelle de la structure avec la description de la microstructure interne (distribution de la compacité) et des caractéristiques texturales des structures formées.

Concernant une transposition de notre travail à des poudres solubles (*e.g.* poudres laitières), on peut supposer que la réactivité de surface se manifesterait plus rapidement de par la dissolution des constituants dans le liquide de mouillage. La question de la détermination des cinétiques limitantes se poserait dès lors que l'on s'intéresse à l'agglomération de poudres solubles. Afin de mettre en lien les temps caractéristiques des mouvements de particules avec ceux des mécanismes de l'agglomération, il apparaît nécessaire de déterminer les temps caractéristiques liés à la réactivité de surface des particules en fonction des conditions locales d'humidité de surface. La solubilisation de constituants de surface (selon leur nature) au niveau d'un pont liquide pourrait contribuer à augmenter la viscosité du pont et donc à augmenter la résistance au cisaillement des nucléi et agglomérats dans le malaxeur, à condition bien sûr que le temps de solubilisation soit inférieur au temps caractéristique de sollicitation des structures formées. Les propriétés de gonflement d'une poudre peuvent aussi jouer sur son aptitude à transmettre les contraintes dans le milieu granulaire (via une modification de la cohésion et la plasticité) et donc peuvent moduler le volume d'influence de la pale.

En termes d'innovations potentielles, cette thèse est un travail préliminaire permettant d'identifier des leviers qui pourraient constituer une base pour la rédaction d'un cahier des charges permettant d'envisager la reconception d'équipements. La pale n'est plus seulement considérée comme un promoteur de rencontre de particules. A travers les zones de cisaillement générées, elle impose une « barrière de potentiel » que seuls les agglomérats suffisamment stables et mécaniquement résistants peuvent surmonter. L'étude dynamique montre que l'énergie dépensée par la pale est plus faible dans la zone haute (*i.e.* au-dessus de la longueur critique) d'un lit de particules que dans la zone basse, là où les frictions sont les plus importantes. Il est

ainsi possible de repenser entièrement les procédés d'agglomération en testant d'autres géométries des malaxeurs (*e.g.* via un paramètre d'élanement) et en proposant d'autres modalités d'apport d'eau que celles traditionnellement employées (versement ou pulvérisation sur le lit de poudre). Pourquoi ne pas apporter l'eau là où l'énergie mécanique est la plus élevée, c'est-à-dire directement au niveau de la pale, afin d'assurer une meilleure homogénéisation de l'eau dans le lit de particules ? Ce n'est peut-être là qu'une idée mais elle démontre le potentiel d'innovation du procédé d'agglomération humide. Il reste beaucoup de questions à poser... et des réponses à apporter !

# Références bibliographiques

---



- T. Abberger, A. Seo, T. Schaefer, The effect of droplet size and powder particle size on the mechanisms of nucleation and growth in fluid bed melt agglomeration, *International Journal of Pharmaceutics*, 249, 185-197, 2002.
- J. Abecassis, G. Boggini, B. Cuq, H. Namoune, Other Traditional Durum Derived Products, in: M.J. Sissons, M. Carcea, M. Marchylo, J. Abecassis, *Durum Wheat: Chemistry and Technology*, seconde éd. AACCC International, 2012, in press.
- R.J. Adrian, Twenty years of particle image velocimetry, *Experiments in Fluids*, 39, 159-169, 2005.
- S. Agland, S.M. Iveson, *The impact of liquid drops on powder bed surfaces*, CHEMECA, Newcastle, Australia, 1999.
- J.M. Aguilera, Why food microstructure?, *Journal of Food Engineering*, 67, 3-11, 2005.
- J.M. Alava, S.J. Millar, S.E. Salmon, The determination of wheat breadmaking performance and bread dough mixing time by NIR spectroscopy for high speed mixers, *Journal of Cereal Science*, 33, 71-81, 2001.
- R. Albert, M.A. Pfeifer, A.L. Barabasi, P. Schiffer, Slow drag in a granular medium, *Physical Review Letters*, 82, 1, 205-208, 1999.
- M. Alcalà, M. Blanco, M. Bautista, J.M. González, On-line monitoring of a granulation process by NIR spectroscopy, *Journal of Pharmaceutical Sciences*, 99, 1, 336-345, 2009.
- A. Aliseda, E.J. Hopfinger, J.C. Lasheras, D.M. Kremer, A. Berchielli, E.K. Connolly, Atomization of viscous and non-newtonian liquids by a coaxial, high-speed gas jet. Experiments and droplet size modeling, *International Journal of Multiphase Flow*, 34, 161-175, 2008.
- American Association of Cereal Chemists, *Official Methods of the AACCC*, Method 76-13, First approval November 8, 1995; Reapproval November 3, 1999, 10th edition, The Association, St.Paul, MN, USA, 2000.
- C. Ancey, Dry granular flows down an inclined channel: experimental investigations on the frictional collisional regime, *Physical Review E*, 65, 011304, 2002.
- K. Ax, H. Feise, R. Sochon, M. Hounslow, A. Salman, Influence of liquid binder dispersion on agglomeration in an intensive mixer, *Powder Technology*, 179, 190-194, 2008.
- E. Azanza, F. Chevoir, P. Moucheron, Granular flows: physical experiments and their implications for microstructural theories, *Journal of Fluid Mechanics*, 400, 199, 1999.
- E. Babinsky, P.E. Sojka, Modeling drop size distributions, *Progress in Energy and Combustion Science*, 28, 303-329, 2002.
- G.V. Barbosas-Canovas, E. Ortega-Rivas, P. Juliano, H. Yan, *Food Powders: physical properties, processing, and functionality*, Kluwer Academic, Plenum Publishers, 2005.
- M. Bardin, P.C. Knight, J.P.K Seville, On control of particle size distribution in granulation using high shear mixers, *Powder Technology*, 140, 169-175, 2004.
- A. Barkouti, E. Rondet, M. Delalonde, T. Ruiz, Influence of physicochemical binder properties on fractal agglomeration of wheat powder in low shear mixer, 5<sup>th</sup> International Granulation Workshop, Lausanne, Suisse, 2011.
- D. Bertrand, D. Dufour, *La spectroscopie infrarouge et ses applications analytiques*, Tec et Doc, Lavoisier, Paris, 2000.
- G. Betz, P.J. Burgin, H.L. Leuenberger, Power consumption profile analysis and tensile strength measurements during moist agglomeration, *International Journal of Pharmaceutics*, 252, 11-25, 2003.
- G. Betz, P.J. Burgin, H.L. Leuenberger, Power consumption measurement and temperature recording during granulation, *International Journal of Pharmaceutics*, 272, 137-149, 2004.
- D. Bi, J. Zhang, B. Chakraborty, R.P. Behringer, Jamming by shear, *Nature*, 480, 355-358, 2011.

- D. Bideau, E. Guyon, L. Oger, Granular Media : effects of disorder, Proceedings of Advanced Study Institute on Disorder and Fracture, Cargèse, France, p255-268, 1989.
- H.P. Bier, H. Leuenberger, H. Sucker, Determination of the uncritical quantity of granulating liquid by power measurements on planetary mixers, *Pharmaceutical Industry*, 8, 289-297, 1979.
- D. Bika, M. Gentzler, J. Michaels, Mechanical properties of agglomerates, *Powder technology*, 117, 98-112, 2001.
- L. Bocquet, E. Charlaix, F. Restagno, Physics of humid granular media, *Compte-Rendu de Physique*, 3, 207-215, 2002.
- A.M. Bouwman, M.R. Visser, G.M.H. Meesters, H.W. Frijlink, The use of Stokes deformation number as a predictive tool for material exchange behaviour of granules in the 'equilibrium phase' in high shear granulation, *International Journal of Pharmaceutics*, 318, 78-85, 2006.
- I. Bratberg, K.J. Måløy, A. Hansen, Validity of the Janssen law in narrow granular column, *European Physical Journal E*, 18, 245-252, 2005.
- A. Brauman, M.J. Goodson, M. Kraft, P.R. Mort, Modelling and validation of granulation with heterogeneous binder dispersion and chemical reaction, *Chemical Engineering Science*, 62, 4717-4728, 2007.
- J. Bridgwater, C.J. Broadbent, D.J. Parker, Study of the influence of blade speed on the performance of a powder mixer using positron emission particle tracking, *Transactions of the Institution of Chemical Engineers A*, 71, 675-681, 1993.
- C.J. Broadbent, J. Bridgwater, D.J. Parker, The effect of fill level on powder mixer performance using a positron camera, *Chemical Engineering Journal*, 56, 119-125, 1995.
- R. Brockbank, J.M. Huntley, R.C. Ball, Contact force distribution beneath a three-dimensional granular pile, *Journal of Physics II*, 10, 1521-1532, 1997.
- R.L. Brown, J.C. Richards, *Principles of powder mechanics*, Pergamon Press, London, pp. 75-76, 1970.
- P. Buchhave, Particle image velocimetry status and trends, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 5, 586-604, 1992.
- H.N. Buckner, P.E. Sojka, Effervescent atomization of high-viscosity fluids: part I, Newtonian liquids, *Atomization and Sprays*, 1, 239-252, 1991.
- R. Candelier, O. Dauchot, Journey of an intruder through the fluidisation and jamming transitions of a dense granular media, *Physical Review E*, 8,1, 2009.
- J.W. Carson, H. Wilms, Development of an international standard for shear testing, *Powder Technology*, 167, 1-9, 2006.
- B. Castel, Mise en forme des solides, Procédés et appareils, *Techniques de l'Ingénieur, traité Opération unitaires*, article J 3 382, 1996.
- M. Cavinato, M. Bresciani, M. Machin, G. Bellazzi, P. Canu, A.C. Santomaso, Formulation design for optimal high-shear wet granulation using on-line torque measurements, *International Journal of Pharmaceutic*, 387, 48-55, 2010.
- B. Cazacliu, In-mixer measurement for describing mixture evolution during concrete mixing, *Chemical Engineering Research and Design*, 86, 1423-1433, 2008.
- B. Cazacliu, J. Legrand, Characterization of the granular-to-fluid state process during mixing by power evolution in a planetary concrete mixer, *Chemical Engineering Science*, 63, 4617-4630, 2008.
- B. Cazacliu, N. Roquet, Concrete mixing kinetics by means of power measurement, *Cement and Concrete Research*, 39, 182-194, 2009.
- K. Ceylan, G. Kelbaliyev, Stochastic modelling of the granule size distribution in the agglomeration processes of powdered materials, *Powder Technology*, 119, 173-180, 2001.



- Y. Charonnat, Fabrication du béton hydraulique, *Techniques de l'Ingénieur*, article C 2 225, 1999.
- E. Chevalier, M. Viana, C. Pouget, D. Chulia, Influence of process parameters on pellets elaborated in a mi-pro high shear granulator, *Pharmaceutical Development and Technology*, 12, 133-144, 2007.
- D. Chopin, B. Cazacliu, F. de Larrard, R. Schell, Monitoring of concrete homogenization with the power consumption curve, *Materials and Structures*, 40, 897-907, 2007.
- V. Chouk, G. Reynolds, M. Hounslow, A. Salman, Single drop behaviour in a high shear granulator, *Powder Technology*, 189, 357-364, 2009.
- P. Claudin, La physique des tas de sable, *Annales de physique*, Volume 24, n°2, EDP Sciences, 2006.
- R. Collet, D. Oulahna, A. De Ryck, P.H. Jezequel, M. Martin, Mixing of a wet granular medium: Influence of the liquid addition method, *Powder Technology*, 208, 367-371, 2011.
- R. Condotta, Coulabilité des poudres cohésives : mesures aux faibles contraintes, granulaires humides et applications à une poudre industrielle, Thèse de doctorat, Institut Polytechnique National de Toulouse, France, 2005.
- S.L. Conway, A. Lekhal, J.G. Khinast, B.J. Glasser, Granular flow and segregation in a four-bladed mixer, *Chemical Engineering Science*, 60, 7091-7107, 2005.
- C. Coulomb, in *Memoire de Mathématique et de Physique*, Académie des Sciences, L'Imprimerie Royale, Paris, 7, 343, 1773.
- S. Courrech du Pont, Avalanches granulaires en milieu fluide, Thèse de doctorat, Université Paris XI, Paris, 2003.
- B. Cuq, E. Rondet, J. Abecassis, Food powders engineering from knowhow to science: Industrial constraints, stakes and research opportunities, *Powder Technology*, 208, 244-251, 2011.
- P. Dantu, Etude statistique des forces intergranulaires dans un milieu pulvérulent compris entre deux plans verticaux et parallèles, *Géotechnique*, 18, 50-55, 1968.
- B. Daumann, H. Anlauf, H. Nirschl, Determination of the energy consumption during the production of various concrete recipes, *Cement and Concrete Research*, 39, 590-599, 2009.
- A. Debbouz, J.W. Dick, B.J. Donnelly, Influence of raw material on couscous quality, *Cereal Food World*, 39, 231-236, 1994.
- A. Debbouz, B.J. Donnelly, Process effect on couscous quality, *Cereal Chemistry*, 73, 668-671, 1996.
- M. De Luca, Contribution à la modélisation de la pulvérisation d'un liquide phytosanitaire en vue de réduire les pollutions, Thèse de doctorat, Université de la Méditerranée, France, 2007.
- S.R. Delwiche, R.E. Pitt, K.H. Norris, Examination of starch-water and cellulose-water interactions with near infrared (NIR) diffuse reflectance spectroscopy, *Starch*, 43, 415-422, 1991.
- J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, M. Grandjean, Caractérisation de l'agitation de milieux granulaires en mélangeur TRIAXE, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 92, 2007.
- J. Desrues, R. Chambon, M. Mokni, F. Mazerolle, Void ratio evolution inside shear bands in triaxial sand specimens studied by computed tomography, *Géotechnique*, 46, 3, 529-546, 1996.
- R. Di Felice, C. Scapinello, On the interaction between a fixed bed of solid material and the confining column wall: the Janssen approach, *Granular Matter*, 12, 49-55, 2010.
- F.E. Dowell, E. Maghirang, Accuracy and feasibility of measuring characteristics of single kernels using near-infrared spectroscopy. In *Novel raw materials, technologies, and products - New challenge for quality control*, ICC conference 2002, Budapest, Hungary, 2002.

- J. Duran, Sables, poudres et grains. Introduction à la physique des milieux granulaires, Eyrolles sciences, 1996.
- C.E. Ejim, M.A. Rahman, A. Amirfazli, B.A. Fleck, Effects of liquid viscosity and surface tension on atomization in two-phase, gas/liquid fluid coker nozzles, *Fuel*, 89, 1872-1882, 2010.
- M.M. Elkotb, M.A. Mahdy, M.E. Montaser, Investigation of external-mixing airblast atomizers, in: *Proceedings of the 2nd International Conference of Liquid Atomization and Sprays*, 107-115, 1982.
- H.N. Emady, D. Kayrak-Talay, W.C. Schwerin, J.D. Litster, Granule formation mechanisms and morphology from single drop impact on powder beds, *Powder Technology*, 212, 69-79, 2011.
- B.J. Ennis, G.I. Tardos, R. Pfeffer, A microlevel-based characterization of granulation phenomena, *Powder Technology*, 65, 257-272, 1991.
- B.J. Ennis, J.D. Litster, Particle size enlargement, in R. Perry and D. Green (Eds.), *Perry's Chemical Engineers' Handbook (7th ed.)*, New-York : McGraw-Hill, 1997.
- P. Evesque, P.G. de Gennes, Sur la statique des silos, *Compte-Rendu de l'Académie des Sciences de Paris, série IIB*, 326, 761-766, 1998.
- G. Fabriani, Other durum wheat products in: G. Fabriani, C. Lintas, *Durum Wheat: Chemistry and Technology*, U.S.A.: American Association of Cereal Chemists, 1988.
- M. Faraday, On a peculiar class of acoustical Figures; and on certain forms assumed by groups of particles upon vibrating elastic surfaces, *Philosophical Transactions of the Royal Society London*, 52, 299, 1831.
- P. G. de Gennes, Granular matter: a tentative view, *Reviews of Modern Physics*, 71, 374-382, 1999.
- A. Faure, P. York, R.C. Rowe, Process control and scale-up of pharmaceutical wet granulation processes: a review, *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52, 269-277, 2001.
- J.J. Fitzpatrick, L. Ahrné, Food powder handling and processing: Industry problems, knowledge barriers and research opportunities, *Chemical Engineering and Processing*, 44, 209-214, 2004.
- S. Forrest, J. Bridgwater, P.R. Mort, J. Litster, D.J. Parker, Flow patterns in granulating systems, *Powder Technology*, 130, 91-96, 2003.
- P. Frake, D. Greenhalgh, S.M. Grierson, J.M. Hempenstall, D.R. Rudd, Process control and end-point determination of a fluid bed granulation by application of near infra-red spectroscopy, *International Journal of Pharmaceutics*, 151, 75-80, 1997.
- R.E. Freeman, Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders — a comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell, *Powder Technology*, 174, 25-33, 2007.
- R.E. Freeman, J.R. Cooke, L.C.R. Schneider, Measuring shear properties and normal stresses generated within a rotational shear cell for consolidated and non-consolidated powders, *Powder Technology*, 190, 1-2, 65-69, 2009.
- G.D.R. MIDI, On dense granular flows, *European Physical Journal E*, 14, 341-365, 2004.
- T. Gluba, The effect of wetting liquid droplet size on the growth of agglomerates during wet drum granulation, *Powder Technology*, 130, 219-224, 2003.
- T. Gluba, The energy of bed processing during drum granulation, *Chemical Engineering and Processing*, 44, 237-243, 2005.
- A. Goldszal, J. Bousquet, Wet agglomeration of powders: From physics toward process optimization, *Powder Technology*, 117, 221-231, 2001.
- N. Gravish, P.B. Umbanhowar, D.I. Goldman, Force and flow transition in plowed granular media, *Physical Review Letters*, 105, 128301, 2010.

- J. Gretzinger, W.R. Marshall Jr., Characteristics of pneumatic atomisation, *American Institute of Chemical Engineers*, 7, 312-318, 1961.
- K. Grudzień, M. Niedostatkiwicz, J. Adrien, J. Tejchman, E. Maire, Quantitative estimation of volume changes of granular materials during silo flow using X-ray tomography, *Chemical Engineering and Processing*, 50, 59–67, 2011.
- L. Guezlane, Mise au point de méthodes de caractérisation et étude des modifications physico-chimiques sous l'effet des traitements hydro thermiques en vue d'optimiser la qualité du couscous de blé dur, Thèse de doctorat, INA d'El Harrach, Alger, 1993.
- E. Guyon, D. Roux, A. Hansen, D. Bideau, J.P. Troadec, H. Crapo, Non-local and non-linear problems in the mechanics of disordered systems: application to granular media and rigidity problems, *Reports on Progress in Physics*, 53, 373-419, 1990.
- E. Guyon, J.P. Troadec, *Du sac de billes au tas de sable*, Odile Jacob, Paris, 1994.
- K.P. Hapgood, Nucleation and binder dispersion in wet granulation, Thèse de doctorat, Université du Queensland, Australie, 2000.
- K.P. Hapgood, J.D. Litster, R. Smith, Nucleation regime map for liquid bound granules, *AIChE Journal*, 49, 350-360, 2003.
- K.P. Hapgood, J.D. Litster, E.T. White, P.R. Mort, D.G. Jones, Dimensionless spray flux in wet granulation: Monte-Carlo simulations and experimental validation, *Powder Technology*, 141, 20-30, 2004.
- A. Hébrard, Granulation de la semoule de blé dur : Étude et optimisation du procédé d'agglomération des particules de semoule pour l'obtention de couscous, Thèse de doctorat, École nationale supérieure d'agronomie de Montpellier, France, 2002.
- P.D. Hede, P. Bach, A.D. Jensen, Two-fluid spray atomisation and pneumatic nozzles for fluid bed coating/agglomeration purposes: A review, *Chemical Engineering Science*, 63, 3821-3842, 2008.
- K. M. Hill, A. Caprihan, J. Kakalios, Axial segregation of granular media rotated in a drum mixer: pattern evolution, *Physical Review E*, 56, 4386-4393, 1997.
- M.J.P. Hiseman, B.F.C. Laurent, J. Bridgwater, D.I. Wilson, D.J. Parker, N. North, D.R. Merrifield, Granular flow in a planetary mixer, *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 80, 432-440, 2002.
- P. Holm, T. Schaefer, H.G. Kristensen, Granulation in high-speed mixers : part V. Power consumption and temperature changes during granulation, *Powder Technology*, 43, 213-223, 1985.
- F. Hoornaert, P.A.L. Wauters, G.M.H. Meesters, S.E. Pratsinis, B. Scarlett, Agglomeration behaviour in a Lödige mixer granulator, *Powder Technology*, 96, 116-128, 1998.
- D. Howell, R. P. Behringer, Stress fluctuations in a 2d granular couette experiment: a continuous transition, *Physical Review Letters*, 82, 26, 5241-5244, 1999.
- W.N. Huang, M.C. Olewnik, J.J. Psocka, R.E. Dempster, Measuring rheological dough and mixing properties of full formula ingredients and micro-ingredients in real time using NIR, AACC Annual Meeting. Charlotte, 2001.
- A. Ingram, J.P.K. Seville, D.J. Parker, X. Fan, R.G. Forster, Axial and radial dispersion in rolling mode rotating drums. *Powder Technology*, 158, 76-91, 2005.
- S.M. Iveson, J.D. Litster, Growth regime map for liquid-bound granules, *AIChE Journal*, 44, 1510-1518, 1998a.
- S.M. Iveson, J.D. Litster, Fundamental studies of granule consolidation : Part 2. Quantifying the effects of binder surface tension, *Powder technology*, 99, 243-250, 1998b.
- S.M. Iveson, J.D. Litster, K. Hapgood, B.J. Ennis, Nucleation, growth and breakage phenomena in wet granulation processes : a review, *Powder Technology*, 117, 3-39, 2001.
- H.M. Jaeger, S.R. Nagel, R.P. Behringer, Granular solids, liquids, and gases, *Reviews of Modern Physics*, 68, 1259-1273, 1996.

- H.A. Janssen, Versuche über getreidedruck in silozellen, Zeitschrift verein deutscher ingenieur, 39, 1045-1049, 1895.
- K. D. Jensen, Flow Measurements, Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences & Engineering, 26, 4, 400-419, 2004.
- T. Jimenez, Agglomération de particules par voie humide en lit fluidisé, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Industries Agricoles et Alimentaires, France, 2007.
- P. Jop, Y. Forterre, O. Pouliquen, A constitutive law for dense granular flows, Nature, 441, 727-730, 2006.
- R. Jullien, P. Meakin, A. Pavlovitch, Three dimensional model for particle size segregation by shaking, Physical Review Letters, 69, 640-643, 1992.
- L. Juslin, O. Antikainen, P. Merkkü, J. Yliruusi, Droplet size measurement: I. Effect of three independent variables on droplet size distribution and spray angle from a pneumatic nozzle, International Journal of Pharmaceutics, 123, 247-256, 1995.
- A.A. Kaddour, M.H. Morel, C. Barron, B. Cuq, Dynamic monitoring of dough mixing using near-infrared spectroscopy: Physical and chemical outcomes, Cereal Chemistry, 84, 70-79, 2007.
- A.A. Kaddour, B. Cuq, In line monitoring of wet agglomeration of wheat flour using near infrared spectroscopy, Powder Technology, 190, 10-18, 2009.
- AA. Kaddour, B. Cuq, Dynamic NIR spectroscopy to monitor wheat product processing: a short review, American Journal of Food Technology, 6, 186-196, 2011.
- S.M. Kaup, C.E. Walker, Couscous in North Africa, Cereal Food World, 31, 179-182, 1986.
- D.V. Khakhar, J.M. Ottino, Mixing and segregation of granular materials in chute flows, Chaos, 9, 3, 594-610, 1999.
- K.Y. Kim, W.R. Marshall, Drop-size distributions from pneumatic atomisers, American Institute of Chemical Engineers Journal, 17, 575-584, 1971.
- P.C. Knight, An investigation of the kinetics of granulation using a high shear mixer, Powder technology, 77, 159-169, 1993.
- P.C. Knight, T. Instone, J.M.K. Pearson, M.J. Hounslow, An investigation into the kinetic of liquid distribution and growth in high shear mixer agglomeration, Powder technology, 97, 246-257, 1998.
- P.C. Knight, A. Johansen, H.G. Kristensen, T. Schaefer, J.P.K. Seville, An investigation of the effects on agglomeration of changing the speed of mechanical mixer, Powder Technology, 110, 204-209, 2000.
- P.C. Knight, Structuring agglomerated products for improved performance, Powder Technology, 119, 14-25, 2001.
- P.C. Knight, J.P.K. Seville, A.B. Wellm, T. Instone, Prediction of impeller torque in high shear powder mixers, Chemical Engineering Science, 56, 4457-4471, 2001.
- P.C. Knight, Challenges in granulation technology, Powder Technology, 140, 156-162, 2004.
- H.G. Kristensen, P. Holm, T. Schaefer, Mechanical properties of moist agglomerates in relation to granulation mechanisms: part 2. Effect of particle size distribution, Powder Technology, 44, 239-247, 1985.
- H.G. Kristensen, T. Schaefer, Granulation – a review on pharmaceutical wet granulation, Drug Development and Industrial Pharmacy, 13, 803-872, 1987.
- H.P. Kuo, P.C. Knight, D.J. Parker, J.P.K. Seville, Solids circulation and axial dispersion of cohesionless particles in a V-mixer, Powder Technology, 152, 1-3, 133-140, 2005.
- H.L. Langhaar, Dimensional Analysis and Theory of Models, John Wiley & Sons, New York, 1951.
- C. Larricq-Fourcade dit Lèride, Etude de la pulvérisation assistée en air d'une nappe liquide et influence d'un vent ionique sur les instabilités hydrodynamiques, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace, France, 2006.

- B.F.C. Laurent, J. Bridgwater, Influence of agitator design on powder flow, *Chemical Engineering Science*, 57, 3781-3793, 2002.
- B.F.C. Laurent, J. Bridgwater, D.J. Parker, Convection and segregation in a horizontal mixer, *Powder Technology*, 123, 9-18, 2002.
- B.F.C. Laurent, Structure of powder flow in a planetary mixer during wet mass granulation, *Chemical Engineering Science*, 60, 14, 3805-3816, 2005.
- D.P. Law, R. Tkachuk, Near infrared diffuse reflectance spectra of wheat and wheat components, *Cereal Chemistry*, 54, 256-265, 1977.
- A.H. Lefebvre, Airblast atomization, *Progress in energy and combustion science*, 6, 233-261, 1980.
- A.H. Lefebvre, *Atomization and sprays*, Hemisphere Publishing Corporation, New York, 1989.
- A. Lemaître, J.N. Roux, F. Chevoir, What do dry granular flows tell us about dense non Brownian suspension rheology?, *Rheologica Acta*, 48, 925-942, 2009.
- L. Le Moynes, Atomisation, pulvérisation et aérosols – Instrumentation, *Techniques de l'ingénieur* article AF3620, 2010.
- N. Lenoir, M. Bornert, J. Desrues, P. Besuelle, C. Viggiani, Volumetric digital image correlation applied to X-ray microtomography images from triaxial compression tests on argillaceous rock, *Strain*, 43, 193-205, 2007.
- H. Leuenberger, H.P. Bier, H.B. Sucker, Theory of the granulating-liquid requirement in the conventional granulation process, *Pharmaceutical Technology International*, 2, 35-42, 1979.
- H. Leuenberger, New trends in the production of pharmaceutical granules : the classical batch concept and the problem of scale-up, *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52, 279-288, 2001.
- S.Y. Lim, J.F. Davidson, R.N. Forster, D.J. Parker, D.M. Scott, J.P.K. Seville, Avalanching of granular material in a horizontal slowly rotating cylinder: PEPT studies, *Powder Technology*, 138, 1, 30, 25-30, 2003.
- N.O. Lindberg, L. Leander, L. Wenngren, H. Helgesen, R. Reenstierna, Granulation in a change can mixer, *Acta Pharmaceutica Suecica*, 11, 1974.
- J.D. Litster, K.P. Hapgood, J.N. Michaels, A. Sims, M. Roberts, S.K. Kamemini, T. Hsu, Liquid distribution in wet granulation : dimensionless spray flux, *Powder technology*, 114, 29-32, 2001.
- J.D. Lister, K.P. Hapgood, J.N. Michaels, A. Sims, M. Roberts, S.K. Kamemini, Scale-up of mixer granulators for effective liquid distribution, *Powder Technology*, 124, 3, 272-280, 2002.
- J.D. Litster, B.J. Ennis, *The Science and Engineering of Granulation Processes*, Kluwer Powder Technology Series, B. Scarlett (ed.), 2004.
- L.X. Liu, S.M. Iveson, J.D. Litster, B.J. Ennis, Coalescence of deformable granules in wet granulation processes, *AIChE Journal*, 46, 529-539, 2000.
- H. Liu, *Science and Engineering of Droplets - Fundamentals and Applications*, William Andrew Publishing, Noyes, 2000.
- R.M. Lueptow, A. Akonur, T. Shinbrot, PIV for granular flows, *Experiments in Fluids*, 28, 183-186, 2000.
- M.T. Lund, P.E. Sojka, A.H. Lefebvre, P.G. Gosselin, Effervescent atomization at low mass flow rates. Part 1: the influence of surface tension, *Atomization and Sprays*, 3, 77-89, 1993.
- R.D. Maladen, Y. Ding, C. Li, D.I. Goldman, Undulatory swimming in Sand: Subsurface Locomotion of the Sandfish Lizard, *Science*, 17, 325-314, 2009.
- M.B. Mackaplow, L.A. Rosen, J.N. Michaels, Effect of primary particle size on granule growth and endpoint determination in high shear wet granulation, *Powder Technology* 108, 32-45, 2000.

- S. Malamataris, S. Kiortsis, Wettability parameters and deformational behaviour of powder-liquid mixes in the funicular agglomeration phase, *International Journal of Pharmaceutics*, 154, 9-17, 1997.
- S. Mandato, E. Rondet, G. Delaplace, A. Barkouti, L. Galet, P. Accart, T. Ruiz, B. Cuq, Liquids'atomization with different nozzles: Modelling of the effects of processing conditions by dimensional analysis, *Powder Technology*, 224, 323-330, 2012a.
- S. Mandato, B. Cuq, T. Ruiz, Experimental study of vertical stress profiles of a confined granular bed under static and dynamic conditions, *European Physical Journal E*, 2012b, accepted.
- M. Manley, A.E.J. McGill, B.G. Osborne, The effect of light scattering on NIR reflectance and transmittance spectra of wheat, *Journal of Near Infrared Spectroscopy*, 2, 93-99, 1994.
- P. Marmottant, Atomisation d'un liquide par un courant gazeux, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, France, 2001.
- K. Masters, *Spray Drying Handbook*, John Wiley & Sons, New York, 1976.
- A. Medina, J.A. Córdova, E. Luna, C. Treviño, Velocity field measurements in granular gravity flow in a near 2D silo, *Physics Letters A*, 250, 111-116, 1998.
- J.P. Melcion, J.L. Ilari, *Technologie des pulvérulents dans les IAA*, Ed. Lavoisier, Paris, 2003.
- J.M. Méot, Couscous Technology, Actes du Congrès Scientifique International "Santé & Environnement" par le Groupe Clextral, 61-77, 14-19 October, 2006.
- S.J. Millar, J.M. Alava, S.E. Salmon, Control of bread dough mixing operations using NIR spectroscopy, AACC Annual Meeting, Kansas City, paper 35, 2000.
- B.S. Miller, A feasibility study on use of near infrared techniques, *Cereal Foods World*, 24, 88-89, 1979.
- G. Miragliotta, The power of dimensional analysis in production systems design, *International Journal of Production Economics*, 131, 175-182, 2011.
- P.R. Mort, G. Tardos, Scale up of agglomeration processes using transformations, *Kona*, 17, 64-75, 1999.
- P.R. Mort, Scale-up of binder agglomeration processes, *Powder Technology*, 150, 86-103, 2005.
- P.R. Mort, Scale-up and control of binder agglomeration processes - Flow and stress fields, *Powder Technology*, 189, 313-317, 2009.
- Y. Muguruma, T. Tanaka, Y. Tsuji, Numerical simulation of particulate flow with liquid bridge between particles (simulation of centrifugal tumbling granulator), *Powder Technology*, 109, 1-3, 49-57, 2000.
- B. Mulhem, U. Fritsching, G. Schulte, B. Baukhage, Effect of solid particle characteristics on suspension atomization, *Atomization and Sprays*, 133, 321-343, 2003.
- R.M. Nedderman, *Statics and Kinematics of Granular Materials*, Cambridge University Press, 1992.
- D.M. Newitt, J.M. Conway-Jones, A contribution to the theory and practice of granulation, *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 36, 422-441, 1958.
- M. Niedostatkiewicz, J. Tejchman, Investigations of porosity changes during granular silo flow using electrical capacitance tomography (ECT) and particle image velocimetry (PIV), *Particle & Particle Systems Characterization*, 24, 4-5, 304-312, 2007.
- M. Niedostatkiewicz, J. Tejchman, Z. Chanieckib, K. Grudzień, Determination of bulk solid concentration changes during granular flow in a model silo with ECT sensors, *Chemical Engineering Science*, 64, 20-30, 2009.
- A.W. Nienow, Fluidised bed Granulation and coating : applications to materials, agriculture and biotechnology, *Chemical Engineering Communications*, 139, 233-253, 1995.
- A.M. Nilpawar, G.K. Reynolds, A.D. Salman, M.J. Hounslow, Surface velocity measurement in a high shear mixer, *Chemical Engineering Science*, 61, 4172-4178, 2006.

- K.H. Norris, P.C. Williams, Optimisation of mathematical treatments of raw near-infrared signal in the measurement of protein in hard red spring wheat. I. Influence of particle size, *Cereal Chemistry*, 61, 158-165, 1984.
- L. Obregón, A. Realpe, C. Rinaldi, C. Velázquez, Mixing of granular materials. Part I: Effect of periodic shear, *Powder Technology*, 197, 9-16, 2010.
- I. Ohno, S. Hasegawa, S. Yada, A. Kusai, K. Moribe, K. Yamamoto, Importance of evaluating the consolidation of granules manufactured by high shear mixer, *International Journal of Pharmaceutics*, 338, 79-86, 2007.
- M.C. Olewnik, R.E. Dempster, V.W. Smail, Development of a controlled dough mixing system, *Conference Proceedings of Cereal and Bread Congress, Harrogate*, paper 45, 2004.
- B.G. Osborne, T. Fearn, *Near Infrared Spectroscopy In Food Analysis*, J. Wiley and Sons, (eds.) NY, 1986.
- B.G. Osborne, Improved NIR prediction of flour starch damage. In *Proceedings 48th Australian Cereal Chemistry Conference*, O'Brien L., Blakeney A.B., Ross A.S., and Wrigley C.W. (eds.), p. 434-438, The Royal Australian Chemical Institute, Melbourne, 1999.
- B.G. Osborne, Recent developments in NIR analysis of grains and grain products, *Cereal Foods World*, 45, 1, 11-15, 2000.
- B.G. Osborne, Utilisation de la spectroscopie proche infrarouge dans les industries céréalières. In *La spectroscopie Infrarouge et ses Applications Analytiques*, Bertrand D. and Dufour E. (eds.), p. 505-535, Tec & Doc, Lavoisier, Paris, 2006.
- M. Ostendorf, J. Schwedes, Application of particle image velocimetry for velocity measurements during silo discharge, *Powder Technology*, 158, 69-75, 2005.
- D. Oulahna, F. Cordier, L. Galet, J.A. Dodds, Wet granulation: the effect of shear on granule properties, *Powder Technology*, 130, 238-246, 2003.
- G. Ovarlez, *Statique et rhéologie d'un milieu granulaire confiné*, Thèse de doctorat, Université Paris XI, France, 2002.
- G. Ovarlez, C. Fond, E. Clément, Overshoot effect in the Janssen granular column: a crucial test for granular mechanics, *Physical Review E*, 67, 060302(R), 1-4, 2003.
- G. Ovarlez, E. Clément, Elastic medium confined in a column versus the Janssen experiment, *European Physical Journal E*, 16, 421-438, 2005.
- S. Palzer, Food structures for nutrition, health and wellness, *Trends in Food Science & Technology*, 20, 194-200, 2009a.
- S. Palzer, Influence of material properties on the agglomeration of water-soluble amorphous particles, *Powder Technology*, 189, 318-326, 2009b.
- S. Palzer, Agglomeration of pharmaceutical, detergent, chemical and food powders - Similarities and differences of materials and processes, *Powder Technology*, 206, 2-17, 2011.
- M.D. Parker, P. York, R.C. Rowe, Binder-substrate interactions in wet granulation 1: The effect of binder characteristics, *International Journal of Pharmaceutics*, 64, 207-216, 1990.
- X. Pepin, S. Blanchon, G. Couarraze, Power consumption profiles in high-shear wet granulation. I: Liquid distribution in relation to powder and binder properties, *Journal of Pharmaceutical Science*, 90, 322-331, 2001.
- D. Pham Van Bang, *Comportement instantané et différé des sables des petites aux moyennes déformations : expérimentation et modélisation*, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France, 2004.
- W. Pietsch, *Size Enlargement By Agglomeration*, Fundamentals of agglomeration, John Wiley & Sons, 1991.
- W. Pietsch, *Agglomeration Process: Phenomena, Technologies, Equipment, Agglomeration Theories*, Wiley-VCH, 2002.
- P.M. Portillo, A.U. Vanarase, A. Ingram, J.K. Seville, M.G. Ierapetritou, F.J. Muzzio, Investigation of the effect of impeller rotation rate, powder flow rate, and cohesion on

- powder flow behavior in a continuous blender using PEPT, *Chemical Engineering Science*, 65, 21, 2010, 5658-5668, 2010.
- O. Pouliquen, *Les milieux granulaires, entre fluide et solide*, 2001.
- O. Pouliquen, F. Chevoir, Dense flows of dry granular material, *Compte rendus de l'Académie des Sciences de Paris, Physique*, 3, 163-175, 2002.
- J.J. Psocka, R. Chen, M. Olewnik, Monitoring dough development in real time using near infrared spectrometer, *AACC Annual Meeting, Seattle*, paper 293, 1999.
- A. Qadir, H. Guo, X. Liang, Q. Shi, G. Sun, Effect of the ratios of diameter of silo to bead on the pressure screening in granular columns, *European Physical Journal E*, 31, 311-314, 2010.
- F. Radjai, M. Jean, J.J. Moreau, S. Roux, Force distributions in dense two dimensional granular systems, *Physical Review Letters*, 77, 2, 274-277, 1996.
- F. Radjai, E.W. Dietrich., M. Jean, J.J. Moreau, Bimodal character of stress transmission in granular packings, *Physical Review Letters*, 80, 61-64, 1998.
- F. Radjai, Multicontact dynamics of granular systems, *Computer Physics Communications*, 121-122, 294-298, 1999.
- F. Radjai, Length scales in Mechanics of Granular Media in Multi-scale modeling of heterogeneous materials: from microstructure to macro-scale properties, 319-335, O. Cazacu, Wiley-ISTE, Berlin, 2008.
- M. Raffel, C.E. Willert, S.T. Wereley, J. Kompenhans, *Particle Image Velocimetry. A Practical Guide*, Springer, 2nd ed., 2007.
- J. Rahmoun, *Modélisation du comportement des matériaux granulaires par des approches discrètes et continues*, Thèse de doctorat, Université de Lille 1, France, 2006.
- J. Rajchenbach, Dense, rapid flows of inelastic grains under gravity, *Physical Review Letters*, 90, 144302, 2003.
- P. Rajniak, C. Mancinelli, R.T. Chern, F. Stepanek, L. Farber, B.T. Hill, Experimental study of wet granulation in fluidized bed: Impact of the binder properties on the granule morphology, *International Journal of Pharmaceutics*, 334, 92-102, 2007.
- J. Ramaker, M. Albada Jelgersma, P. Vonk, N. Kossen, Scale-down of a high shear pelletisation process : flow profile and growth kinetics, *International Journal of Pharmaceutics*, 166, 89-97, 1998.
- J. Rantanen, J. Yliruusi, Determination of particle size in a fluidized bed granulator with a near-infrared spectroscopy (NIR) set-up, *Pharmacy and Pharmacology Communications*, 4, 73-75, 1998.
- B. Remy, J.G. Khinast, B.J. Glasser, Discrete element simulation of free flowing grains in a four-bladed mixer, *AIChE Journal*, 55, 2035-2048, 2009.
- O. Reynolds, On the dilatancy of media composed of rigid particles in contact, *Philosophical Magazine*, 5, 50, 469, 1885.
- G.K. Reynolds, J.S. Fu, M.J. Cheong, M.J. Hounslow, A.D. Salman, Breakage in granulation: A review, *Chemical Engineering Science*, 60, 3969-3992, 2005.
- M. Rhodes, *Principles of Powder Technology*, John Wiley & Sons, 1990.
- M. Ritala, P. Holm, T. Schæfer, H.G. Kristensen, Influence of liquid bonding strength on power consumption during granulation in a high shear mixer, *Drug Development and Industrial Pharmacy*, 14, 1041-106, 1988.
- A.A. Rizkalla, A.H. Lefebvre, The influence of air and liquid properties on airblast atomisation., *Journal of Fluids Engineering ASME*, 97, 3, 316-320, 1975.
- P. Robert, M.F. Devaux, D. Bertrand, Beyond prediction: extracting relevant information from near infrared spectra, *Journal of Near Infrared Spectroscopy*, 4, 75-84, 1996.
- P. Robert, M.F. Devaux, N. Mouhous, E. Dufour, Monitoring the secondary structure of proteins by near-infrared spectroscopy, *Applied Spectroscopy*, 53, 226-232, 1999.



- I. Roberts, Determination of pressures of granular substances, *Proceedings of the Royal Society*, 36, 225-240, 1884.
- M. Roger, F. Chauchard, V. Bellon-Morel, EPO-PLS external parameter orthogonalisation of PLS application to temperature-independent measurement of sugar content of intact fruits, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 66, 191-204, 2003.
- E. Rondet, Texturation capillaire de milieux granulaires humides, Thèse de doctorat, Université Montpellier 2, France, 2008.
- E. Rondet, M. Delalonde, T. Ruiz, J.P. Desfours, Hydrotextural and dimensional approach for characterising wet granular media agglomerated by kneading, *Chemical Engineering Research and Design*, 86, 560-568, 2008.
- E. Rondet, M. Delalonde, T. Ruiz, J.P. Desfours, Identification of granular compactness during the kneading of a humidified cohesive powder, *Powder Technology*, 191, 1-2, 7-12, 2009.
- E. Rondet, T. Ruiz, M. Delalonde, C. Dupuy, J.P. Desfours, Fractal Law : A new tool for modelling agglomeration process, *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 8, A66 pages, 2010.
- E. Rondet, M. Delalonde, T. Ruiz, J.P. Desfours, Fractal formation description of agglomeration in low shear mixer, *Chemical Engineering Journal*, 164, 376-382, 2010.
- E. Rondet, T. Ruiz, B. Cuq, Caractérisation rhéologique et mécanique d'agglomérats hydratés en mélangeur à faible cisaillement, Paper presented at the 7th Workshop Science et technologie des Poudres, Toulouse, France, July, 4-6<sup>th</sup> 2012. Accepted.
- A. Rosato, K.J. Strandburg, F. Prinz, R.H. Swendsen, Why the brazil nuts are on top: size segregation of particulate matter by shaking, *Physical Review Letters*, 58, 1038-1040, 1987.
- J.M. Rotter, C.J. Brown, E.H. Lahlouh, Patterns of wall pressure on fill-ing a square planform steel silo, *Engineering Structures*, 24, 135-150, 2002.
- T. Ruiz, M. Delalonde, B. Bataille, G. Baylac, C. Dupuy de Crescenzo, Texturing unsaturated granular media submitted to compaction and kneading processes, *Powder Technology*, 154, 43-53, 2005.
- H. Rumpf, The strength of granules and agglomerates, in W. Knepper (Ed.), *Agglomeration*, New-York : Interscience, 379-418, 1962.
- P. Russell, B. Diehl, H. Grinstead, J. Zega, Quantifying liquid coverage and powder flux in high-shear granulators, *Powder Technology*, 134, 223-234, 2003.
- M.M. Saad, Étude des mécanismes d'agglomération des poudres céréaliers: contribution des caractéristiques physiques et chimiques des particules sur leur réactivité. Application pour la fabrication de couscous, Thèse de doctorat, Centres International d'Études Supérieures en Sciences Agronomiques Montpellier, France, 2011.
- M.M. Saad, A. Barkouti, E. Rondet, T. Ruiz, B. Cuq, Study of agglomeration mechanisms of food powders: Application to durum wheat semolina, *Powder Technology*, 208, 399-408, 2011.
- K. Saleh, L. Vialatte, P. Guigon, Wet granulation in a batch high shear mixer, *Chemical Engineering Science*, 60, 3763-3775, 2005.
- K. Saleh, P. Guigon, Caractérisation et analyse des poudres. Propriétés physiques des solides divisés, *Techniques de l'ingénieur* article J2251, 2009a.
- K. Saleh, P. Guigon, Mise en œuvre des poudres. Techniques de granulation humide et liants, *Techniques de l'ingénieur* article J2254, 2009b.
- P.J. Santangelo, P.E. Sojka, A holographic investigation of the near nozzle structure of an effervescent atomizer produced spray, *Atomization and Sprays*, 5, 137-155, 1995.
- K.V.S. Sastry, D.W. Fuerstenau, Mechanisms of agglomerate growth in green pelletization, *Powder technology*, 7, 97-105, 1973.

- S. B. Savage, K. Hutter, The motion of a finite mass of granular material down a rough incline, *Journal of Fluid Mechanics*, 199, 177, 1989.
- S.H. Schaafsma, P. Vonk, P. Segers, N.W.F. Kossen, Description of agglomerates growth, *Powder Technology*, 97, 183-190, 1998.
- S.H. Schaafsma, N.W.F. Kossen, M.T. Mos, L. Blauw, A.C. Hoffman, Effects and control of humidity and particle mixing in fluid-bed granulation, *AIChE Journal*, 45, 1202-1210, 1999.
- T. Schaefer, P. Holm, H.G. Kristensen, Wet granulation in laboratory scale high shear mixer, *Pharmazeutische Industrie*, 52, 1147-1153, 1990a.
- T. Schaefer, C. Mathiesen, Melt pelletization in a high shear mixer: IX. Effects of binder particle size, *International Journal of Pharmaceutics*, 139, 139-148, 1996b.
- T. Schaefer, Growth mechanisms in melt agglomeration in high shear mixers, *Powder Technology*, 117, 68-82, 2001.
- P. Scherington, R. Oliver, *Granulation*, London, Heyden, 1981.
- R.J. Schick, *Spray Technology Reference Guide: Understanding Drop Size, Spray Analysis and Research Services*, Spray Drying Systems Co., U.S.A, 2006.
- J.P. Schon, T. Fournel, C. Fournier, Mesures de caractéristiques d'écoulement par imagerie numérique, *Techniques de l'ingénieur article R2162*, 2007.
- H. Schubert, Tensile strength of agglomerates, *Powder technology*, 11, 107-119, 1975.
- D. Schulze, *Powders and bulk solids : Behavior, characterization, storage and flow*, Springer, 2008.
- A.C. Scott, M.J. Hounslow, T. Instone, Direct evidence of heterogeneity during high shear-granulation, *Powder Technology*, 113, 205-213, 2000.
- W. Seiler, Il couscous, *Molini Itayl*, 33, 417-421, 1982.
- I. Sielamowicz, S. Blonski, T.A. Kowalewski, Optical technique DPIV in measurements of granular material flows, Part 1 of 3 - plane hoppers, *Chemical Engineering Science*, 60, 589-598, 2005.
- I. Sielamowicz, S. Błonski, T.A. Kowalewski, Digital particle image velocimetry (DPIV) technique in measurements of granular material flows, Part 2 of 3-converging hoppers, *Chemical Engineering Science*, 61, 5307-5317, 2006.
- C. Slominski, M. Niedostatkiwicz, J. Tejchman, Application of particle image velocimetry (PIV) for deformation measurement during granular silo flow, *Powder Technology*, 173, 1-18, 2007.
- N. Smirani, V. Falk, N. Monnier, L. Marchal-Heussler, Distribution du liquide de mouillage dans un procédé de granulation par voie humide, *Communication présentée au congrès Science et Technologie des Poudres et Poudres et Matériaux Frittés*, Albi, France, 2007.
- N. Smirani, *Etude cinétique du procédé de granulation humide en mélangeur à haut cisaillement*, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France, 2008.
- M. Sperl, Experiments on corn pressure in silo cells – translation and comment of Janssen's paper from 1895, *Granular Matter*, 8, 59-65, 2006.
- Spray Drying Systems Co., *Engineers' guide to spray drying technology*, U.S.A, 2000.
- R.L. Stewart, J. Bridgwater, D.J. Parker, Granular flow over a flat-bladed stirrer, *Chemical Engineering Science*, 56, 4257-4271, 2001a.
- R.L. Stewart, J. Bridgwater, Y.C. Zhou, A.B. Yu, Simulated and measured flow of granules in a bladed mixer — a detailed comparison, *Chemical Engineering Science*, 56, 5457-5471, 2001b.
- D.A. Steingart, J.W. Evans, Measurements of granular flows in two-dimensional hoppers by particle image velocimetry. Part I: experimental method and results, *Chemical Engineering Science*, 60, 1043-1051, 2005.

- Q. Sun, G. Wang, K. Hu, Some open problems in granular matter mechanics, *Progress in Nature Science*, 19, 523-529, 2009.
- G.I. Tardos, M. Irfan-Khan, P.R. Mort, Critical parameters and limiting conditions in binder granulation of fine powder, *Powder technology*, 94, 245-258, 1997.
- M. Tischer, M.I. Bursik, E.B. Pitman, Kinematics of sand avalanches using particle image velocimetry, *Journal of Sedimentary Research*, 71, 355-365, 2001.
- M. Tixier, O. Pitois, P. Mills, Experimental impact of the history of packing on the mean pressure in silos, *European Physical Journal E*, 14, 241-247, 2004.
- D.N. Travers, A.G. Rogerson, T.M. Jones, A torque arm mixer for studying wet massing, *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, 27, Suppl. 3P, 1975.
- T. Travers, M. Ammi, D. Bideau, A. Gervois, J.C. Messenger, J.P. Troadec, Uniaxial compression of 2d packings of cylinders. Effects of weak disorder, *Europhysical Letters*, 4, 3, 329-332, 1987.
- J. Ubbink, A. Burbidge, R. Mezzenga, Food structure and functionality: a soft matter perspective, *Soft Matter*, 4, 1541-1720, 2008.
- M. Van de Velden, J. Baeyens, J.P.K. Seville, X. Fan, The solids flow in the riser of a Circulating Fluidised Bed (CFB) viewed by Positron Emission Particle Tracking (PEPT), *Powder Technology*, 183, 2, 290-296, 2008.
- K. Van der Dries, O. de Vegt, V. Girard, H. Vromans, Granule breakage phenomena in a high shear mixer : influence of process and formulation variables and consequences on granule homogeneity, *Powder technology*, 133, 228-236, 2003.
- L. Vanel, D. Howell, D. Clark, R.P. Behringer, E. Clément, Memories in sand: Experimental tests of construction history on stress distributions under sandpiles, *Physical Review E*, 60, 5, 5040-5043, 1999.
- L. Vanel, Etude expérimentale de l'équilibre mécanique d'un milieu granulaire : exemples du silo et du tas de sable, Thèse de doctorat, Université Paris 6, France, 1999.
- L. Vanel, P. Claudin, J.P. Bouchaud, M.E. Cates, E. Clément, J.P. Wittmer, Stresses in silos: comparison between theoretical models and new experiments, *Physical Review E*, 84, 7, 1439-1442, 2000.
- T. Vilhelmsen, T. Schaefer, Agglomerate formation and growth mechanisms during melt agglomeration in a rotary processor, *International Journal of Pharmaceutics*, 304, 152-164, 2005.
- H. Wadell, Volume, Shape and roundness of quartz particles, *Journal of Geology*, 43, 3, 250-280, 1935.
- B. Waldie, Growth mechanism and the dependence of the granule size on drop size in fluidised bed granulation, *Chemical Engineering Science*, 46, 2781-2785, 1991.
- P. Walzel, Liquid atomisation, *International Chemical Engineering*, 33, 46-60, 1993.
- F.Y. Wang, X.Y. Ge, N. Balliu, I.T. Cameron, Optimal control and operation of drum granulation processes, *Chemical Engineering Science*, 61, 257-267, 2006.
- S. Watano, Y. Sato, K. Miyamoto, T. Murakami, Scale up of agitation fluidized bed granulation. PartI-IV, *Chemical and Pharmaceutical Bulletin*, 43, 1212-1230, 1995.
- S. Watano, H. Takashima, K. Miyamoto, Scale up of agitation fluidized bed granulation : V. Effect of moisture content on scale up characteristics, *Chemical and Pharmaceutical Bulletin*, 45, 710-714, 1997.
- P.A.L. Wauters, R. Van de Water, J.D. Litster, G.M.H. Meesters, B. Scarlett, Growth and compaction behaviour of copper concentrate granules in a rotating drum, *Powder Technology*, 124, 230-237, 2002.
- A.B. Wellm, Investigation of a high shear mixer/agglomerator, Thèse de doctorat, The University of Birmingham, Royaume-Uni, 1997.

- N. Wellner, C.E.N. Mills, G. Brownsey, R.H. Wilson, N. Brown, J. Freeman, N.G. Halford, P.R. Shewry, P.S. Belton, Changes in protein secondary structure during gluten deformation studied by dynamic fourier transform infrared spectroscopy, *Biomacromolecules*, 6, 255-261, 2005.
- J. Werani, Production experience with the end-point control, *Acta Pharmaceutica Suecica*, 25, 247-266, 1988.
- I.J. Wesley, N. Larsen, B.G. Osborne, J.H. Skerritt, Non-invasive monitoring of dough mixing by near infrared spectroscopy, *Journal of Cereal Science*, 27, 61-69, 1998.
- W.J. Wildeboer, E. Koppendraaier, J.D. Litster, T. Howes, G. Meesters, A novel nucleation apparatus for regime separated granulation, *Powder Technology*, 171, 96-105, 2007.
- P.C. Williams, B.N. Thompson, Influence of whole meal granularity on analysis of HRS wheat for protein and moisture by near infrared reflectance spectroscopy (NRS), *Cereal Chemistry*, 55, 1014-1037, 1978.
- J.C. Williams, D. Al-Salman, A.H. Birks, Measurement of static stresses on the wall of a cylindrical container for particulate solids, *Powder Technology*, 50, 163-175, 1987.
- P. York, R. Rowe, Process control and scale-up of pharmaceutical wet granulation processes: a review, *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52, 269-277, 2001.
- T. Yoshida, F. Tatsuoka, M.S.A. Siddiquee, Shear banding in sands observed in plane strain compression. In: Chambon, R., Desrues, J., Vardoulakis, I. (Eds.), *Localisation and Bifurcation Theory for Soils and Rocks*. Balkema, Rotterdam, pp. 165-181, 1994.
- Y.C. Zhou, B.H. Xu, A.B. Yu, Numerical investigation of the angle of repose of monosized spheres, *Physical Review E*, 64, 021301, 2001.
- Y.C. Zhou, A.B. Yu, R.L. Stewart, J. Bridgwater, Microdynamic analysis of the particle flow in a cylindrical bladed mixer, *Chemical Engineering Science*, 59, 1343-1364, 2004.

## PRODUCTIONS SCIENTIFIQUES PERSONNELLES

### Publications scientifiques en revue internationale à comité de lecture

---

- S. Mandato**, E. Rondet, G. Delaplace, A. Barkouti, L. Galet, P. Accart, T. Ruiz, B. Cuq, Liquids'atomization with different nozzles: Modelling of the effects of processing conditions by dimensional analysis, *Powder Technology*, 224, 323-330, **2012**.
- S. Mandato**, B. Cuq, T. Ruiz, Experimental study of vertical stress profiles in a confined granular bed under static and dynamic conditions, *European Physical Journal E*, 35, 7, 56, **2012**.
- S. Mandato**, T. Ruiz, B. Cuq, What is Janssen's length doing in an agglomerator?, *Powder Technology*, **2012**, *in press*.
- E. Rondet, M. Denavaut, **S. Mandato**, A. Duri, T. Ruiz, B. Cuq, Power consumption profile analysis during wet agglomeration process: Energy approach of wheat powder agglomeration, *Powder Technology*, 229, 214-221, **2012**.

### Communications orales et par poster, en congrès avec actes

---

- S. Mandato**, B. Cuq, T. Ruiz, What is Janssen's length doing in an agglomerator?, 5th International Granulation Workshop, 20-22 Juin, Lausanne, Suisse (poster), **2011**.
- S. Mandato**, E. Rondet, A. Barkouti, L. Galet, P. Accart, T. Ruiz, B. Cuq, Process-formulation coupled approach for the control of liquids' atomization, 13ème Congrès de la Société Française de Génie des Procédés, 29 novembre - 1er décembre, Lille, France, **2011**.
- S. Mandato**, B. Cuq, T. Ruiz, Couscous process engineering: Towards a better understanding of the contribution of the mechanical input during agglomeration, AACC International Annual Meeting, 16-19 Octobre, Palm Springs, États-Unis, **2011**.
- S. Mandato**, E. Rondet, G. Delaplace, A. Barkouti, L. Galet, P. Accart, T. Ruiz, B. Cuq, Single- and two-fluid atomization: Modelling of the effects of process and formulation conditions by dimensional analysis, International Symposium on Spray Dried Products, 19-21 Juin, Saint-Malo (poster), **2012**.
- S. Mandato**, T. Ruiz, B. Cuq, Characterization of particles' motions in a granular bed under a mechanical solicitation, 7<sup>ème</sup> colloque Science et Technologie des Poudres, 4 - 6 juillet, Toulouse, France, **2012**.
- S. Mandato**, B. Cuq, T. Ruiz, Répartitions des contraintes verticales locales dans un milieu granulaire ensilé : d'où vient la pertinence de la loi de Janssen ?, 13<sup>ème</sup> Journée de la Matière Condensée, 27-30 août, Montpellier, France, **2012**.

### Communications en congrès et séminaires (sans actes)

---

- S. Mandato**, B. Cuq, T. Ruiz, A. Sadoudi, Development of an original experimental system to describe particle velocities and powder flow gradients during mixing: Application to durum wheat semolina agglomeration, 9<sup>th</sup> European Young Cereals Scientists and Technologists Workshop, 19-21 Avril, Budapest, Hongrie, **2010**.
- S. Mandato**, T. Ruiz, B. Cuq, Étude des contributions des apports mécaniques à l'agglomération humide de la semoule de blé dur, Journée de l'école doctorale SPSA - Montpellier SupAgro, Université Montpellier II, 10 juin, Montpellier, France (poster), **2011**.
- S. Mandato**, T. Ruiz, B. Cuq, Identification of stress distributions in a laterally confined granular medium: Application to durum wheat semolina agglomeration, 10<sup>th</sup> European Young Cereals Scientists and Technologists Workshop, 23-25 Mai, Helsinki, Finlande, **2011**.





---

## **Génie des procédés d'agglomération de poudres alimentaires: éléments de phénoménologie des apports d'eau et d'énergie mécanique**

---

Le procédé d'agglomération humide trouve des applications dans des secteurs industriels d'importance (*e.g.* agroalimentaire, pharmaceutique, génie civil, *etc.*) et s'appuie encore fortement sur le savoir-faire des opérateurs. Ce travail porte sur l'étude des contributions des apports hydriques et mécaniques à l'agglomération humide d'une poudre réactive (transformation de la semoule de blé dur en grains de couscous). Une approche découplée des apports d'eau et d'énergie mécanique est proposée. L'apport d'eau est étudié par la modélisation de l'influence des paramètres formulation et procédé de l'atomisation liquide sur la taille des gouttes pulvérisées. Les apports d'énergie mécanique sont étudiés à l'aide d'un équipement modèle de malaxage. La répartition des contraintes verticales dans le milieu granulaire à l'état statique est identifiée via une "cartographie 2D des isocontraintes". Le comportement de la poudre au malaxage est étudié au cours du déplacement de la pale dans le malaxeur modèle, par l'analyse des champs de vitesses des particules (obtenus par vélocimétrie par images de particules), et par la mesure des contraintes verticales au niveau de la pale. Une étude de la sthénique et de la cinématique des écoulements granulaires permet d'identifier des longueurs caractéristiques impliquées dans le comportement du milieu granulaire à l'état statique et sous sollicitation mécanique. L'étude couplée des apports hydriques et mécaniques est réalisée par suivi des dynamiques d'agglomération humide dans un malaxeur à pale. Elles sont décrites par des mesures en continu de la consommation énergétique et des mesures in situ des spectres d'absorption proche infra-rouge.

**Mots clés** : Génie des procédés d'agglomération, poudres céréalières, contraintes verticales, physique des milieux granulaires, modèle de Janssen, mesures énergétiques, spectroscopie proche infra-rouge, vélocimétrie par images de particules.

---

## **Engineering approach of food powder agglomeration : phenomenological elements of water and mechanical energy inputs**

---

The wet agglomeration process presents large applications in different industrial fields (*e.g.* food, pharmaceuticals, civil engineering, *etc.*) and is still mainly based on technical know-how and empiricism of operators. This thesis work investigates the contributions of water and mechanical energy inputs to the wet agglomeration of a reactive powder, in the particular case of the transformation of durum wheat semolina in couscous grains. A uncoupled approach of both water and mechanical energy inputs is carried out. The water addition is studied through a modelisation of the influence of operating and formulation parameters of the liquid atomization process on the droplet size. Mechanical energy inputs are studied using a model experimental mixing equipment. Vertical stress distribution in the granular bed in static conditions is identified thanks to the establishment of a "2D iso-stress cartography". The granular medium behaviour under mechanical solicitation is studied during the blade motion in the model mixing equipment thanks to the analysis of granular flows and velocity fields (obtained by particle image velocimetry) and to vertical stress measurements directly on the blade. A sthenic and kinematic study of granular flows allows to identify characteristic lengths involved in the granular medium behaviour under mechanical solicitation. The coupled study of water and mechanical inputs is conducted by following in-line the wet agglomeration dynamics in a pilot mixing device using energetical consumption measurements as well as in situ acquiring of near infrared absorption spectra.

**Key words** : Agglomeration process, cereal-based powders, vertical stresses, physics of granular materials, Janssen's model, energetical measurements, near infrared spectroscopy, PIV.