

Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du  
**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

**Délivré par :**  
Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

**Discipline ou spécialité :**  
Génie des procédés et de l'environnement

---

**Présentée et soutenue par :**  
Chawki AMMARCHA

**le :** jeudi 9 décembre 2010

**Titre :**  
MÉLANGE DES POUDRES EN CONTINU :  
MODÈLES DYNAMIQUES ET  
CARACTÉRISATION DES MÉLANGES EN LIGNE

---

**Ecole doctorale :**  
Mécanique, Énergétique, Génie civil et Procédés (MEGeP)

**Unité de recherche :**  
RAPSODEE

**Directeur(s) de Thèse :**  
Henri BERTHIAUX  
Michel CABASSUD

**Rapporteurs :**

Jamal CHAOUKI  
Pierre GUIGON

**Membre(s) du jury :**

Jamal CHAOUKI  
Pierre GUIGON  
Thierry RUIZ  
Nadine LE BOLAY

---

## REMERCIEMENTS

Au terme de cette thèse, je souhaite remercier toutes les personnes qui m'ont aidé, de près ou de loin, à la réalisation de ce travail et qui m'ont permis par leur soutien et leur avis judicieux de le mener à bien.

Je tiens tout particulièrement à remercier chaleureusement Henri BERTHIAUX et Michel CABBASSUD mes directeurs de thèse qui ont accepté de m'encadrer dans ce travail de recherche. Ils ont su chacun à leur manière me faire bénéficier de leurs précieux conseils et de leurs grandes connaissances.

Je remercie également Cendrine GATUMEL et Jean-Louis DIRION, Enseignants chercheurs à l'Ecole des Mines d'Albi, qui ont participé à l'encadrement et au suivi de cette thèse. Je leur suis reconnaissant pour leur disponibilité et leurs explications claires et détaillées qui m'ont beaucoup aidé pour l'avancée de mon travail.

Mes vifs remerciements vont aussi à Monsieur Pierre GUIGON, Professeur à l'Université de Technologie de Compiègne, ainsi qu'à Monsieur Jamal CHAOUKI, Professeur à l'Ecole Polytechnique de Montréal, pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail.

Par ailleurs, j'exprime ma gratitude à Madame Nadine LE BOLAY, Professeur à l'ENSIACET de Toulouse, et à Monsieur Thierry RUIZ, Maître de conférences à l'Université Montpellier 2, qui m'ont fait l'honneur de participer au jury de soutenance.

Je souhaite également remercier l'ensemble des personnes du centre RAPSODEE qui ont permis la réalisation de ce travail dans une ambiance conviviale. Enfin, mes derniers remerciements s'adressent à mes parents, mes amis et ma femme pour leur soutien moral qui a favorisé l'aboutissement de ce projet.

Merci à tous.

# Table des matières

---

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Etat de l'art en mélange des poudres : synthèse bibliographique</b>	<b>6</b>
Introduction . . . . .	6
1.1 Mécanismes de mélange et de ségrégation . . . . .	8
1.1.1 Mécanismes de mélange . . . . .	8
1.1.2 Mécanismes de ségrégation . . . . .	10
1.1.3 Les différents types de mélanges . . . . .	13
1.2 Facteurs influençant l'équilibre mélange-ségrégation . . . . .	16
1.2.1 Influence de la distribution granulométrique . . . . .	16
1.2.2 Influence des forces inter-particulaires . . . . .	17
1.2.3 Influence de la composition et de la formulation . . . . .	19
1.3 Caractérisation de l'état de mélange : application au mélange en continu . . .	20
1.3.1 Intensité et échelle de ségrégation . . . . .	20
1.3.2 Caractérisation de la qualité de mélange en continu . . . . .	25
1.4 Critère d'acceptation de l'homogénéité . . . . .	27
1.5 Techniques de mesure de l'homogénéité des mélanges en ligne et en temps réel	29
1.5.1 Les méthodes spectroscopiques . . . . .	29
1.5.2 Technique d'analyse d'image . . . . .	40
1.5.3 Autres techniques analytiques . . . . .	45
1.6 Régulation d'un procédé mettant en jeu un écoulement granulaire . . . . .	49
1.7 Modèles dynamiques . . . . .	54
1.7.1 Cinétique de mélange . . . . .	54
1.7.2 Modèle de mélange par diffusion et convection . . . . .	56
1.7.3 Méthodes des éléments discrets DEM . . . . .	60

1.7.4	Modèle stochastique d'une chaîne de Markov . . . . .	64
	Conclusion . . . . .	74
<b>2</b>	<b>Matériels et méthodes</b>	<b>76</b>
2.1	Dispositif expérimental . . . . .	76
2.1.1	Système de dosage . . . . .	77
2.1.2	Système de mélange . . . . .	79
2.2	Caractérisation des produits utilisés . . . . .	81
2.2.1	Distribution granulométrique . . . . .	81
2.2.2	Masse volumique . . . . .	83
2.2.3	Compressibilité et coulabilité . . . . .	84
2.2.4	Attrition . . . . .	85
2.3	Mesures des masses et des débits massiques . . . . .	86
2.3.1	Masse retenue et débit de sortie . . . . .	86
2.3.2	Répartition des particules et des débits internes . . . . .	89
2.4	Mesure de la qualité des mélanges en ligne . . . . .	92
2.4.1	dispositif d'analyse d'images . . . . .	93
2.4.2	Calibrage et validation de la technique d'analyse d'image . . . . .	101
2.4.3	Mesure en continu de la variance et du coefficient de variation . . . . .	104
<b>3</b>	<b>Étude de l'agitation en régime transitoire</b>	<b>106</b>
	Introduction . . . . .	106
3.1	Étude de l'agitation lors de la vidange . . . . .	106
3.1.1	Effet de la vitesse d'agitation et de la masse initiale . . . . .	107
3.1.2	Différents régimes d'écoulement lors de la vidange . . . . .	109
3.2	Étude de l'agitation lors du démarrage . . . . .	115
3.2.1	Évolution de la masse retenue et du débit de sortie . . . . .	115
3.2.2	Détermination des masses retenues limites . . . . .	118
3.2.3	Différents régimes d'écoulement . . . . .	120
3.2.4	Analyse du temps de passage lors du démarrage et en régime permanent	124
3.3	Analyse de l'écoulement à une échelle moindre . . . . .	126
3.3.1	Répartition internes des masses retenues . . . . .	127
3.3.2	Nouvelles corrélations et cohérence des mesures . . . . .	129

3.3.3	Détermination des débits internes . . . . .	130
	Conclusion . . . . .	133
<b>4</b>	<b>Modélisation du procédé par une approche Markovienne</b>	<b>135</b>
	Introduction . . . . .	135
4.1	Développement d'un modèle "Macroscopique" . . . . .	135
4.1.1	Application du modèle en vidange de mélangeur . . . . .	137
4.1.2	Application du modèle lors du démarrage du procédé et en régime permanent . . . . .	143
4.2	Modélisation mésoscopique . . . . .	149
4.2.1	Principe et structure du modèle . . . . .	149
4.2.2	Méthodologie pour la détermination de la matrice des probabilités de transition . . . . .	151
4.2.3	Exemple d'application n°1 : impulsion de traceur . . . . .	154
4.2.4	Exemple d'application n°2 : simulation de l'écoulement des particules en régime transitoire . . . . .	157
4.3	Application du modèle mésoscopique au cas étudié . . . . .	164
4.3.1	Modèle markovien homogène . . . . .	166
4.3.2	Modèle markovien non homogène . . . . .	171
	Conclusion . . . . .	179
<b>5</b>	<b>Étude des mélanges</b>	<b>180</b>
	Introduction . . . . .	180
5.1	Caractérisation du mélange à l'intérieur du mélangeur . . . . .	181
5.1.1	Répartition massique . . . . .	181
5.1.2	Temps de passage des produits purs et du mélange . . . . .	183
5.1.3	Composition du mélange à l'intérieur du mélangeur . . . . .	184
5.1.4	Détermination des masses retenues limites . . . . .	186
5.2	Effets de la l'agitation, de l'échelle d'observation et de la composition sur l'homogénéité d'un mélange binaire . . . . .	189
5.2.1	Étude d'un mélange binaire de 50% de composition (Mélange 1) . . . . .	190
5.2.2	Étude d'un mélange binaire de 12,5% de composition (Mélange 2) . . . . .	201
5.3	Modélisation markovienne du mélange binaire . . . . .	207

5.3.1	Élaboration du modèle de mélange . . . . .	207
5.3.2	Détermination des matrices de transition . . . . .	209
5.3.3	Démarrage du procédé et régime permanent . . . . .	212
5.3.4	Effet d'un échelon appliqué sur la vitesse d'agitation N . . . . .	218
5.3.5	Conclusion . . . . .	222
<b>Conclusion générale</b>		<b>224</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>228</b>
<b>Annexes</b>		<b>239</b>
.1	Annexe 1 . . . . .	239
.2	Annexe 2 . . . . .	240
.3	Annexe 3 . . . . .	241
.4	Annexe 4 . . . . .	245
.5	Annexe 5 . . . . .	247
.6	Annexe 6 . . . . .	248
.7	Annexe 7 . . . . .	253
.8	Annexe 8 . . . . .	255
.9	Annexe 9 . . . . .	256
.10	Annexe 10 . . . . .	257
.11	Annexe 11 . . . . .	261
<b>Résumé</b>		<b>264</b>
<b>Abstract</b>		<b>265</b>
<b>Nomenclature</b>		<b>266</b>

# Introduction générale

---

Le mélange de poudres est une opération essentielle dans plusieurs secteurs d'activités industriels tels que la pharmacie, la chimie fine, l'agro-alimentaire, le ciment...

Quel que soit le domaine d'application, l'objectif de cette opération est d'obtenir des produits intermédiaires ou finis avec la répartition la plus homogène possible des différents constituants. Dans l'industrie pharmaceutique par exemple, un comprimé est obtenu à partir du mélange de plusieurs constituants granulaires. Etant donné que le mélange final sera réparti en plusieurs unités qui devront contenir à une certaine tolérance près la même quantité d'excipients et de produits actifs, la qualité du mélange réalisé va conditionner d'emblée la qualité du produit fini. Un autre exemple est celui de l'industrie agroalimentaire, qui cherche, à partir de l'opération de mélange des solides, à produire des substances alimentaires dont les proportions en chaque constituant sont les plus proches possibles de la composition du lot total (voir figure 1).



FIGURE 1 – Mélange multiconstituant d'un produit alimentaire

A l'heure actuelle, la caractérisation d'un mélange de solides divisés et la validation du procédé restent encore difficiles par rapport à un mélange de liquides. En effet, ceci est dû à la complexité des interactions entre les propriétés physicochimiques des particules (densité, taille, morphologie, forme, charge électrostatique, impuretés, profil de dégradation ...), les caractéristiques géométriques des mélangeurs et les paramètres opératoires d'agitation. Ceci rend difficile la compréhension et la modélisation dynamique de l'écoulement dans ces appareils. De plus, la plupart des études réalisées sont de nature expérimentale et ne proposent que des relations empiriques ; rares sont celles consacrées à la nature phénoménologique des mélanges de poudres (Pernenkil et Cooney.,2006 [1]).

Industriellement, l'opération de mélange des poudres est souvent réalisée en fonctionnement discontinu "batch" (voir figure 2) : tous les ingrédients sont introduits initialement dans l'appareil, et sont ensuite mélangés pendant le temps nécessaire pour obtenir un "bon" degré de mélange. A la fin de cette opération, plusieurs échantillons sont prélevés et analysés pour estimer d'abord la qualité du mélange obtenu, et de la comparer ensuite avec les normes exigées pour que le mélange soit considéré comme étant homogène.

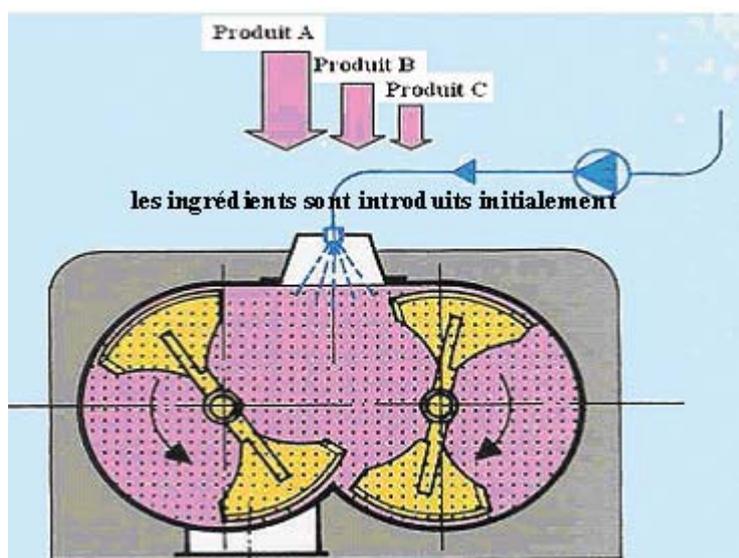


FIGURE 2 – Le mélange des poudres est souvent réalisé en fonctionnement batch

De plus en plus de problèmes rencontrés lors des mélanges de poudres en batch sont mis à jour. Ils résultent principalement du renforcement des restrictions et des normes sur les contenus et l'uniformité des produits d'une part, et sur la hausse des coûts de rejets ou de retraitements des lots déclarés non-conformes d'autre part, sans oublier tous les pro-

blèmes liés à l'optimisation du temps de mélange et au chargement, vidange et nettoyage du mélangeur. Ceci, peut expliquer l'apparition d'une nouvelle tendance en direction des procédés de mélange des poudres en continu. Ceux-ci constituent une alternative intéressante à ces procédés discontinus traditionnels car ils présentent plusieurs avantages tels que l'augmentation de la productivité d'une manière significative, la gestion efficace du procédé, l'utilisation intensive des installations, le faible encombrement, et notamment la possibilité d'automatiser et de contrôler l'installation de mélange.

Cette thèse est la continuité des travaux effectués dans notre laboratoire sur le mélange des poudres en continu [2, 3], l'enjeu étant d'optimiser la conception et le fonctionnement de ce type de mélangeurs en regard d'un critère de qualité des mélanges. En particulier, on s'intéresse au développement d'une méthodologie pour le contrôle en ligne et en temps réel de l'homogénéité des mélanges de poudres en continu.

Comme le montre la figure 3, pour pouvoir contrôler le procédé de mélange des poudres en continu, nous devons être capable de mesurer en temps réel la qualité du produit final, pour utiliser ensuite cette mesure dans la régulation du procédé.

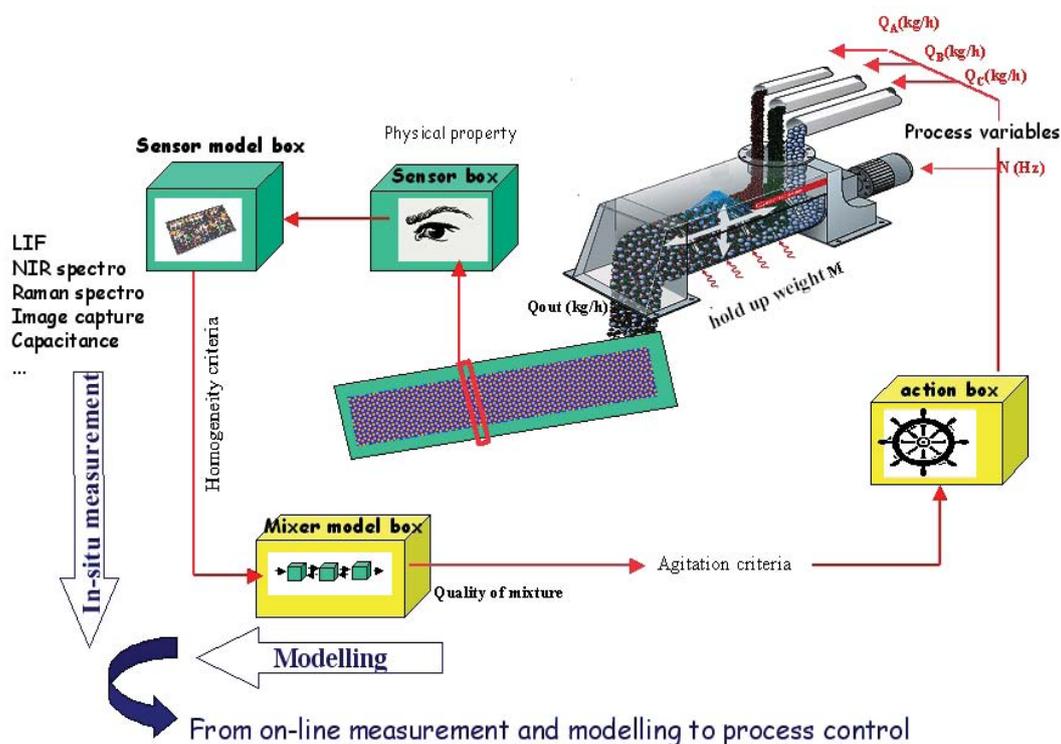


FIGURE 3 – De la mesure en ligne, en passant par la modélisation, au contrôle-commande de procédé [4]

Cependant, malgré les progrès continus des techniques de mesure en ligne, la généralisation des mélangeurs continus dans l'industrie est freinée par le manque de méthodologie avérée pour le contrôle - commande du procédé. En effet, la conception d'un système de commande du mélangeur continu nécessite de posséder un ou plusieurs modèles capables de relier en temps réel les sorties du système (débit de sortie, masse retenue, homogénéité...) aux paramètres d'entrée (débit d'alimentation, vitesse d'agitation...). C'est pour cela que la modélisation dynamique de l'écoulement, le développement de techniques de mesures en-ligne de l'homogénéité des poudres, la méthodologie pour le traitement de l'information mesurée et la recherche de corrélations simples entre l'homogénéité de mélange et les variables opératoires constituent les principaux défis que nous devons chercher à relever à travers ce travail de thèse.

Dans le premier chapitre de ce travail, nous aborderons les principales notions et concepts, présents dans la littérature, régissant le mélange des poudres en continu. Nous y ferons par la suite une revue des techniques analytiques les plus utilisées dans le domaine des solides divisés. Nous nous intéresserons principalement à celles qui ont le potentiel pour être incorporées dans une boucle de contrôle-commande de procédé de mélange en continu. Finalement, nous concluons ce chapitre par un résumé des différents modèles proposés dans la littérature pour décrire l'écoulement des particules dans les mélangeurs et notamment les mélangeurs continus.

Le deuxième chapitre aura pour but de présenter le matériel expérimental étudié, et de caractériser les produits utilisés. La démarche expérimentale et notamment celle développée pour mesurer en ligne et en continu la qualité du mélange, par analyse d'images, sera également présentée dans ce chapitre.

Ensuite, après avoir étudié dans le chapitre 3 l'effet des conditions d'agitation sur la dynamique de l'écoulement d'un produit pur, nous développerons dans le chapitre 4 une approche de modélisation, basée sur les chaînes de Markov, permettant de décrire l'écoulement granulaire dans un mélangeur continu. Le modèle développé a pour objectif de prédire l'évolution du système étudié dans plusieurs cas de figure, incluant le régime permanent et le régime transitoire.

Finalement, dans le chapitre 5 nous étudierons l'effet de l'action de l'agitation et de la composition du mélange sur le degré d'homogénéité obtenu dans le cas d'un mélange binaire. En particulier, nous chercherons, à travers cette étude, à savoir à quel point la vitesse d'agitation peut être utilisée pour ajuster et réguler la qualité du mélange (dans le cas d'une formulation donnée). Ceci doit nous permettre d'établir un lien entre la dynamique de l'écoulement des particules et la qualité du mélange.

L'approche de modélisation Markovienne sera sollicitée à nouveau dans ce chapitre. Cette fois-ci, le modèle développé servira à décrire l'évolution de la composition du mélange (et par conséquent sa qualité) sous différentes conditions d'agitation. Ceci est un point important dans la perspective de développer une stratégie de contrôle commande de ce procédé.

# Etat de l'art en mélange des poudres : synthèse bibliographique

---

## Introduction

Les matériaux granulaires font l'objet d'un nombre important de travaux [5, 6, 7] depuis plusieurs années. Cet engouement est motivé par la variété des applications industrielles, ainsi que par la richesse des comportements observés, qui pose des questions fondamentales nouvelles [8]. D'une manière générale, l'ensemble des procédés mettant en jeu un écoulement de particules solides ont des caractéristiques particulières qui les rendent difficiles à contrôler. Nous nous intéressons ici principalement à l'opération de mélange des poudres en continu qui reçoit depuis quelques années une attention grandissante de la part de l'industrie, notamment pharmaceutique, et des laboratoires de recherche.

Bien que le mélange de poudres soit une opération très courante, son approche reste très empirique ; les études consacrées à ce type de mélange semblent relativement insuffisantes par rapport à toute l'attention scientifique consacrée aux mélanges des fluides.

Plus spécifiquement, les écoulements granulaires dans les différents mélangeurs continus (industriels) ne sont pas simples à maîtriser. Leurs comportements sont loin d'être compris et aucune approche ne permet à l'heure actuelle de décrire la complexité des phénomènes observés. Une première difficulté fondamentale de cette opération est qu'elle est réalisée à partir d'un grand nombre de particules, de différentes propriétés d'écoulement, pour lesquelles les mouvements sont caractérisés par un aspect fluctuant et aléatoire. Ceci entraîne souvent une forte instabilité de composition de mélange liée principalement aux conditions

d'agitation et aux fluctuations des débits d'entrée du mélangeur.

En effet, les milieux granulaires en écoulement dissipent de l'énergie, soit par frottement entre grains et parois ou entre grains eux-même, soit dans les collisions. Ceci explique que les écoulements granulaires ne soient observés que dans des situations où de l'énergie est continuellement injectée dans le système, au moyen de vibrations, en utilisant la gravité comme dans les chutes, ou bien en utilisant un moyen d'agitation pour assurer les mouvements des particules (pétrissage, fluidisation, cisaillement, brassage...). D'après Ildefonse [9], ce caractère dissipatif est à l'origine de l'essentiel des instabilités observées dans les milieux granulaires.

D'autre part, par opposition aux molécules d'un système monophasique liquide ou gazeux qui peuvent diffuser à des vitesses différentes, l'homogénéisation du mélange de solides est souvent accompagnée d'un processus de démixtion appelé ségrégation qui ne permet pas l'obtention d'un mélange parfait (Harnby[10]). L'état final d'un mélange peut ainsi être vu comme un équilibre réversible entre un processus d'homogénéisation et de démixtion (figure 1.1). Autrement dit, un mélange de poudres n'est jamais dans un état irréversible et tout mouvement peut entraîner un déplacement de l'équilibre mélange/ségrégation. Ainsi, le phénomène de ségrégation est extrêmement lié aux propriétés d'écoulement des particules ; D'après Deymere.,2007[11] une poudre qui ne s'écoule pas bien ne ségrège pas. Par contre, un mélange de solides différents qui s'écoulent très bien aura tendance à ségréger.

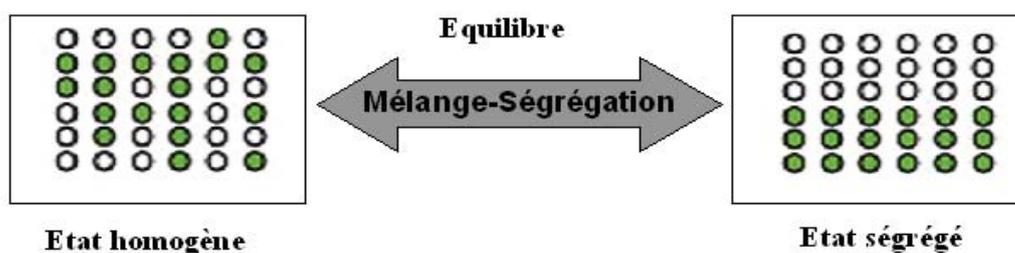


FIGURE 1.1 – Equilibre entre mélange et démixtion

## 1.1 Mécanismes de mélange et de ségrégation

### 1.1.1 Mécanismes de mélange

L'objectif d'une opération de mélange est d'obtenir une répartition la plus homogène possible des particules. Dans le cas des liquides, mélanger deux ou plusieurs phases nécessite de déplacer ces phases les unes par rapport aux autres, de façon à faire perdre à chaque molécule la mémoire de son environnement initial. Trois mécanismes de base peuvent être invoqués : diffusion à l'échelle moléculaire, convection et cisaillement aux échelles supérieures. Pour mélanger plusieurs phases granulaires, il faut de la même façon déplacer les grains les uns par rapport aux autres à l'aide de ces trois mêmes mécanismes. Lacey (1954) a été le premier à redéfinir ces mécanismes qui permettent le mouvement des particules solides et qui rend le mélange des poudres possible[12] :

- **Le mélange par diffusion** : il s'agit d'un déplacement individuel des particules dans des directions aléatoires, les amenant à se positionner les unes par rapport aux autres, ce qui conduit à des réarrangements à l'échelle de quelques particules (voir figure 1.2). A la différence de la diffusion des liquides qui est créée naturellement suite à un gradient de concentration, la diffusion des solides nécessite un apport d'énergie qui permet le mouvement, la collision entre grains, et la dispersion des particules.

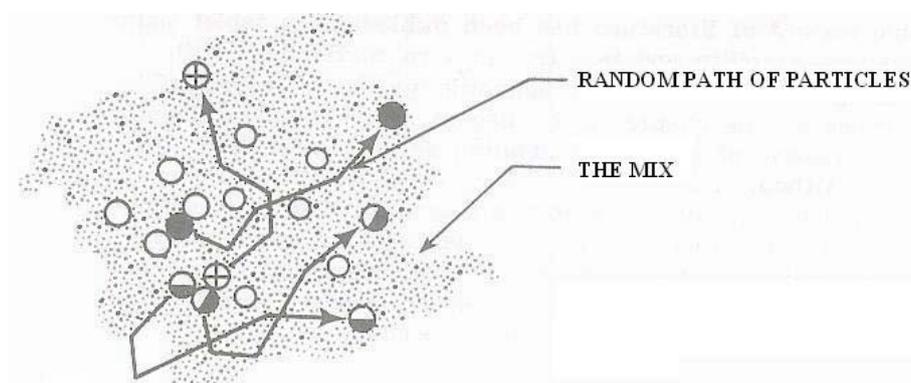


FIGURE 1.2 – Mélange par diffusion d'après Lantz et Schwartz.,1990[13]

- **Le mélange par convection** : il s'agit du déplacement des particules par blocs (voir figure 1.3). Ceci nécessite le plus souvent l'intervention d'une force extérieure (une pale d'agitation par exemple) pour amener une énergie suffisante au système, conduisant à des réarrangements à l'échelle de l'appareil. Ce mécanisme seul ne permet ainsi qu'une

homogénéité à grande échelle.

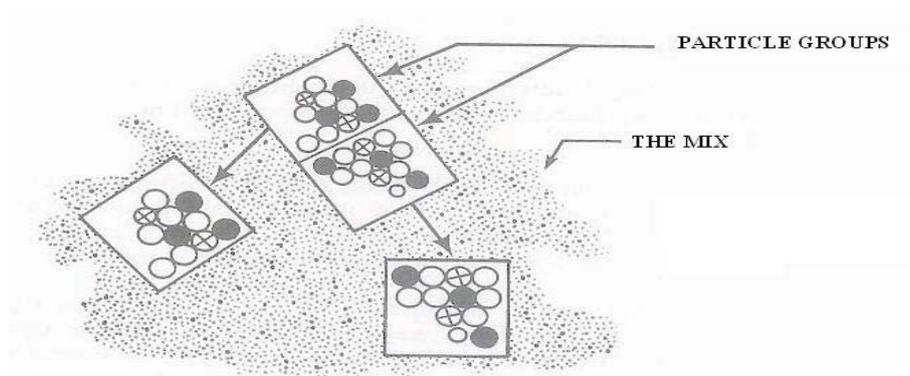


FIGURE 1.3 – Mélange par convection d’après Lantz et Schwartz.,1990[13]

- **Le mélange par cisaillement** : il s’agit d’un déplacement des particules en couches (voir figure 1.4). Il apparaît des plans de déplacement de particules au sein du mélange. Le mouvement des particules est considéré comme une sorte de « convection de surface », ce mécanisme nécessite une énergie intermédiaire par rapport aux deux autres.

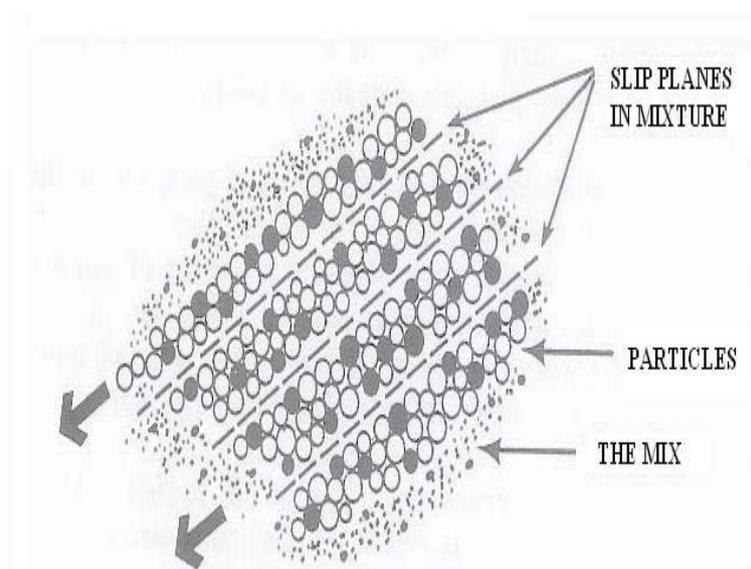


FIGURE 1.4 – Mélange par cisaillement d’après Lantz et Schwartz.,1990[13]

Généralement les mécanismes de mélange par convection et par cisaillement permettent d’atteindre rapidement un bon degré de mélange à l’échelle macroscopique, tandis que le mécanisme de dispersion (diffusion) permet de mélanger à une échelle plus petite (voir figure 1.5). La prépondérance de l’un ou l’autre de ces mécanismes est imposée par le type de mélangeur utilisé, mais aussi par la nature des particules.

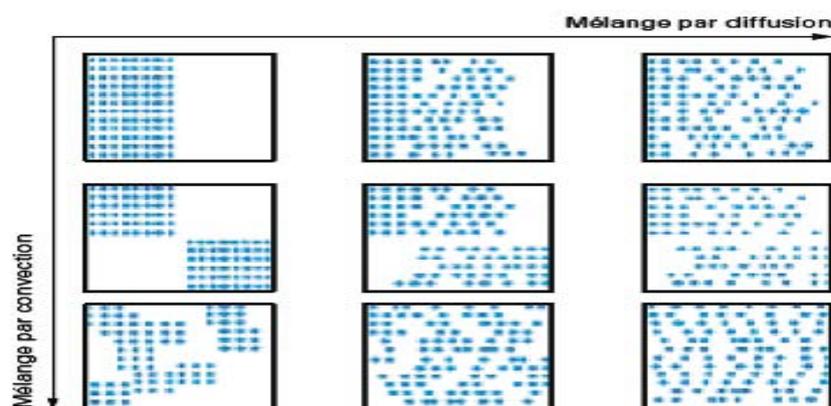


FIGURE 1.5 – Mélange par convection et diffusion (Schofield 1970) [14]

### 1.1.2 Mécanismes de ségrégation

L'opération de mélange des solides divisés est toujours accompagnée d'un processus compétitif de démixage appelé ségrégation. Ce processus aboutit généralement à une répartition spatiale non homogène des différentes espèces de grains. Dans le cas des liquides, la ségrégation est due aux éléments de fluides de concentrations différentes, mais disparaît lorsqu'on atteint une distribution uniforme. En revanche, dans le cas d'un mélange des solides divisés, les causes de ségrégation sont nombreuses et liées principalement à des différences de propriétés physiques des produits, telles que l'écart de taille, les différences de densité, de forme ou de coefficient de frottement des espèces du mélange. D'autres facteurs secondaire peuvent également induire une ségrégation. Ici, on peut citer : l'humidité, les charges électrostatiques, les effets de surface....Selon Harnby [10], parmi tous ces facteurs, la taille des particule est la variable la plus importante dans la détermination des caractéristiques d'un mélange des poudres en écoulement :

- (a) si le mélange est composé de particules de tailles  $> 75\mu m$  , la ségrégation est obtenue rapidement.
- (b) si la taille des particules est réduite en dessous de  $75\mu m$ , on peut observer une diminution de la ségrégation.
- (c) en dessous de  $10\mu m$ , il n'y a presque plus de ségrégation.

En plus de l'effet de la taille des particules, Harnby [10] a répertorié les principaux facteurs responsables de la ségrégation par ordre de leur importance :

- La différence de taille des particules.
- La différence de forme des particules.
- La différence de densité.
- La différence de résistance.

La prédominance d'effets de taille et de forme a été confirmée par plusieurs autres chercheurs [15, 16, 17].

Selon(Williams.,1976[18]), la ségrégation peut revêtir trois aspects : la percolation, la séparation par vibration et la séparation due aux trajectoires .

### Ségrégation par percolation des fines

La mobilité individuelle des particules dans le mélange dépend de l'aptitude de celles-ci à percoler dans les pores. Les particules les plus fines peuvent se déplacer plus facilement que les grosses particules, des lacunes interparticulaires peuvent apparaître et favoriser l'écoulement d'une certaine partie de la population, principalement les fines (voir figure1.6).

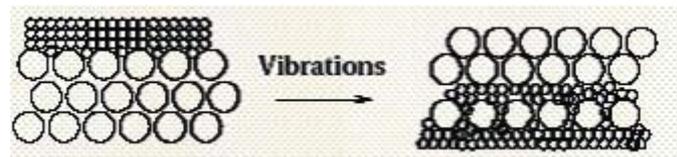


FIGURE 1.6 – Ségrégation par percolation des fines sous l'effet de la vibration Campbell & Bridgwater.,1973[19]

Sur la photo de la figure 1.7, on observe une ségrégation dans un tas de poudre qui contient un mélange 50 :50 de grains de même densité et de tailles différentes. On remarque que les grosses particules blanches se retrouvent plutôt sur la périphérie, le centre du tas étant composée à 70% de petites particules noires. Généralement, ce type de ségrégation par percolation se produit lors du chargement et du déchargement des trémies de stockage. Quand un petit tas a été formé, les petites particules ont en effet moins de chance que les grosses de rouler jusqu'au bas du tas car elles voient un espace intergranulaire plus important que les grosses. Par la suite, et compte tenu des mouvements survenant à la surface du tas, les fines auront tendance à percoler vers l'intérieur.

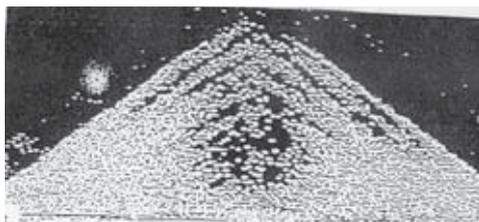


FIGURE 1.7 – Ségrégation par percolation des particules de différente taille sous l’effet d’un déversement en tas (particules blanches (3,1 mm) & particules noires (1,1 mm))

### Ségrégation due aux trajectoires

Si des particules de tailles différentes se déplacent verticalement (figure 1.8), les vitesses de chutes atteintes varient avec le carré de leur diamètre : une particule de diamètre  $dp$  et de densité  $\rho_s$ , projetée horizontalement à une vitesse initiale  $u_0$ , parcourt une distance  $\rho_s * dp * u_0 / (18 * \mu_v)$ , où  $\mu_v$  est la viscosité du fluide. Si le rapport des diamètres des particules est 2, le rapport de leur vitesse sera de 4. Un écart de taille important donnera lieu à un écart de vitesse de déplacement encore plus grand, ce qui favorisera d’autant la ségrégation.

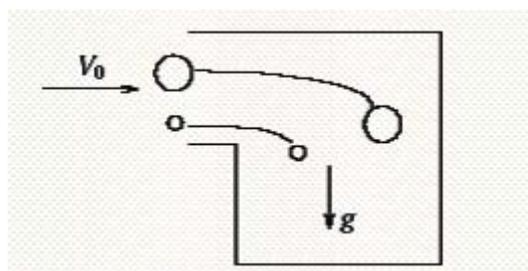


FIGURE 1.8 – Ségrégation due aux trajectoires (d’après Harnby[10])

### Ségrégation par élutriation

Selon Massol-Chaudeur[17], dans une chute de mélange de poudres (figure 1.9), si la distribution granulométrique contient des particules très fines, alors la chute de ces fines peut se faire à une vitesse inférieure à celle de l’air chassé par les particules les plus grosses ; un entraînement de poussière peut s’effectuer par un déplacement d’air, ce qui entraînera une ségrégation par taille. Cet effet s’accroît dans une enceinte fermée sans circulation d’air.

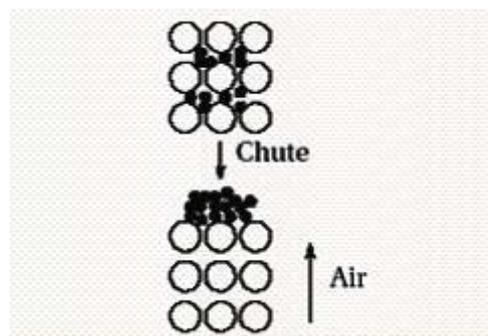


FIGURE 1.9 – Ségrégation par élutriation (d’après Massol-Chaudeur[17])

Pour limiter le phénomène de ségrégation, les industriels ajoutent des additifs, appelés excipients anti-ségrégant, qui permettent de réduire l’écart entre les propriétés des poudres et d’accroître l’homogénéité de mélange. A titre d’exemple, nous citons ici le Métakaolin qui est un matériaux finement divisé à caractère inorganique (silicate d’alumine), et qui peut être incorporé au béton afin d’en améliorer certaines propriétés. Du fait de sa texture, il participe activement à l’homogénéité du mélange.

Il est également possible de réduire la ségrégation en jouant sur la taille des particules, car les produits de taille inférieure à  $10\mu m$  ne connaissent pas de ségrégation, et le broyage préalable de l’un des constituants peut être alors souhaitable. Ainsi, Yalkowsky et Bolton.,1990[20] ont montré que, pour satisfaire aux normes d’homogénéité, un principe actif présentant une distribution granulométrique étalée devait subir une réduction de celle-ci pour limiter les phénomènes de ségrégation.

Il existe également d’autres éléments importants qui peuvent favoriser ou limiter ce phénomène de ségrégation, comme le choix judicieux du mélangeur et de ses conditions opératoires. En effet, dans le cas des poudres à écoulement libre, il faut choisir un mélangeur qui privilégie le déplacement de groupes de particules en limitant leurs mouvements individuels.

### 1.1.3 Les différents types de mélanges

Il existe en théorie plusieurs types de mélanges, nous représentons dans la figure 1.10 les principaux états dans lesquels un mélange peut exister (Poux et al 1991[21]).



FIGURE 1.10 – Les différents types de mélange selon Poux et al 1991[21]

Le mélange parfait est un mélange pour lequel tous les échantillons prélevés ont exactement la même composition que le mélange total. La figure 1.11(a) illustre un exemple d'un mélange binaire parfait composé de deux produits (noir et blanc) qui sont représentés par des surfaces carrées.

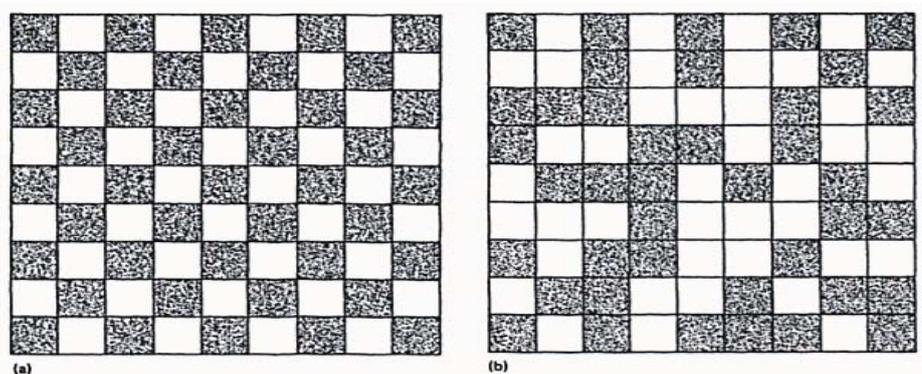


FIGURE 1.11 – (a) mélange binaire parfait ; (b) mélange binaire aléatoire (d'après Lantz et Schwartz [13])

Si à chaque échantillonnage, nous prélevons deux carrés adjacents on obtiendrait une composition identique à celui du lot total. Dans le cas d'un mélange binaire de 50 :50, chaque particule d'un constituant n'a pour voisin que des particules de l'autre constituant. Les échantillons prélevés contiennent le même nombre de particules de chaque constituant ; ce qui signifie que la variance de ce mélange est nulle. Industriellement, l'obtention d'un tel mélange ne semble pas réalisable.

Comme le mélange parfait ne peut pas être assuré, d'autres alternatives peuvent être envisagées afin obtenir un mélange acceptable pour une formulation donnée. C'est le cas du mélange aléatoire « randomisé », et du mélange ordonné.

Le meilleur mélange physiquement réalisable est le mélange aléatoire. Les particules constituant ce mélange sont distribuées de façon aléatoire (voir figure 1.11)(b). En d'autres

mots, la probabilité de trouver une particule d'un des constituants est la même en tout point du mélange (Staniforth.,1982[22, 23]).

Le concept de mélange aléatoire a été proposé pour la première fois par Lacey.,1943[24] et plus tard développé par Stange.,1954[25]. Lacey a montré que l'écart-type théorique de la composition du mélange s'écrit sous a forme suivante :

$$\sigma_t = \sqrt{\frac{ab}{n_p}}$$

Où a et b sont les proportions des deux ingrédients dans le mélange, et  $n_p$  représente le nombre total de particules dans le mélange.

Par conséquent, si le mélange réalisé contient 20000 particules avec une fraction de 2% de composé « a », dans le meilleur cas le mélange aléatoire réalisé aura une variance de 0.0099% (voir[13] ). Cet exemple considère que les particules « a » et « b » ont la même taille et la même densité. En pratique, le degré de ce mélange aléatoire est déterminé à partir du prélèvement d'une série d'échantillons.

L'état de ce mélange aléatoire a été considéré par Weinekötter et Reh.,1995[26] et plus tard par Ghaderi.,2003[27], comme la limite pouvant être obtenue par un mélangeur continu de poudres. En effet, même un mélangeur idéal ne peut pas permettre d'atteindre une distribution des particules meilleure que cette limite du mélange aléatoire (Pernenkil et Cooney.,2006[1]).

Le deuxième type de mélange qui peut être considéré comme alternatif au mélange parfait est celui du mélange ordonné. La théorie de ce mélange a été développée par Hersey.,1975 [28]. Ce dernier a défini le mélange ordonné comme étant un mélange dans lequel il existe des interactions entre les différents constituants donnant ainsi naissance à une véritable structure. Ce concept s'applique à des particules de tailles, de formes et de densités très différentes. Les fines particules viennent adhérer lors du mélange sur les plus grandes particules formant ainsi un certain ordre (voir figure 1.12). Dans cette théorie du mélange ordonné, on trouve l'exemple du principe actif de petite taille particulière mélangé avec un excipient de taille particulière plus importante (Yip et al., 1976[29] ). Etant donné les différences de propriétés (densité, taille,...) entre les deux types de constituants, le mélange ne serait pas possible sans l'existence d'interactions entre les petites et les grosses particules.

Le mélange ordonné est souvent considéré comme un état très proche du mélange parfait.

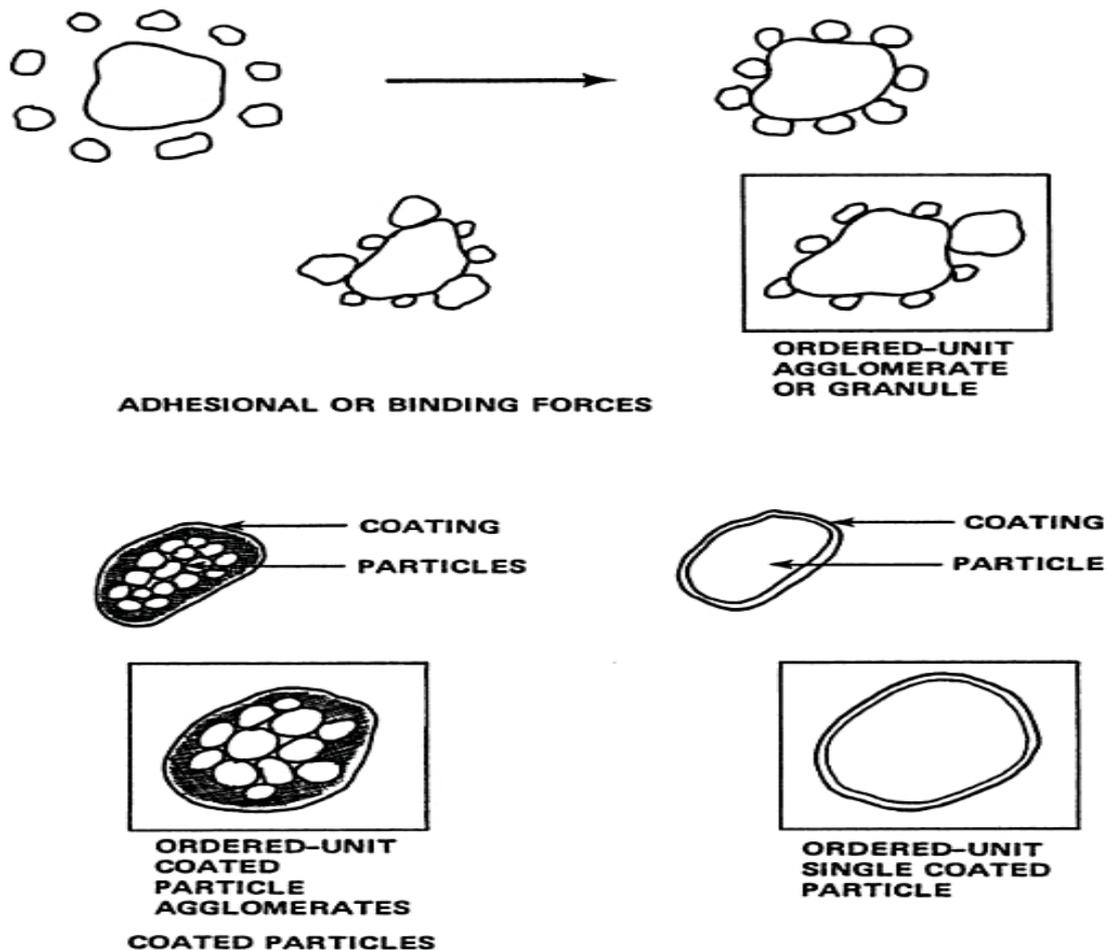


FIGURE 1.12 – Mélange ordonné par adhésion et enrobage[13]

## 1.2 Facteurs influençant l'équilibre mélange-ségrégation

### 1.2.1 Influence de la distribution granulométrique

#### Taille des particules

Dans le cas d'un mélange des poudres contenant des grains de diamètres inférieurs à  $80\mu m$ , on constate que les forces attractives de surface (Van der Waals, capillaires etc...) deviennent de l'ordre de grandeur du poids de la particule : ce milieu granulaire est alors cohésif. Du fait de leur faible mobilité individuelle, les poudres de ce milieu ont une faible tendance à la ségrégation. Par contre, elles posent des problèmes d'écoulement, et elles nécessitent une action intensive afin de briser la résistance des petites masses « agglomérées ».

Pour des diamètres supérieurs à  $100\mu m$ , les poudres sont dites « non cohésives ». Ces poudres à écoulement libre ont une grande mobilité et se déplacent individuellement puisque

la gravité devient la force prépondérante agissant sur les particules. Elles forment peu de poussière et ne posent pas de réels problèmes de dosage. Par contre, cette liberté de mouvement leur donne une forte tendance à ségréger. Ainsi, l'équilibre mélange/ségrégation reste réversible, et si le mélange peut être réalisé avec une qualité satisfaisante, sa stabilité n'est pas assurée. Le mélange de ce type de poudres doit s'effectuer dans un mélangeur dans lequel la liberté de mouvement des particules est limitée et dont le fonctionnement est plutôt basé sur le déplacement de groupes de particules au sein du mélangeur.

#### **Forme des particules :**

Dans un mélange de solides divisés, plus les surfaces de contact entre particules sont faibles, meilleures sont les caractéristiques de l'écoulement des produits. Ces surfaces de contact sont déterminées et imposées par la forme des particules. D'une manière générale, les particules sphériques et régulières présentent de faibles surfaces de contact, ce qui permet d'atteindre plus rapidement un bon degré d'homogénéité (Wong et al.,1990[30]). En pratique, il est préférable d'utiliser des excipients constitués de particules sphériques, afin d'augmenter les propriétés d'écoulement et minimiser la ségrégation.

#### **Densité des particules :**

Une différence de densité entre les constituants influencera la qualité du mélange, et favorisera la ségrégation. En pratique les particules les plus denses auront tendance à être attirées vers le bas tandis que les particules les plus légères resteront au sommet du tas de poudres.

### **1.2.2 Influence des forces inter-particulaires**

#### **Influence des charges électrostatiques :**

Lors de l'opération de mélange, des charges électrostatiques peuvent se concentrer à la surface des particules suite à divers contacts avec les parois du mélangeur ou entre elles. Pour qu'il y ait formation de cette électricité statique, il faut qu'il y ait un contact de deux matériaux de natures différentes, un échange de charges et une séparation des deux matériaux. Les forces électrostatiques de cohésion entre particules sont d'autant plus grandes que les dimensions de ces dernières sont faibles.

Sous l'effet de ces charges électrostatiques, certaines particules peuvent adhérer préférentiellement à la paroi du mélangeur, d'autres se regrouper entre elles (voir figure 1.13), ce qui favorise un mouvement non aléatoire pouvant impliquer une ségrégation (Rowley[31]).

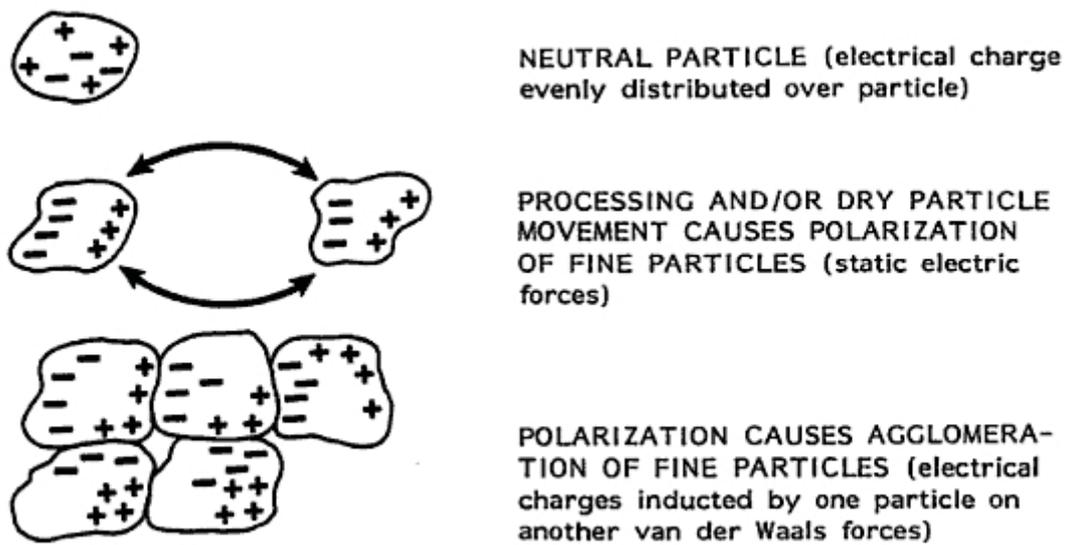


FIGURE 1.13 – Effet des forces inter-particulaires dans le cas des poudres fines : charges électrostatique et force de Van der Waals [13]

#### **Influence des forces de Van der Waals :**

Les forces de Van der Waals sont des forces attractives entre des molécules séparées par une distance grande par rapport à leur taille. En 1956, Lifshitz ([32]) a étendu cette théorie dans le cas des solides divisés, il a proposé une formule pour déterminer les forces d'attraction entre deux particules sphériques :

$$F = \frac{h_w}{8\pi Z_0^2} \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2} \quad (1.1)$$

$R_1$  et  $R_2$  sont ici les rayons respectifs de chaque sphère ;  $Z_0$  est la distance entre les deux particules ;  $h_w$  est une constante du système qui dépend de sa densité optique.

Les forces d'attraction diminuent avec la distance qui sépare les deux particules.

La relation 1.1 peut s'étendre à l'interaction entre une sphère et la paroi :

$$F = \frac{h_w}{8\pi Z_0^2} R \quad (1.2)$$

$R$  est Le rayon de la sphère et  $Z_0$  est la distance entre la sphère et la paroi.

Le champ d'action des forces de Van der Waals est bien inférieur à celui des forces électrostatiques. alors que les forces électrostatiques sont dépendantes de la nature du matériau, de

ses propriétés de surface et des impuretés, les forces de Van der Waals sont dépendantes de la compacité du lit de poudre affectant directement les distances interparticulaires.

### **1.2.3 Influence de la composition et de la formulation**

Dans une récente étude(2002), Kornchankul et. al., [33] ont étudié l'effet de la concentration en matière active sur l'homogénéité de mélange. Il ont montré que pour deux formulations qui se différencient uniquement par leur teneur en matière active, l'homogénéité est atteinte plus rapidement pour la formulation qui contient le plus de matière active. Dans le cas d'une formulation riche en matière active, il faut moins de temps pour permettre une bonne distribution des particules du principe actif dans l'ensemble du mélange. Lorsque la teneur en principe actif est relativement faible, le nombre de particules doit augmenter dans une dose unitaire. Les particules de principe actif doivent alors être souvent micronisées. D'une manière générale, il est difficile d'atteindre un bon degré d'homogénéité pour les mélanges faiblement dosés (< 1%), pour lesquelles deux grands problèmes peuvent se produire : l'incapacité d'un mélangeur à briser les agglomérats et la ségrégation (Bodson [34]).

Le choix de la nature des excipients utilisés dans une formulation donnée peut favoriser et contribuer à l'obtention d'un mélange homogène. C'est le cas notamment des agents régulateurs d'écoulement. Les effets produits par les différents régulateurs d'écoulement dépendent d'une part de leur nature chimique (ex : possibilité de ponts hydrogène avec les autres constituants) et d'autre part, de propriétés physiques de leurs particules comme la taille et la forme. La silice colloïdale anhydre est ainsi l'un des régulateurs d'écoulement les plus utilisés (Jonat et al., 2004 ; Jonat et al., 2006[35, 36]).

D'après Sheth et al,1980[37], il existe deux théories concernant le mode d'action de ces excipients. La première décrit le recouvrement des particules de poudres par les fines particules de l'agent régulateur d'écoulement. La formation de cette couche augmente la distance entre les différentes particules de poudre réduisant ainsi les forces d'attraction entre elles ce qui améliore leurs propriétés d'écoulement. La seconde théorie décrit un recouvrement identique qui permet une possibilité pour les différentes particules de rouler les unes sur les autres et favorise ainsi l'écoulement.

## 1.3 Caractérisation de l'état de mélange : application au mélange en continu

### 1.3.1 Intensité et échelle de ségrégation

L'objectif de toute opération de mélange de solides divisés consiste à obtenir un produit final homogène répondant à des propriétés d'usage, réalisé à partir de particules de propriétés différentes. D'après Berthiaux.,2002[38], la qualité de mélange se définit par l'usage auquel le produit est destiné. Il n'est donc pas utile de réaliser un mélange intime à l'échelle des particules, mais directement à celle qui confère les propriétés d'usage attendues, et que l'on appelle échelle d'observation. En première approche, cette échelle peut correspondre à la quantité de matière présente dans le volume du conditionnement élémentaire d'un mélange (comprimé, gélule,sachet, sac...). Mais si l'atteinte d'une propriété d'usage est spécifiée pour une fraction de ce conditionnement, comme c'est le cas des comprimés sécables en pharmacie, l'échelle d'observation devra être définie plus finement. Une fois que l'échelle d'observation et la taille de l'échantillon sont définies, plusieurs critères statistiques peuvent être utilisés pour évaluer la qualité de mélanges à cette échelle. Ces critères sont principalement l'écart type, le coefficient de variation et le coefficient d'auto-corrélation. Ils servent à calculer l'intensité et l'échelle de ségrégation, deux notions introduites en 1951 par Danckwerts [39] :

- Intensité de ségrégation  $I$  : pour exprimer les différences de composition dans le mélange.
- l'échelle de ségrégation  $L_0$  : pour décrire l'état de subdivision des groupes de particules dans le mélange, qui correspond à l'état de micro mélange.

#### **Intensité de ségrégation**

L'intensité de ségrégation est une mesure de la divergence par rapport à la composition moyenne du mélange. Plus l'intensité de ségrégation diminue, plus la composition de chaque échantillon est proche de la composition moyenne. L'intensité de ségrégation est quantifiée via l'analyse statistique des échantillons prélevés. L'ensemble des échantillons analysés doivent être de même taille, l'échelle d'observation.

Admettons que l'on a pu procéder à un échantillonnage exhaustif et sans perturbation. A

moins que le mélange ne soit parfait à cette échelle, les compositions en masse, en volume, ou bien en nombre de ces échantillons sont différentes, et peuvent être notées  $C$  relativement à un des composants du mélange. La distribution des compositions dans le mélange  $E(C)$  peut être décrite de manière globale par sa moyenne  $\bar{C}$ , sa variance  $\sigma^2$  et son coefficient de variation  $Cv$ .

La concentration moyenne est donné par :

$$\bar{C} = \int C.E(C).dC \quad (1.3)$$

la variance de distribution est :

$$\sigma^2 = \int (C - \bar{C})^2.E(C).dC \quad (1.4)$$

Pour  $N$  échantillons prélevés, nous pouvons écrire :

$$\sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_i - \bar{C})^2 \quad (1.5)$$

A l'aide de ces définitions, un critère, nommé intensité de ségrégation, caractérisant la qualité de mélange est calculé selon :

$$\frac{\sigma^2}{\sigma_i^2} \quad (1.6)$$

$\sigma_i^2$  est la variance de système à l'état initial.

Plus la variance est grande, plus les valeurs des compositions sont éloignées les unes des autres, et plus le mélange est hétérogène. Une diminution de la variance correspond donc à une diminution de l'intensité de ségrégation du mélange.

Un autre critère, le coefficient de variation, est souvent utilisé pour comparer la qualité des mélanges ayant des compositions moyenne différentes, il s'écrit sous la forme :

$$Cv = \frac{\sigma}{\bar{C}} \quad (1.7)$$

Un bon mélange doit avoir le plus petit  $Cv$  possible.

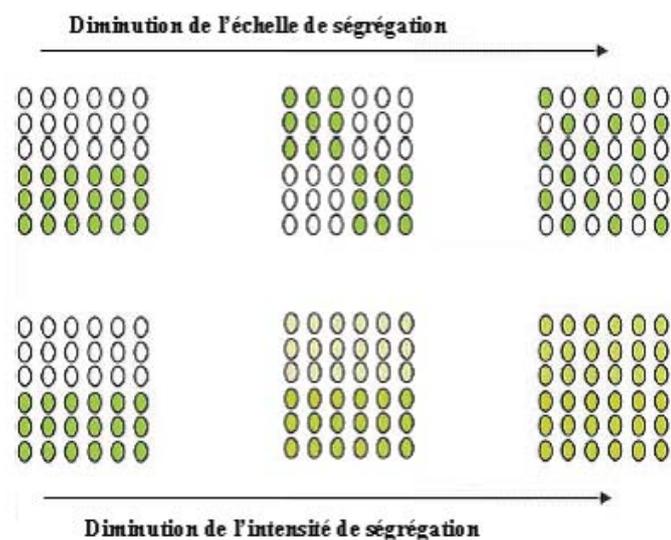


FIGURE 1.14 – Echelle et intensité de ségrégation selon Poux et al.,1991[21]

Selon Poux et al.,1991[21], plus l'indice d'intensité de ségrégation est faible, plus le mélange est homogène (figure 1.14). On peut imaginer que les valeurs limites de la variance doivent correspondre aux cas d'un mélange totalement ségrégué et d'un mélange régulier parfait :

- Dans le cas d'un mélange totalement ségrégué, on peut aisément calculer à l'aide du théorème binomial la valeur limite de la variance [10]. Dans ce cas, si chaque échantillon prélevé ne contient qu'un seul composé, et il est facile de montrer (Lacey(1943)[24]) que la variance expérimentale s'écrit sous la forme :

$$\sigma_0^2 = p(1 - p) \quad (1.8)$$

avec  $p$  composition en nombre de particules du mélange en constituant clé.

- Dans le cas du mélange régulier parfait, la variance est nulle.

Entre ces deux cas extrêmes de mélanges, se situe le mélange aléatoire. Comme expliqué précédemment, chaque particule  $y$  possède une probabilité identique de se trouver en tout point du mélange. La variance associée s'écrit sous la forme :

$$\sigma_r^2 = \sqrt{\frac{1}{N_p} p(1 - p)} \quad (1.9)$$

avec :  $N_p$  = taille de l'échantillon ;  $p$  = proportion du constituant actif et  $(1-p)$  équivaut à la proportion de l'excipient.

l'utilisation de la variance du mélange aléatoire  $\sigma_0$  et ségrégé  $\sigma_r$ , ainsi que la variance expérimentale de distribution des compositions  $\sigma$  permet de calculer les indices de mélange qui sont en fait des combinaisons mathématiques des trois variances (Harnby[10]).

Le tableau 1.1 donne une idée sur les nombreuses formules utilisées dans la littérature pour calculer ces indices de mélange. Ces formules sont valables pour les systèmes binaires monodispersés et sur la base des fractions en nombre de particules.

TABLE 1.1 – Quelques indices de mélange classiquement utilisés

Auteurs	Indice
<b>Lacey (1954)</b>	$\frac{\sigma_0^2 - \sigma^2}{\sigma_0^2 - \sigma_r^2}$
<b>Kramer (selon Lacey 1954)</b>	$\frac{\sigma_0 - \sigma}{\sigma_0 - \sigma_r}$
<b>ashton (1966)</b>	$\frac{\lg(\sigma_0^2 / \sigma^2)}{\lg(\sigma_0^2 / \sigma_r^2)}$
<b>Poole et al ( 1964)</b>	$\frac{\sigma}{\sigma_r}$
<b>Rose (1959)</b>	$1 - \frac{\sigma}{\sigma_0}$
<b>Smith (1955)</b>	$\frac{\sigma_0}{\sigma}$
<b>Yano (19564)</b>	$\frac{\sigma}{\sigma_0}$
<b>Wesmacott (1960)</b>	$\frac{\sigma_r^2}{\sigma_0^2}$

Dans le cas d'un mélange multiconstituants, ces indices peuvent être utilisés en raisonnant par rapport à un composé clé, qui est généralement l'élément minoritaire dans le mélange (comme par exemple le principe actif dans les produits pharmaceutiques).

Dans la pratique, on peut se contenter de la seule donnée de la variance car l'état d'un mélange aléatoire n'est souvent pas atteint. Dans ce cas, il n'est pas nécessaire de raisonner sur la base des fractions en nombre de particules. En effet, on peut tout simplement exprimer la variance à partir des teneurs massiques qui sont plus simples à déterminer.

Comme indiqué précédemment, la variance (ou l'intensité de ségrégation) est une caractéristique macroscopique qui quantifie la qualité de mélange mais qui ne permet pas d'avoir une idée sur sa structure interne ; d'où la nécessité d'utiliser un autre critère qui est l'échelle de ségrégation.

### Échelle de ségrégation

En 1995, Weinekötter [26] a été le premier à faire remarquer que deux mélanges de mêmes compositions et de mêmes variances peuvent avoir des structures totalement différentes (voir l'exemple de la figure 1.15).

Pour surmonter cette problématique, Danckwerts et Sellers.,1951[39] ont introduit la notion de l'échelle de ségrégation, appelée  $L_0$ , qui représente la taille des régions ségrégées.

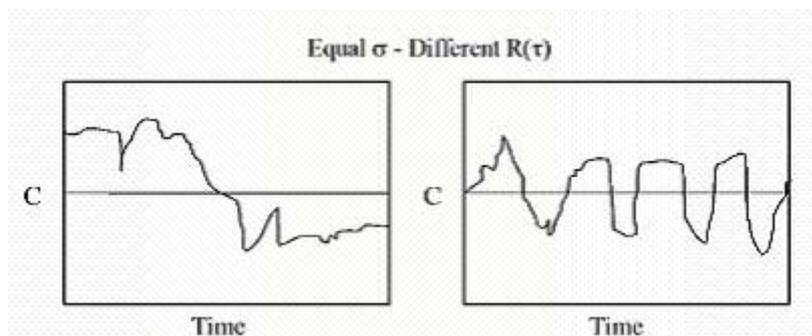


FIGURE 1.15 – Deux mélanges, en sortie du mélangeur continu, de mêmes variances et de différentes tailles de ségrégations, d'après Weinekötter et Gericke.,2000, et Weinekötter et Reh. 1995[40, 26].

La définition de l'échelle de ségrégation est née de la nécessité d'avoir un critère macroscopique capable de retranscrire la structure d'un mélange en prenant en compte les emplacements des échantillons les uns par rapport aux autres. Considérons en effet deux échantillons séparés par un intervalle  $r$  (qui peut représenter un temps ou bien une distance) et pris parmi une série de données consécutives. Selon la structure du mélange et la distance entre les prélèvements, les compositions de ces échantillons peuvent être plus ou moins dépendantes les unes des autres. Danckwerts.,1951[39] a utilisé la fonction d'autocorrélation pour quantifier cet effet d'interdépendance de  $N$  échantillons séparés par un intervalle  $r$  (distance ou temps). Mathématiquement, la fonction  $R$  est calculée à partir de  $N_m$  mesures consécutives, de composition  $x_i$  pour chaque échantillon :

$$R(r) = \frac{\sum_{i=1}^{N_m-r} ((x_i - \bar{x})(x_{i+r} - \bar{x}))}{\sum_{i=1}^{N_m} ((x_i - \bar{x})^2)} \quad (1.10)$$

$\bar{x}$  est la composition moyenne.

D'après Danckwerts et Sellers.,1951[39], dans le cas d'un mélangeur continu, l'échelle de ségrégation ( $L_0$ ) est définie par la relation suivante :

$$L_0 = \int_{\tau=0}^{\tau=\infty} R(\tau) d\tau \quad (1.11)$$

$\tau$  : temps de passage moyen.

Lorsque la fonction d'autocorrélation  $R$  s'annule, les compositions des échantillons situés à la distance  $r_0$  correspondante se compensent et peuvent être considérées comme indépendantes. On peut donc estimer que  $r_0$  correspond à une longueur de mélange caractéristique de la structure, mais aussi qu'il définit une échelle au-delà de laquelle on peut considérer que les propriétés macroscopiques sont atteintes [38]. Cette échelle, est appelée échelle de ségrégation.

L'exemple de Schofield (figure 1.16) présente plusieurs mélanges de même intensité de ségrégation (variance constante), mais dont l'échelle de ségrégation diminue.

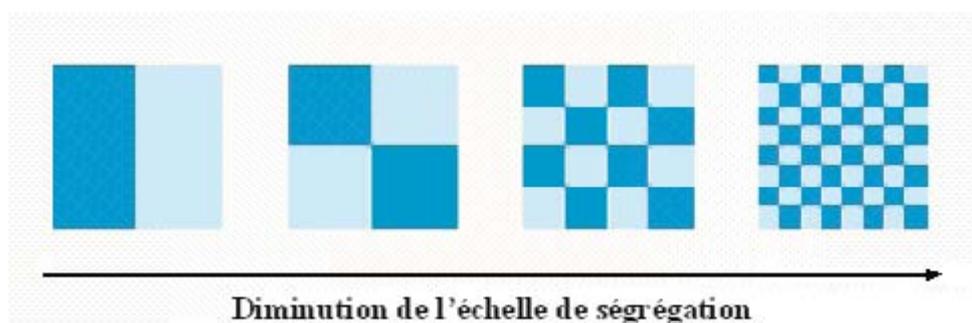


FIGURE 1.16 – Notion d'échelle de ségrégation selon Schofield 1970[41]

Plus la taille des régions de ségrégation du mélange diminue plus l'échelle de ségrégation diminue. Quand l'échelle de ségrégation devient égale à celle d'observation (celle voulue par l'usage), l'opération de mélange peut être considérée comme optimisée. D'après Berthiaux., 2002 [38], l'homogénéité de mélange est intimement liée à la manipulation de ces deux échelles d'observation et de ségrégation :

- Celle d'observation, à laquelle on désirerait que des propriétés d'usage soient garanties .
- Celle de ségrégation, qui correspond à ce qu'un procédé de mélange peut effectivement produire.

### 1.3.2 Caractérisation de la qualité de mélange en continu

Les premiers travaux sur le mélange des poudres en continu ont été destinés à l'évaluation des performances de ces systèmes ouverts (Pernenkil et Cooney.,2006[1]). En 1948, Beaudry[42] a défini un indice d'efficacité et de performance des mélangeurs continus et

semi-continus, il s'agit du facteur de réduction VRR :

$$VRR = \frac{\sigma_{entree}^2}{\sigma_{sortie}^2} \quad (1.12)$$

Ce facteur VRR est défini comme étant le rapport des variances de la composition en élément clé à l'entrée et à la sortie du mélangeur. Sachant que la variance en sortie de mélangeur est un paramètre qui permet de mesurer l'intensité de ségrégation ; le VRR lui, calculé à partir de la variance, traduit la capacité du mélangeur à réduire cette intensité de ségrégation.

D'une manière générale, quand le VRR tend vers 1, le mélange se fait selon un écoulement piston ; et plus la valeur de VRR est importante, meilleure est la qualité de mélange.

Ce facteur VRR est un critère global de mélange qui dépend essentiellement de la taille élémentaire de l'échantillon prélevé et du nombre de prélèvements réalisés. Nous pourrions alors penser que, une fois le régime permanent atteint, les compositions d'échantillons prélevés en sortie d'appareil devraient être toutes identiques. Or en réalité, le caractère stochastique des écoulements de solides divisés, et aussi les dérives des actionneurs (débits, vitesses...) du procédé, entraînent en permanence des fluctuations autour d'une valeur moyenne de variance et de VRR (régime "micro transitoire").

Bien que le VRR soit un critère statistique qui permet de déterminer la composition et l'homogénéité globale d'un mélange, il reste insuffisant pour caractériser ce mélange, car il ne donne aucune idée, ni sur la structure interne du micro-mélange, ni sur la taille des régions ségréguées.

En se basant sur la théorie des distributions des temps de séjour en tant que caractéristique de la non-idéalité de l'écoulement, et en supposant que l'objectif principal d'un mélangeur continu est de réduire la variance en sortie, Danckwerts et Sellers.,1951[39] ; Williams.,1976[18] et Williams et Rahman.,1971.,[43] ont été les premiers à développer un modèle reliant le facteur VRR et la fonction d'autocorrélation :

$$VRR = \frac{\sigma_i^2}{\sigma_o^2} = 1 - \tau \log(a) \quad (1.13)$$

$$R(r) = \frac{cov(x_t, x_{t+r})}{var(x_t)} = a^r \quad (1.14)$$

$|a| < 1$  : coefficient de corrélation périodique ;  $x$  : concentration à l'entrée ;

$\sigma$  : écart type de la concentration de l'élément principal du mélange ;  $\tau$  : temps de passage moyen du mélangeur ;  $i$  : indice d'entrée,  $o$  : indice de sortie ;  $t$  : temps et  $r$  : pas entre deux prélèvement.

Ce modèle considère que la distribution des temps de séjour dans un mélangeur parfait peut être décrite par une décomposition exponentielle ou par la loi de Poisson.

En 1995, Weinekötter[26] a proposé une relation générale entre le VRR et la fonction de distribution des temps de séjours  $E(t)$  :

$$\frac{1}{VRR} = 2 \int_{t=0}^{\infty} E(t)E(t+\tau)R(\tau)d\tau + \frac{\sigma_r^2}{\sigma_f^2}$$

Il est important de signaler que dans le cas d'un mélangeur continu, l'échelle de ségrégation est définie en fonction du temps, tandis que dans le cas d'un mélangeur discontinu la définition est basée sur des variations spatiales du mélange. Dans ses travaux publiés en 1995, Weinekötter [26] a montré que la transformée de Fourier appliquée à la fonction d'autocorrélation ( $G_f(f)$ ) pourrait être utilisée pour déterminer l'échelle et l'intensité de la ségrégation.

$$G_f(f) = 4 \int_{t=0}^{\infty} R(\tau) \cos(2\pi f\tau) d\tau \quad (1.15)$$

$G_f(f)$  est la transformée de Fourier appliquée sur  $R(t)$ .

- L'intensité de ségrégation peut se calculer à partir de la fonction  $G_f$  en domaine fréquentiel selon la formule suivante :

$$\sigma^2 = var(x_t) = \int_{t=0}^{\infty} G(f) f df \quad (1.16)$$

- Alors que l'échelle de ségrégation peut être déterminée par la relation suivante :

(Pour une fréquence  $f = 0$ )

$$L_0 = \frac{G_f(f=0)}{4\sigma^2} \quad (1.17)$$

Le calcul de l'échelle et de l'intensité de ségrégation permet de connaître la taille du mélange ségrégué et de déduire l'efficacité du mélangeur. Un bon mélangeur est celui qui réduit en même temps l'échelle et l'intensité de ségrégation.

## 1.4 Critère d'acceptation de l'homogénéité

Le contrôle de l'homogénéité d'un mélange de solides divisés est une étape importante dans plusieurs domaines industriels (pharmacie, agroalimentaire, ciment, matière plastique...). Il permet de juger si le mélange a atteint les spécifications et les propriétés d'usage des produits formulés. L'hétérogénéité d'un mélange peut être due, soit à un temps de séjour insuffisant, soit à un phénomène de ségrégation durant l'action de mélange, le transport ou le stockage.

Généralement, l'homogénéité est déterminée à partir d'échantillons prélevés au sein du mélange. La taille maximale de l'échantillon varie selon les domaines d'application. A titre d'exemple, pour l'industrie pharmaceutique, chaque échantillon doit avoir une masse équivalente à une à trois fois la masse d'une prise unitaire du produit fini (USP, 2003 [44]). Jusqu'au début des années 90, rien n'était précisé concernant la manière d'aboutir à l'homogénéité et de contrôler le mélange. Les lois définies par la Food and Drug Administration (FDA), dans le document 21 CFR (21 Code of Federal Regulations), sont très générales. Elles se limitent à une description des normes demandées, sans toutefois spécifier les moyens qui doivent être mis en œuvre pour la respecter (où, comment échantillonner, combien de prélèvement à effectuer et à quelle taille). La réglementation ne définissait pas un schéma d'échantillonnage et le contrôle reposait sur la prise d'un échantillon qui pouvait se limiter à 10 doses unitaires. En 1995, Murray et al. [45] ont montré que ce test était inadéquat pour prouver l'homogénéité d'un lot, en particulier lorsque le principe actif est faiblement dosé. Selon le « Working Group for Blend Uniformity Testing [46] », les derniers critères d'acceptation de mélange sont :

- La masse de l'échantillon ne doit pas excéder trois fois la masse de la forme unitaire.
- La valeur du CV ne doit pas être supérieure à 6% .
- Tous les dosages individuels doivent se trouver dans la fourchette de  $\pm 15\%$  de la valeur attendue.
- La teneur moyenne doit se trouver dans la fourchette de  $\pm 7,5\%$  .

Récemment, La FDA a introduit un nouveau concept appelé PAT (Process Analytical Technology) dont le rôle est d'augmenter l'efficacité des procédés de mélange, d'améliorer la qualité du produit et de réduire la quantité des rejets.

La FDA a défini le PAT [47, 34] comme étant : « un système de modélisation, d'analyse et de contrôle en temps réel des procédés de fabrication par le biais de mesures effectuées aussi bien sur les matières premières que sur les procédés de fabrication, dans le but de s'assurer de la bonne qualité des produits finis ».

Afin de répondre aux objectifs définis par la FDA, de nombreuses techniques d'analyses ont été utilisées aux différentes étapes de la fabrication, depuis la réception des matières premières jusqu'au conditionnement des produits finis. Parmi ces techniques d'analyse, les spectrométries vibrationnelles occupent une place privilégiée [34]. Plusieurs autres techniques sont en plein développement. Leur utilisation dans le domaine des solides divisés

pourrait servir au contrôle de la qualité de mélange en temps réel.

## **1.5 Techniques de mesure de l'homogénéité des mélanges en ligne et en temps réel**

Le développement actuel de méthodes de mesures en ligne devrait assurer, dans un avenir proche, une meilleure qualité de produit final par des contrôles intégrés au processus de fabrication (opération de mélange...). L'enjeu principal est ainsi d'alléger les analyses en laboratoire au profit du contrôle en ligne, d'améliorer la robustesse des procédés de fabrication et de réduire la possibilité de commercialiser un produit défectueux. De plus, les techniques d'analyse en ligne peuvent facilement intégrer un système de surveillance, offrant ainsi la possibilité de réaliser non seulement des contrôles de qualité mais également d'utiliser les résultats de ces contrôles pour commander et réguler les systèmes en temps réel. D'après Pernenkil et Cooney, 2006[1], ces techniques de contrôle non invasives présentent deux avantages principaux ; d'une part elles reflètent le comportement de poudres sans l'affecter, et d'autre part elles ont un très fort potentiel pour être incorporées dans une boucle de contrôle et de commande d'un système de mélange en continu.

Dans cette partie, nous détaillerons quelques techniques analytiques parmi celles les plus étudiées dans le domaine des solides divisés.

### **1.5.1 Les méthodes spectroscopiques**

Les méthodes spectroscopiques (Raman, proche infrarouge ...) sont des techniques d'analyse qui permettent de connaître quantitativement et qualitativement la composition chimique d'un mélange. Elles permettent des analyses simultanées de divers composants avec une grande rapidité. Elles ne sont pas destructives ni invasives.

L'inconvénient principal de ces techniques réside dans la quantité d'informations renfermées dans un seul spectre (information chimique et physique). Il est souvent difficile d'interpréter ces spectres à cause du manque de corrélation structurale entre l'information pertinente et les données physico-chimiques.

Afin d'extraire les informations souhaitées, les spectres sont traités par la chimiométrie qui consiste à appliquer des méthodes mathématiques en vue du traitement, de l'évaluation et de l'interprétation d'une grande quantité de données [48, 49].

### **Spectroscopie proche infra rouge**

La spectroscopie proche infrarouge (SPIR) est une méthode physicochimique d'analyse basée sur l'interaction entre un rayonnement lumineux dans le domaine proche infrarouge (10.000-4000  $cm^{-1}$  ou 1000-2500 nm) et les molécules de l'échantillon. Le principe de la SPIR repose sur l'absorption de la lumière à des longueurs d'onde du spectre électromagnétique qui sont spécifiques aux molécules constitutives de l'échantillon. Lorsqu'un faisceau lumineux atteint la surface d'un échantillon, il peut être absorbé, transmis ou réfléchi. Selon le principe de la conservation de l'énergie, l'intensité totale du rayonnement incident doit être égale à la somme de l'intensité des rayons absorbés, transmis et réfléchis. Cette absorption sélective de l'énergie lumineuse fournit donc un spectre caractéristique de la nature et des quantités de molécules en interaction. Avec un modèle adéquat (calibration), une analyse quantitative est donc possible. L'absorption de la lumière par l'échantillon est sous la dépendance non seulement de sa composition chimique mais aussi de critères physiques, qui peuvent donc être estimés à partir du spectre, comme la granulométrie dans le cas des poudres.

Les avantages généralement attribués à cette technique sont la rapidité, l'absence de solvant, la simplicité de la mesure, l'aspect non destructif, l'excellente répétabilité des mesures atteinte par la génération actuelle d'instruments et la possibilité d'automatiser l'ensemble des étapes de l'analyse, puisque cette technique peut facilement jouer le rôle d'un capteur dans un procédé industriel continu (mélangeur, réacteur ...).

Il existe deux grands modes de mesure en spectroscopie PIR : la réflexion et la transmission : La nature de l'échantillon influencera le choix de l'une par rapport à l'autre. Prenons, par exemple, le cas de l'analyse de comprimés, l'utilisation de l'analyse en réflexion ne concerne que la surface du comprimé tandis que la transmission permet une analyse sur toute l'épaisseur du comprimé (Thosar et al., 2001 [50]).

#### **– Mesure en réflexion**

La mesure en réflexion consiste à mesurer la lumière réfléchie par l'échantillon. L'intensité de la lumière réfléchie est mesurée par un détecteur de réflexion se trouvant du même côté de l'échantillon que la source lumineuse. La réflectance  $R$  est définie comme étant le rapport

d'intensité :  $\frac{I_R}{I_0}$

Avec  $I_R$  : l'intensité réfléchie par l'échantillon analysé.

$I_0$  : l'intensité réfléchie par un matériau non absorbant pris comme référence.

L'absorbance est définie comme étant le logarithme décimal de l'inverse de la réflectance  $R$ , selon les équations :

$$A = \log\left(\frac{1}{R}\right) = \log\left(\frac{I_0}{I_R}\right) \quad (1.18)$$

Lorsque la lumière est réfléchie par un échantillon de matière solide offrant une surface mate, on peut distinguer deux composantes de l'énergie lumineuse mesurée par les détecteurs de réflexion :

- Une composante, dite de réflexion spéculaire qui correspond à la lumière réfléchie directement en surface de l'échantillon sans pénétrer à l'intérieur de celui-ci. Elle est porteuse d'informations physiques sur l'échantillon comme la taille ou la forme des particules de poudre (Berntsson 2001 [51]).
- Une composante de réflexion diffuse correspondant à la lumière qui pénètre à l'intérieur de l'échantillon, y subit l'absorption moléculaire ainsi que le processus de réfraction, diffraction et réflexion multiple entraînant sa dispersion dans toutes les directions et notamment son retour en arrière vers le détecteur de réflexion.

Seule la composante diffuse est porteuse d'information sur la composition chimique de l'échantillon.

#### – Mesure en transmission

La mesure en transmission consiste à mesurer la lumière transmise à travers l'échantillon à analyser. En raison de l'absorption de la lumière par l'échantillon, l'intensité du faisceau est atténuée depuis la valeur  $I_0$  à l'entrée d'un côté de l'échantillon jusqu'à la valeur  $I_T$ , à la sortie de l'autre côté. La transmittance  $T$  est définie comme étant la fraction d'énergie lumineuse traversant l'échantillon de part en part. Elle est égale au rapport d'intensité :  $\frac{I_T}{I_0}$ . L'absorbance est définie comme étant le logarithme décimal de l'inverse de la transmittance  $T$ , selon les équations :

$$A = \log\left(\frac{1}{T}\right) = \log\left(\frac{I_0}{I_T}\right) \quad (1.19)$$

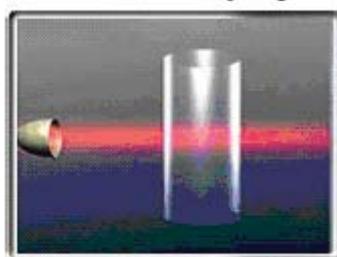


FIGURE 1.17 – Illustration de la mesure par transmission (Bruker® ; manuel d'utilisation MPA)

#### – Exemples d'applications de la SPIR

Industriellement, la Spectroscopie Proche Infrarouge est présente depuis quelques années dans l'industrie pharmaceutique. Elle est souvent utilisée dans le contrôle des matières premières. Mais elle peut également être utilisée dans le contrôle de différentes étapes du procédé de fabrication. Cette méthode a été adoptée au départ seulement par les deux groupes industriels AstraZeneca et Pfizer dans le contrôle du mélange, du séchage et de la compression. Puis, elle a connu une véritable expansion dans toute l'industrie de solides divisés (Hailey et al. 1996 ; Kehlenbeck et Sommer.,2003 et Hinz.,2006 [52, 53, 54]).

En recherche, la SPIR reste la technique la plus largement adoptée par les chercheurs dans le domaine des poudres. A titre d'exemple, Hailey et al.,1995 [52] ont employé un capteur SPIR couplé avec une interface graphique développée sous Labview pour pouvoir suivre en temps réel l'homogénéité d'un mélange de poudres.

Puis en 2001, Berntsson [51] a utilisé cette méthode pour suivre quantitativement en temps réel le mélange d'une poudre fine avec une poudre brute, en couplant un spectromètre proche infrarouge avec une sonde à fibre optique. Le rôle de cette fibre optique est de diffuser (et laisser passer) le rayonnement proche infrarouge envoyé par le spectromètre. La sonde à fibre optique est plongée dans un mélangeur de type Nauta® (voir 1.18).

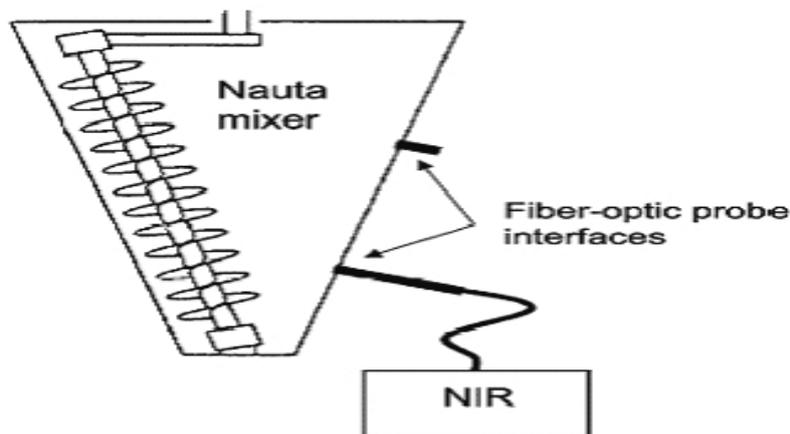


FIGURE 1.18 – Mélangeur de type Nauta couplé avec un spectromètre PIR et une fibre optique insérée en position basse du mélangeur (d'après Berntsson.,2002 [55])

Récemment, dans le cadre d'un projet de recherche destiné au mélange des poudres cohésives en continu, un spectromètre de FT-NIR (figure 1.19) a été utilisé pour contrôler l'homogénéité d'un mélange binaire en sortie d'un mélangeur des poudres en continu (d'après Kehlenbeck et Sommer.,2001, Kehlenbeck et Sommer.,2002 et Kehlenbeck et Sommer.,2003 [56, 57, 53]. Ce capteur est composé d'une sonde, d'un spectromètre, d'une lampe émettrice de la lumière modulée de NIR, et d'un détecteur (Siesler et al.,2002 [58]).

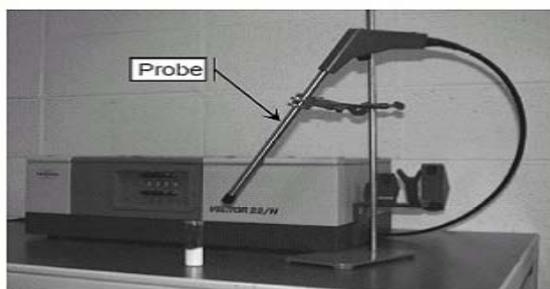


FIGURE 1.19 – Spectromètre FT-NIR de "Bruker Optik" d'après Kehlenbeck et Sommer.,2003[53]

Le spectromètre FT-NIR a été installé en sortie d'un mélangeur continu de poudres pour mesurer l'homogénéité de mélange selon le schéma de figure1.20.

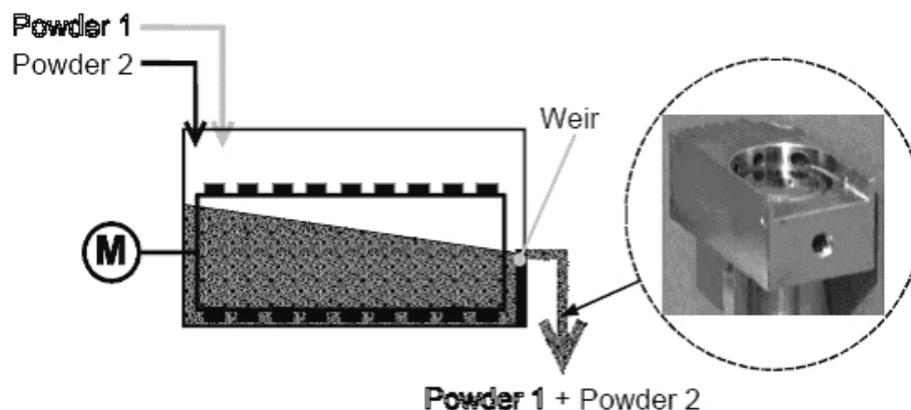


FIGURE 1.20 – Mesure en ligne de l’homogénéité de poudres en sortie d’un mélangeur continu d’après Kehlenbeck et Sommer.,[53]

Après chaque mesure, la sonde SPIR est nettoyée à l’aide d’une injection automatique d’air à travers une vanne pneumatique. Le temps nécessaire pour faire une acquisition suivie d’un nettoyage de la sonde est de 1,7 secondes (Kehlenbeck et Sommer.,[53]).

Dans un autre exemple, Vanarase et al.,2010[59] ont installé un analyseur, de type SPIR, en sortie d’un mélangeur continu. L’objectif est d’analyser en temps réel la qualité d’un mélange composé des particules de cellulose (Avicel-PH 102, FMC BioPolymer) et d’un ingrédient actif appelé l’acetaminophen (APAP). Ce dernier a été pré-mélangé avec le dioxyde de silicium. Toutes les expériences ont été réalisées avec un débit total de dosage de 30kg/h. Les différents mélanges qui ont été étudiés sont présentés sur la figure 1.21(a).

Le dispositif expérimental utilisé par Vanarase et al. est un mélangeur de type Gericke GCM250 qui est équipé de deux doseurs permettant d’alimenter le mélangeur en mode continu (voir figure 1.21(b)). En sortie de l’appareil de mélange, un spectromètre de type SPIR analyse en mode dynamique des échantillons de taille moyenne estimée à 0.26g.

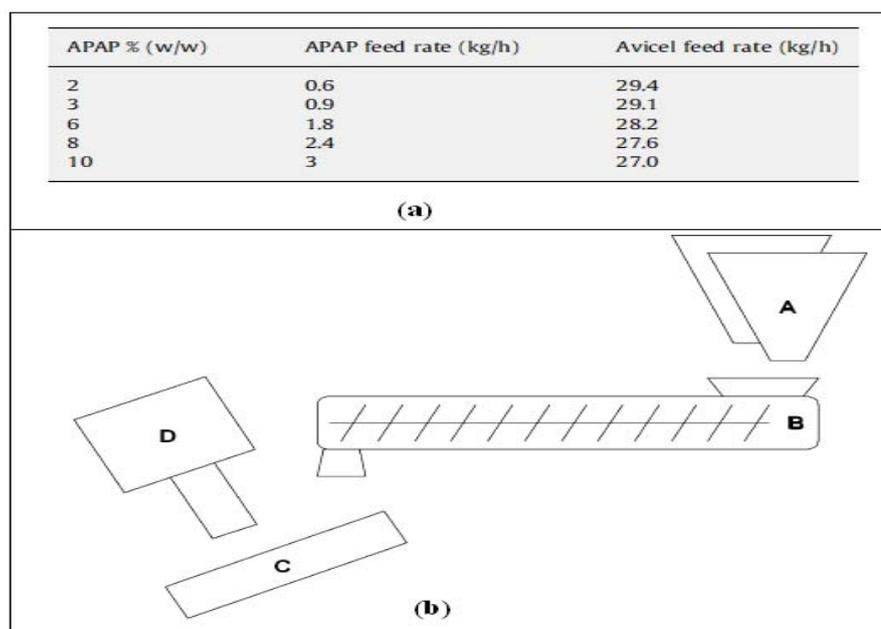


FIGURE 1.21 – (a) Différents mélanges étudiés par Vanarase et al.,2010 [59] ; (b) Schéma du dispositif expérimental : (A) deux doseurs pondéraux ; (B) mélangeur continu ; (C) sortie du mélangeur ; (D) spectromètre SPIR

Comme nous pouvons le constater sur la figure 1.22, Vanarase et al. ont enregistré des spectres proche IR, représentant l'absorption lumineuse en fonction de la longueur d'onde, pour les deux produits purs, l'acétaminophen (100 %APAP) et la cellulose (0% APAP), ainsi que pour un mélange de ces deux composés contenant 15% de l'acétaminophen.

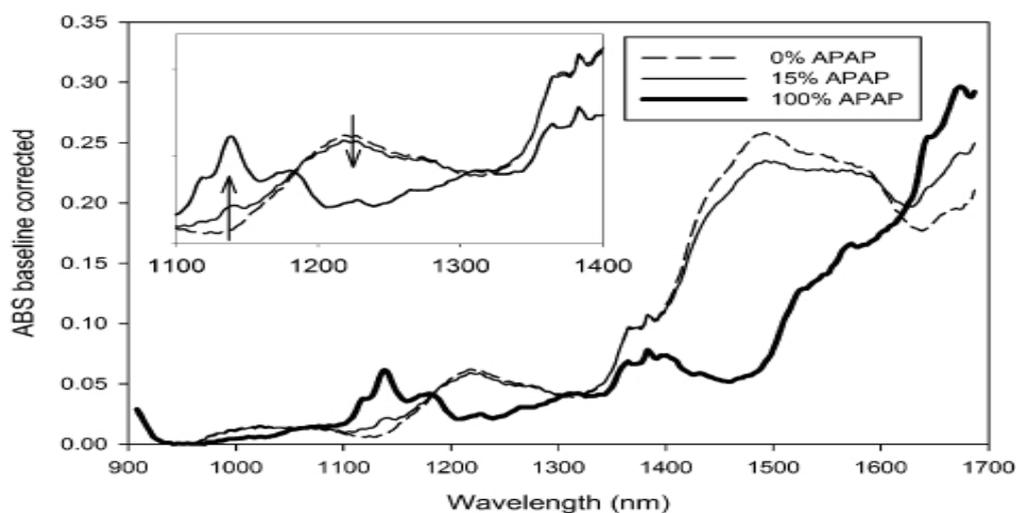


FIGURE 1.22 – Spectres proche infra-rouge obtenus par Vanarase et al.,2010 [59]

Un modèle de calibration, basé sur la méthode de régression PLS (Partial Least Squares regression), a été ensuite développé pour relier en temps réel la concentration de l'ingrédient actif aux données spectrales. Ce modèle a été déterminé à partir d'un étalonnage réalisé préalablement sur une gamme de concentration allant de 0 à 15% de l'ingrédient actif (APAP). Un exemple de résultats obtenus, illustrant l'évolution de la concentration de l'ingrédient actif (APAP) dans trois différents mélanges : 2, 6 et 10%, est présenté dans la figure 1.23.

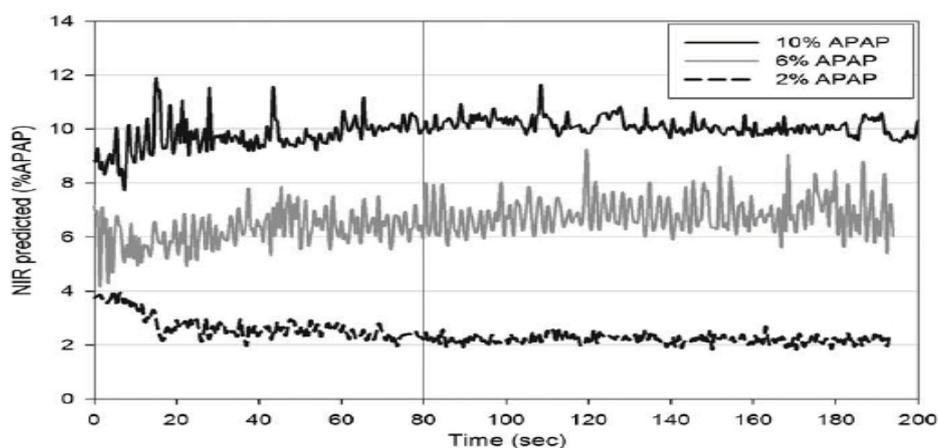


FIGURE 1.23 – Mesure en ligne de la concentration d'un ingrédient actif par la SPIR [59]

L'ensemble des résultats obtenus par Vanarase et al., [59] ont montré que pendant la phase de démarrage de l'opération de mélange, la masse des particules dans le mélangeur augmente progressivement jusqu'à ce qu'elle atteigne une valeur seuil "stable" correspondant au régime permanent. Pendant cette phase transitoire de démarrage, la concentration de l'ingrédient APAP en sortie du mélangeur ne coïncide pas avec sa concentration dans le mélange total. Ce n'est qu'une fois que le régime permanent est atteint que la concentration de l'APAP, mesurée par la SPIR, commence à fluctuer autour de la valeur moyenne attendue. Ainsi, pour évaluer le degré d'homogénéité des mélanges étudiés, Vanarase et al., 2010 [59] ont calculé la variance en utilisant uniquement les échantillons analysés en régime permanent.

L'utilisation de la SPIR dans les procédés de mélange des poudres a fait également l'objet de plusieurs autres travaux de recherche. Nous citons par exemple Reich, 2005 ; Roggo et al., 2007, Luybaert et al., 2007 ; Portillo et al., 2008 ; Gao et al., 2011 et Koller et al., 2011 [60, 61, 62, 63, 64, 65].

## Spectroscopie Raman

En spectrométrie Raman, l'analyse se fait par excitation du matériau. Porté à un niveau énergétique virtuel par une puissante source lumineuse monochromatique de type LASER, il ré-émet ensuite une radiation qui est collectée puis analysée par un détecteur adéquat.

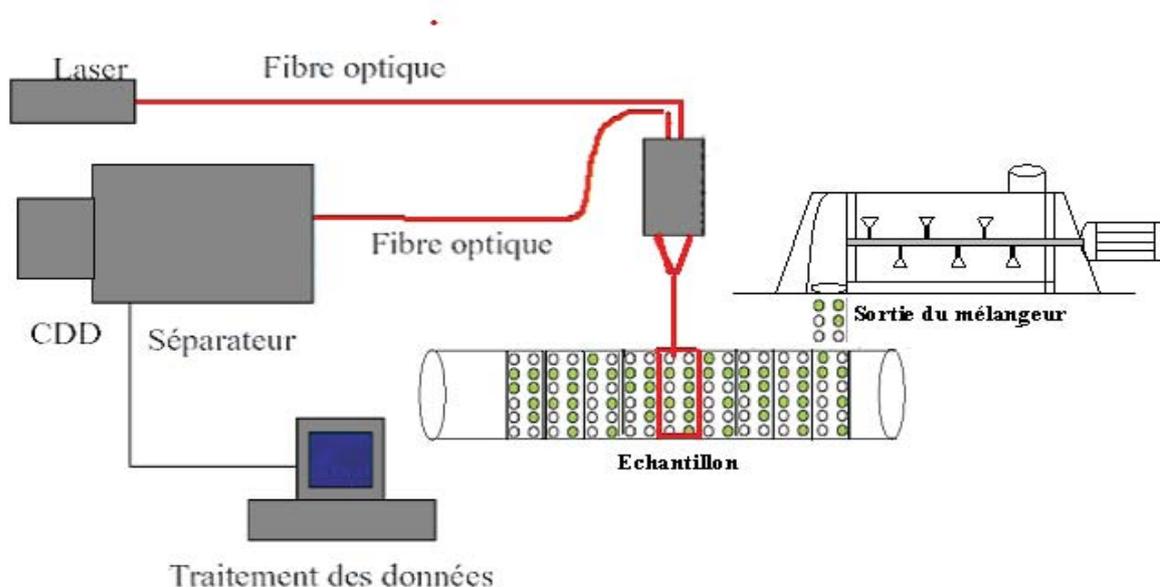


FIGURE 1.24 – Schéma de principe d'analyse des poudres en ligne par la spectroscopie Raman

Le schéma de la figure 1.24 montre le principe d'une mesure en ligne par la spectroscopie Raman : les radiations d'une source laser puissante sont conduites dans une fibre optique jusqu'à l'échantillon à analyser et provoquent son excitation. La lumière produite est recueillie par un capteur, puis acheminée par une fibre optique jusqu'au séparateur. Couplé à un détecteur, celui-ci fournit alors des données sur l'échantillon qui n'ont plus qu'à être traitées informatiquement.

La rapidité et l'aspect non destructif qui caractérisent la spectroscopie Raman font d'elle une technique prometteuse pour le contrôle en ligne de différents procédés de production et notamment les procédés pharmaceutiques (opération de mélange, contrôle de la réaction, contrôle de l'état des solides pendant les procédés de cristallisation) (Clegg et Overall, 2003 ; Vankeirsbilck et al., 2002 ; Christopher, 1999 ; Vergote et al., 2004) [66, 67, 68, 69].

### – Exemples d'applications de la spectroscopie Raman

En 2007, Kachrimanis et al. [70] ont utilisé la spectroscopie FT-Raman pour analyser quantita-

tivement un mélange de poudres composé de deux formes différentes de paracétamol (forme I : monoclinique et forme II : orthorhombique). En particulier, les données expérimentales obtenues par la spectroscopie Raman ont été exploitées par la méthode statistique de régression PLS ([70]) dans le but de prédire la composition du mélange. L'objectif de ce travail était d'établir un modèle de calibration permettant de prédire une valeur analytique de référence à partir des données spectrales. La première étape est l'étalonnage de l'équipement qui est effectué à partir d'échantillons dont on a enregistré le spectre et mesuré la concentration par une méthode de référence.

Par la suite, ces auteurs ont comparé l'effet de trois différents algorithmes statistiques de pré-traitement des données spectrales, qui permettent d'éliminer les erreurs d'échantillonnage et de préparation de l'échantillon, sur la qualité du résultats obtenus. Plus précisément, ils ont utilisé la méthode OSC « orthogonal signal correction » [71], la méthode SNV « standard normal variate transformation » [72], et la méthode MSC «multiplicative scatter correction » [73].

En pratique, dix-huit mélanges binaires ont été préparés à partir des deux formes de paracétamol. La taille de chaque échantillon analysé est de l'ordre de quelques milligrammes. Au total, 20 échantillons ont été analysés incluant les deux produits purs : 100, 97.75, 95.5, 91, 82, 73, 64, 48, 32, 4, 16, 12, 8, 6, 4, 3, 2, 1.5, 1 et 0% de paracétamol de forme I.

La comparaison entre les concentrations de référence et les concentrations obtenues par les trois méthodes statistiques OSC, SNV et MSC est présentée dans la figure 1.25.

Concentration of paracetamol form I (% , w/w)			
Observed	Predicted by PLS after preprocessing by algorithm		
	OSC (1)	SNV (3)	MSC (3)
1	0.85	0.07	5.55
1.5	1.47	3.37	2.31
2	1.85	1.59	3.35
6	5.95	6.91	4.71
12	11.74	7.60	10.47
16	15.50	12.26	10.11
32	31.82	29.20	23.68
91	90.47	90.21	87.74
95.5	95.61	79.29	86.11
97.75	96.26	83.42	95.69

FIGURE 1.25 – Prédiction de la concentration du paracétamol monocyclique dans un mélange binaire par trois méthodes chimiométriques, en utilisant la spectroscopie Raman (d'après[70])

Comme le montrent les résultats obtenus par Kachrimanis et al. [70], le choix de la technique de prétraitement des spectres Raman joue un rôle primordial dans la détermination de la qualité des résultats obtenus par régressions PLS. Dans le cas de cet exemple, la technique OSC donne les meilleurs résultats sur toute la gamme des concentrations utilisées.

Un autre exemple récent (2007) est celui de De Beer et al. [74]. Ces auteurs ont développé un modèle de calibration pour l'analyse quantitative directe et non-destructive (sans préparation d'échantillon) d'un ingrédient pharmaceutique actif (acide salicylique) par la spectroscopie FT-Raman. Le mélange étudié est composé d'acide salicylique (particules de taille  $<180 \mu\text{m}$ ) et de vaseline blanche. Ce mélange sert à produire des pommades standards.

Les spectres FT-Raman de la vaseline blanche et de l'acide salicylique, obtenus par De Beer et al, sont présentés dans la figure 1.26.

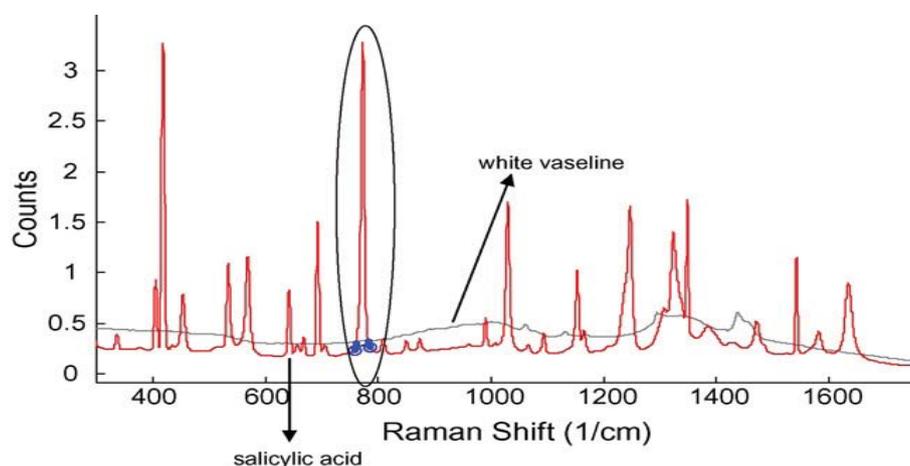


FIGURE 1.26 – Spectres de l'acide salicylique et de la vaseline blanche obtenus par la spectroscopie FT-Raman, d'après [74]

Ces résultats montrent que la vaseline ne produit aucun signal d'absorption dans la gamme spectrale de  $100$  à  $1500 \text{ cm}^{-1}$ , seul l'acide salicylique présente des signaux d'absorption dans cette zone spectrale. L'intensité maximale du signal, située entre  $757$  et  $784 \text{ cm}^{-1}$ , est choisie comme une référence d'étalonnage car dans cette gamme de petits changements spectraux seront bien détectés.

Les résultats d'étalonnage ont permis de développer un modèle de régression du second ordre  $y = ax^2 + bx + c$ . Les coefficients de cette équation modèle ont été estimés avec un intervalle de confiance de 95%, comme le montre la figure 2.27. Par la suite, Beer et al. [74] ont comparé les résultats obtenus par la spectroscopie Raman avec la technique HPLC (technique de référence) qui nécessite de préparer soigneusement les échantillons. Au total, 25 mélanges

différents ont été analysés par ces deux méthodes. les résultats obtenus par la spectroscopie Raman sont moins bons que ceux obtenus par HPLC, mais ils restent acceptables (voir annexe 1).

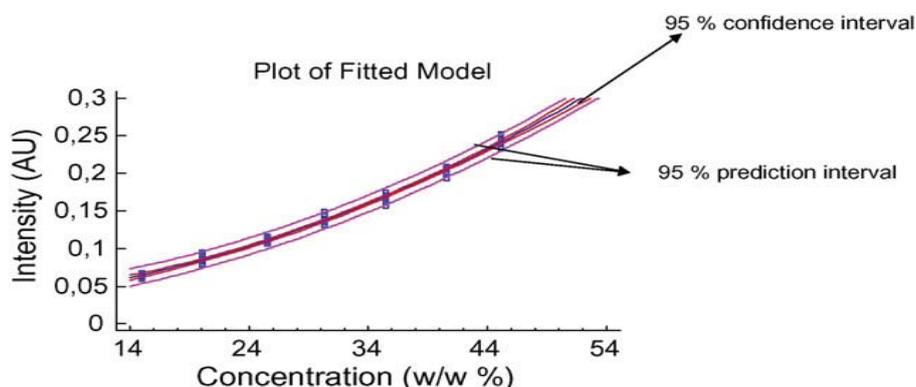


FIGURE 1.27 – Modèle de régression de second ordre obtenu par la spectroscopie FT-Raman avec une intervalle de confiance de 95%, d'après [74]

La spectroscopie Raman appliquée sur les poudres a fait également l'objet de plusieurs autres travaux, parmi lesquels nous citons par exemple (Vergote et al., 2002, Vergote et al. 2004, Hausman et al., 2005 et Vankeirsbilck 2002 [75, 69, 76, 67]).

### 1.5.2 Technique d'analyse d'image

Le but de l'analyse d'image est de fournir une description quantitative de l'image (nombre de cellules d'une certaine taille) ou une reconnaissance de forme qui est utile si les caractéristiques morphologiques de l'image sont liées aux propriétés de l'objet. Elle trouve des applications dans de nombreux domaines : sciences des matériaux, sciences de la vie, géologie, robotique...

Dans le domaine des solides divisés, l'analyse d'image est surtout utilisée en caractérisation des poudres. Les analyseurs d'images quantitatifs se composent d'une caméra qui peut être combinée à un microscope optique, un appareil de projection ou un microscope électronique. Les signaux provenant de l'image reçue par la caméra sont traités par une unité centrale qui calcule les surfaces occupées par différents composés même avec un faible contraste de couleurs. Il est également possible de répartir les particules en classes de diamètres.

La zone en cours d'examen est visualisée sur un écran ; le système est accessible au clavier ou

commandé par menu. Avec un tel dispositif, il est possible de choisir les objets à examiner, d'en effacer et de séparer des particules adjacentes. Ces systèmes permettent fréquemment la correction des images ou l'utilisation de méthodes de classement telles que l'intensification d'image par détection du niveau de gris pour obtenir un meilleur contraste. Nous décrivons ci-dessous le principe de cette technique analytique :

Une image «réelle » va être transformée en une image numérique par différents outils de transformation (caméra, scanner...). Cette image numérique est constituée de pixels contenant chacun différentes informations (intensité lumineuse, couleur...). Ces informations seront codées dans une grille échelonnée, le niveau de gris, de 0 à n par exemple (généralement  $n=250$ ). En fonction des formes recherchées (grains d'une certaine taille, zones de couleurs particulières), on va séparer les structures intéressantes des autres par l'opération de seuillage qui consiste à donner la valeur 1 aux structures qui vérifient les critères sélectionnés et 0 aux autres. On obtient donc une matrice binaire qui donne une information quantitative sur la forme recherchée.

L'opération de seuillage permet de traiter l'image et de définir des grandeurs mesurables car c'est un passage obligatoire pour toute analyse morphologique ultérieure. Il permet de sélectionner les parties de l'image qui intéressent l'opérateur, par exemple 2 types de grains (blancs et sombres) dans un mélange de poudres. On peut donc, par exemple, attribuer la valeur 1 à tous les pixels de l'image numérique qui ont un niveau de gris compris entre deux valeurs  $i_1$  et  $i_2$ , choisies par l'opérateur ; et attribuant à tous les autres pixels la valeur 0.

Après seuillage, les parties de l'image sélectionnées seront traduites en noir et blanc. L'image, digitalisée par l'ordinateur (0 et 1), est appelée image binaire. Cette dernière, tout comme l'image numérique, contient des informations superflues qu'il convient d'éviter, ou masquées qu'il faut alors révéler.

La méthode d'analyse d'image a été utilisée et développée par plusieurs chercheurs qui ont voulu évaluer la qualité d'un mélange de poudres. Nous citons ici quelques exemples d'application.

### – Exemples d'applications de la technique d'analyse d'image

En 2002, Muerza et al.,[77] ont étudié un mélange binaire formé de grains d'aspirine et de semoule (voir figure 1.28).

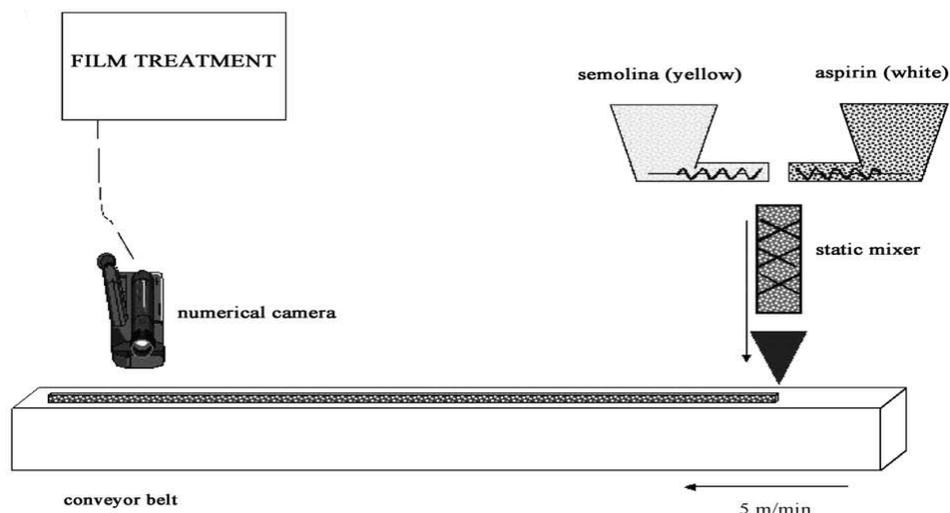


FIGURE 1.28 – Schéma du dispositif expérimental et méthodologie de traitement du film d'après Muerza et al.[77]

Les ingrédients de mélange sont introduits dans un mélangeur statique à partir des doseurs. En sortie du mélangeur, une caméra filme le mélange convoyé par une bande transporteuse. L'enregistrement est ensuite traité pour obtenir une série de photographies consécutives représentant toute la surface du mélange. Le traitement des images obtenues permet de connaître la composition surfacique en l'un des deux composants. Un exemple de résultat obtenu pour une image seuillée est présenté dans la figure 1.29.

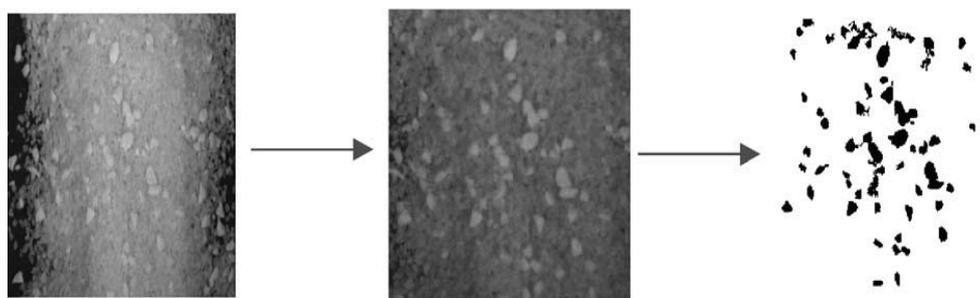


FIGURE 1.29 – Seuillage d'une image numérique montrant les grains d'aspirine d'après Muerza et al.[77]

Les résultats expérimentaux obtenus par cette méthode ont permis à Muerza et al.[77] de suivre en continu l'évolution de l'échelle de ségrégation (en temps quasi réel) à partir du calcul de coefficient d'autocorrelation.

En 2006, Berthiaux et al. [78] ont essayé de développer une nouvelle méthodologie pour caractériser l'homogénéité des poudres en se basant sur la technique d'analyse d'image. Ils

ont proposé la méthode d'analyse en composantes principales PCA comme une alternative aux méthodes statistiques (variance, autocorrélation...). En sortie d'un mélangeur continu, un mélange binaire est filmé par une caméra CCD (voir figure 1.30 et figure 1.31). Puis, l'image obtenue est découpée en plusieurs surfaces rectangulaires qui correspondent à une échelle de ségrégation choisie empiriquement. Chaque rectangle a été traité par la méthode d'analyse en composantes principales PCA pour déterminer son degré d'homogénéité.

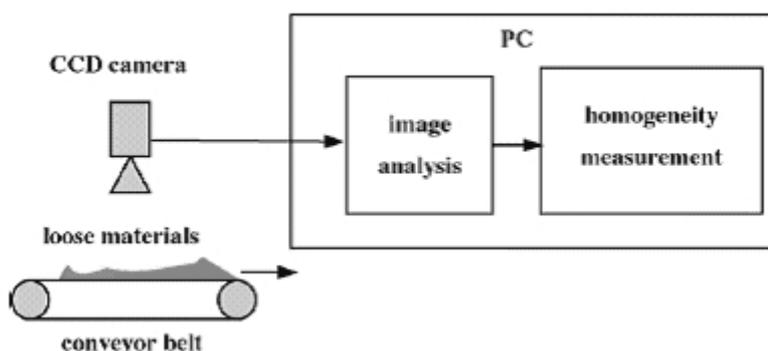


FIGURE 1.30 – Diagramme de mesure d'homogénéité d'un mélange de solides par analyse d'image [78]

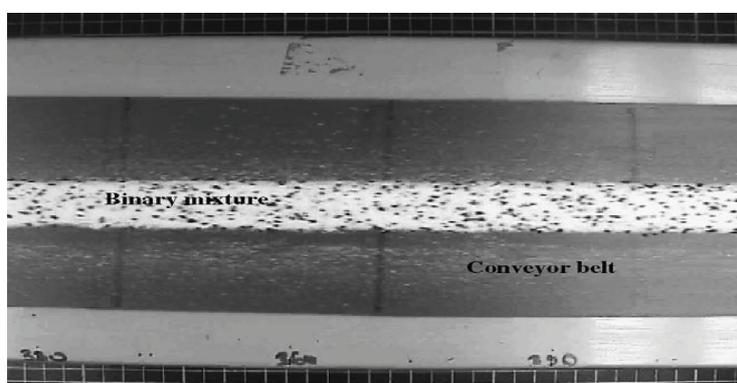


FIGURE 1.31 – Mélange binaire filmé par une caméra CCD [78]

Dans un autre exemple, Demeyre.,2007 [11] a utilisé cette technique d'analyse d'images pour mesurer l'homogénéité d'un système binaire de particules de couscous et de semoule. En particulier, les particules de semoules ont été colorées en noir pour les distinguer du particules de couscous (blanches). L'opération de mélange a été réalisée dans un système discontinu appelé Triaxe (voir figure 1.32). Le dispositif expérimental est piloté par un ordinateur et un logiciel développé sous Labview®.

A la fin de l'opération de mélange, le contenu de la cuve est déversé sur une bande transporteuse qui est filmée par une caméra linéaire numérique.

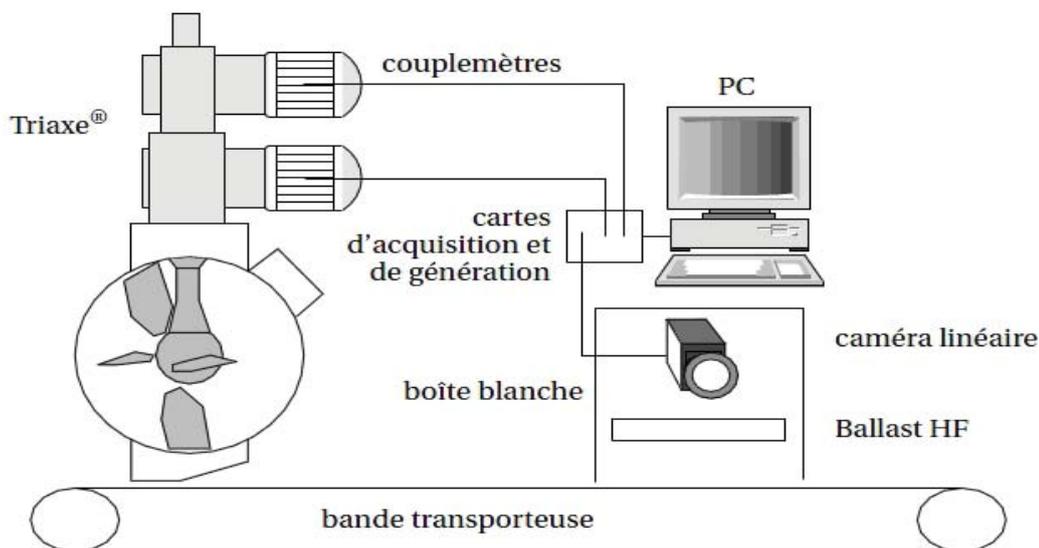


FIGURE 1.32 – Schéma général de la plate-forme expérimentale utilisée par Demeyre [11]

Dans un autre récent exemple, Duamann et al., 2008 [79] ont utilisé une caméra numérique de type Sony VX 2100E pour analyser en ligne l'évolution de la qualité d'un mélange multiconstituant (voir figure 1.33).



FIGURE 1.33 – Dispositif expérimental utilisé par Daumann et al., 2009 [80]

La caméra réalise des acquisitions à des intervalles de temps réguliers. Un exemple des images prises à deux différents instants est proposé sur la figure 1.34. Chaque image est découpée en plusieurs surfaces qui représentent des échantillons. La composition de chaque

échantillon est déterminée grâce à un programme de traitement d'images développé sous Matlab "Image Processing Toolbox".

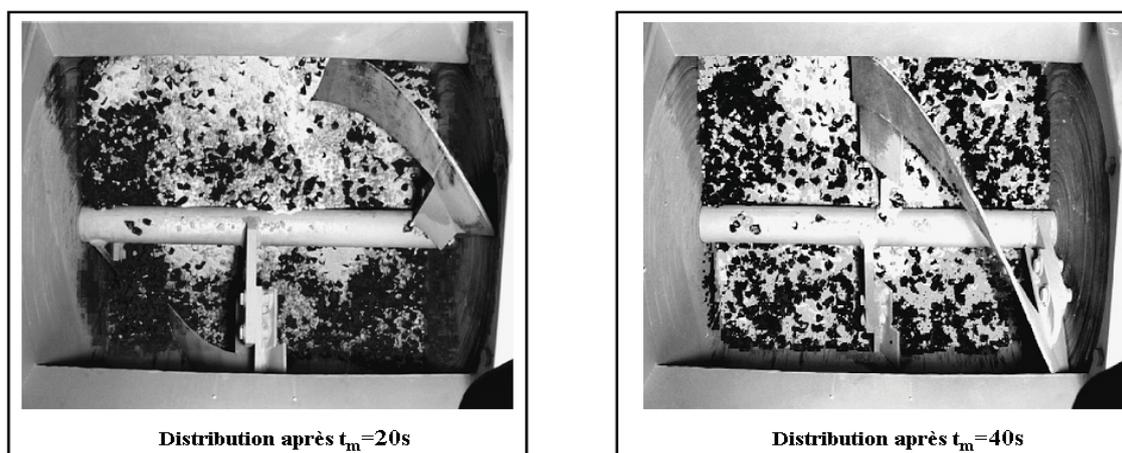


FIGURE 1.34 – Distribution des particules dans le mélangeur après différents temps de mélange  $t_m$  d'après Daumann et al., 2008[79]

L'avantage de la mesure en surface réside dans le fait qu'il n'existe (presque) plus d'erreur de découpe, c'est-à-dire plus d'ambiguïté pour les particules situées sur les frontières des images. Cependant, l'inconvénient majeur de cette technique est qu'elle ne permet d'observer le système qu'en surface, et fournit donc aucune information sur l'intérieur du lit de poudres (Bruel et Gouvre.,2000[81]). De plus, bien qu'il soit possible d'incorporer facilement cette technique d'analyse d'images dans une installation de mélange en continu, elle nécessite que les poudres utilisées soient de couleurs ou de tailles différentes. Excepté ces quelques inconvénients, la technique d'analyse d'images présente de nombreux avantages qui lui permettent d'être envisagée pour la surveillance et l'asservissement d'un procédé de mélange de poudres en continu.

### 1.5.3 Autres techniques analytiques

En plus des méthodes spectroscopiques et les méthodes par analyse d'images, d'autres techniques analytiques peuvent être envisagées pour contrôler un mélange de poudres en continu. Parmi celles-ci, on trouve la méthode capacitive et les méthodes à fibres optiques :

### Méthode capacitive

Dans le domaine des poudres, la technique capacitive est utilisée principalement pour analyser la qualité d'un mélange dont les constituants n'ont pas des permittivités électriques proches. Au milieu des années 1980, un projet sur la tomographie capacitive électrique (TCE) visant à la visualisation des écoulements multi-composant a débuté à l'UMIST[82]. Ceci a donné naissance à plusieurs dispositifs et instruments d'imagerie au début des années 1990. La méthode de TCE utilise plusieurs électrodes ( en pratique 12) ce qui permet de reconstruire l'image du milieu et d'assurer le suivi des propriétés locales de mélange.

Contrairement à l'UMIST qui s'intéresse aux propriétés locales de mélange, le laboratoire de physique des systèmes désordonnés de l'EPUM a mis en place une méthode d'analyse (daloz-dubrujeaud.,2000 [83]) qui se focalise sur les propriétés globales (composition) du mélange en écoulement. Cette méthode nécessite un nombre d'électrodes nettement plus faible (2 à 3 électrodes).

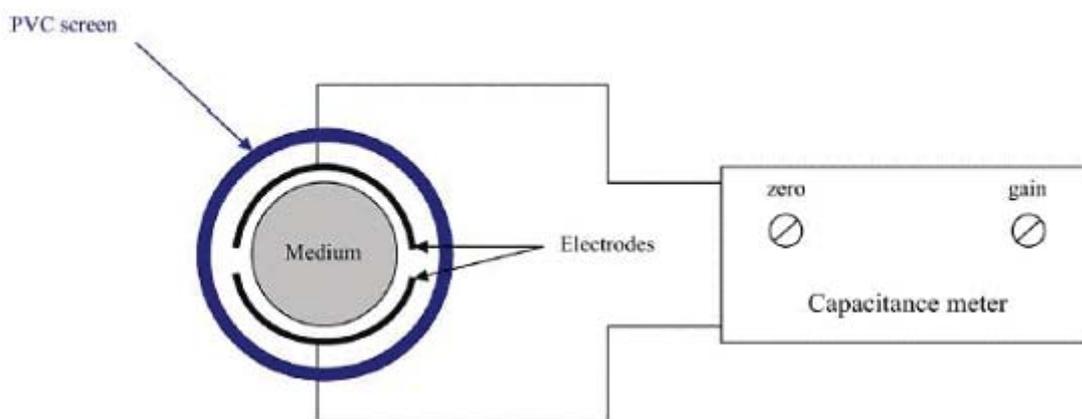


FIGURE 1.35 – Schéma de la technique capacitive d'après Ehrhardt.,2005[84]

Le mélange passe entre deux électrodes d'un condensateur, qui sont placées dans un tube de verre. Ces électrodes étant reliées à un capacimètre, elles permettant de relever des mesures de très faibles variations. Cette technique capacitive ne fournit pas directement la composition du mélange, mais elle permet de mesurer la permittivité diélectrique. La relation entre la permittivité et la composition est proposée par la loi de Bruggeman.,1935[85] :

$$\sum_{i=1}^N \frac{\epsilon_i - \epsilon_m}{\epsilon_i + 2\epsilon_m} P_i = 0 \quad (1.20)$$

Où  $P_i$  représente la fraction volumique de l'espèce ayant la permittivité relative  $\epsilon_i$  et  $\epsilon_m$  est la permittivité du mélange des espèces.

En 2005, Ehrhardt et al. [84] ont utilisé cette technique capacitive pour mesurer l'évolution de la permittivité d'un mélange de particules en écoulement dans un mélangeur statique (voir figure 1.36). L'inconvénient de cette méthode que les produits utilisés doivent avoir des permittivités très différentes, c'est pour cela que Ehrhardt et al. ont choisi d'étudier un mélange de sucre commercial et de carbure de silicium.

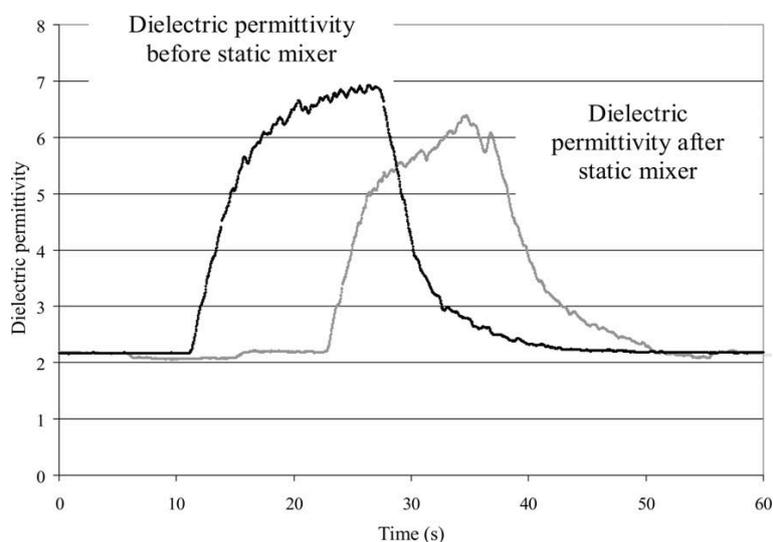


FIGURE 1.36 – Mesure en-ligne de la permittivité d'un mélange des particules traversant un mélangeur statique d'après Ehrhardt[84]

### Méthodes à fibres optiques

Ces méthodes sont basées sur l'utilisation de fibres optiques qui permettent de coder optiquement l'information liée à la grandeur à mesurer. Les caractéristiques optiques des fibres permettent de réaliser des capteurs avec d'excellentes performances. En pratique, ces capteurs sont généralement constitués de deux fibres optiques. La première fibre transmet la lumière alors que la deuxième recueille la lumière réfléchiée et la transforme en un signal de tension. La grandeur physique à mesurer est l'intensité de lumière réfléchiée, qui est liée à la composition du mélange, la relation entre les deux est établie par calibrage de la méthode. Cette technique optique a été appliquée pour la première fois sur des poudres en 1957 par Gray [86]. Celui-ci a utilisé une sonde équipée d'une source de lumière blanche et d'une cellule photo-électrique placée derrière une petite fenêtre en verre. La mesure de l'intensité de lumière réfléchiée par une couche de particules permet de déterminer la composition de l'échantillon analysé, à partir d'une courbe d'étalonnage déterminée préalablement.

Dans un autre exemple, Schofield et al. [87] ont également développé un équipement similaire

à celui qui a été utilisé par Gray (voir figure 1.37). Ce dispositif était destiné à l'étude d'un mélange de particules de mêmes tailles,  $150 \mu\text{m}$ , avec deux couleurs différentes (rouge et blanc).

Par la suite, en 1971, Harwood [88] a utilisé cette même méthode pour analyser des mélanges de poudre de mêmes couleurs en utilisant l'ultraviolet au lieu de la lumière visible comme source de radiation (voir figure 1.38)

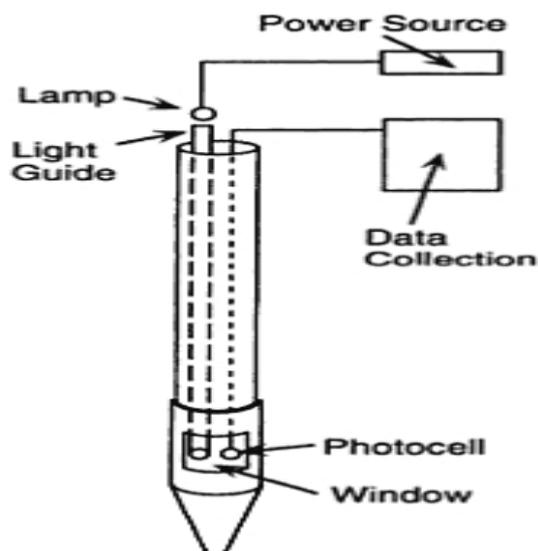


FIGURE 1.37 – Sonde optique développé par Schofield [87]

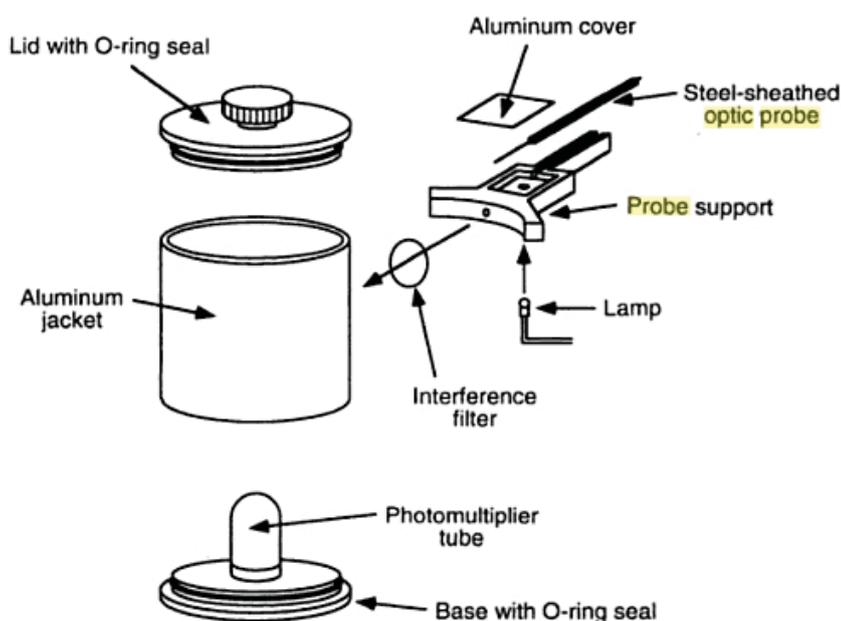


FIGURE 1.38 – Fibre optique développé par Harwood pour étudier le mélange des poudres [88]

Pendant cette dernière décennie, des techniques comme la spectroscopie (infra rouge ou Raman) et les technique d'analyse d'images ont été fréquemment utilisées pour mesurer l'homogénéité de mélange des poudres en continu. L'ensemble des résultats obtenus par les chercheurs ont montré que ces deux techniques sont rapides et assez précises [52, 89]. Bien que ces techniques puissent facilement être intégrées dans un système de contrôle automatique, elles n'ont jamais été utilisées dans l'asservissement des mélangeurs continu [1].

## 1.6 Régulation d'un procédé mettant en jeu un écoulement granulaire

Le but principal de la commande d'un mélangeur continu de poudres est de pouvoir satisfaire les objectifs définis par le cahier des charges en terme d'homogénéité de mélange final, de la manière la plus performante possible. La conduite et la commande d'un tel procédé pourrait garantir la résolution d'une multiplicité de problèmes de natures très différentes :

- réduire les instabilités observées en terme de composition du mélange final.
- assurer la stabilité du procédé.
- maintenir une reproductibilité en qualité et en quantité de la production.
- assurer la flexibilité des systèmes (changement de consigne dans le cas continu).
- procéder aux démarrages et aux arrêts dans les conditions optimales (minimisation des effets des étapes transitoires, optimisation des trajectoires).
- augmenter le gain de production en diminuant le volume du produit non-conforme.

Industriellement, la commande la plus fréquemment utilisée est le régulateur Proportionnel Intégral Dérivé (PID). C'est un organe de contrôle qui permet de calculer les paramètres d'entrée du procédé en prenant en compte la sortie mesurée. En particulier, le PID permet 3 actions simultanées sur l'erreur entre la consigne et la mesure :

- Une action Proportionnelle : l'erreur est multipliée par un gain C
- Une action Intégrale : l'erreur est intégrée sur un intervalle de temps  $T_i$
- Une action Dérivée : l'erreur est dérivée suivant un temps  $T_d$

Dans le cas du procédé de mélange des poudres, la sortie traduit l'homogénéité de mélange qui peut être quantifiée par des critères statistiques (composition moyenne, variance,

coefficient de variation, VRR. ...). Les variables opératoires principales qui peuvent être considérées comme les paramètres de la commande, sont la vitesse d'agitation, les débits des doseurs et l'ouverture de la vanne de sortie ...

Bien que la technique de régulation en boucle fermée par PID représente environ 80% des systèmes utilisés, elle reste insuffisante pour satisfaire la régulation des systèmes plus complexes, comme c'est vraisemblablement le cas pour l'opération de mélange des poudres en continu. Notons ici qu'à l'heure actuelle, il n'existe pas encore de stratégie développée pour contrôler et commander ce procédé. Ainsi, nous nous sommes contentés, dans cette étude bibliographique, d'analyser les solutions proposées pour commander un procédé similaire à celui de mélange des poudres en continu. Plus particulièrement, nous pensons que les solutions développées récemment pour commander un tambour de granulation en continu peuvent être envisagées dans le futur pour commander le procédé de mélange en continu.

En 2006, Sanders et al. [90] ont en effet montré que dans le cas d'un procédé de granulation des poudres en continu, un régulateur PID reste incapable de contrôler la distribution de tailles des particules  $d_{50}$ . Dans ce cas, des techniques de commandes dites « avancées » peuvent être envisagées (adaptive, optimale, prédictive, quadratique...).

Puis en 2007, Glaser et al. [91] ont proposé la commande prédictive comme une technique alternative au PID, en pensant qu'une telle technique serait capable de contrôler le procédé de granulation en continu. Plus précisément, ils ont construit un système de commande prédictive (sous Matlab Control Tool Box), pour contrôler la distribution de tailles des particules en sortie d'un tambour continu de granulation.

Comme le montre la figure 1.39, le système de commande a été appliqué sur une installation de granulation en continu. Le pilote utilisé est composé d'un tambour rotatif horizontal (RD-101) qui sert à mélanger le liant de granulation avec des poudres de taille fine. Ce tambour est alimenté avec trois flux : flux de solide frais (S2), flux des particules recyclées (S9) et flux du liant de granulation (S3a et S3b).

En sortie de l'appareil, les particules en écoulement sont filmées et analysées par un OptiSizer (VC-101). La distribution des tailles de particules est déterminée par analyse d'image.

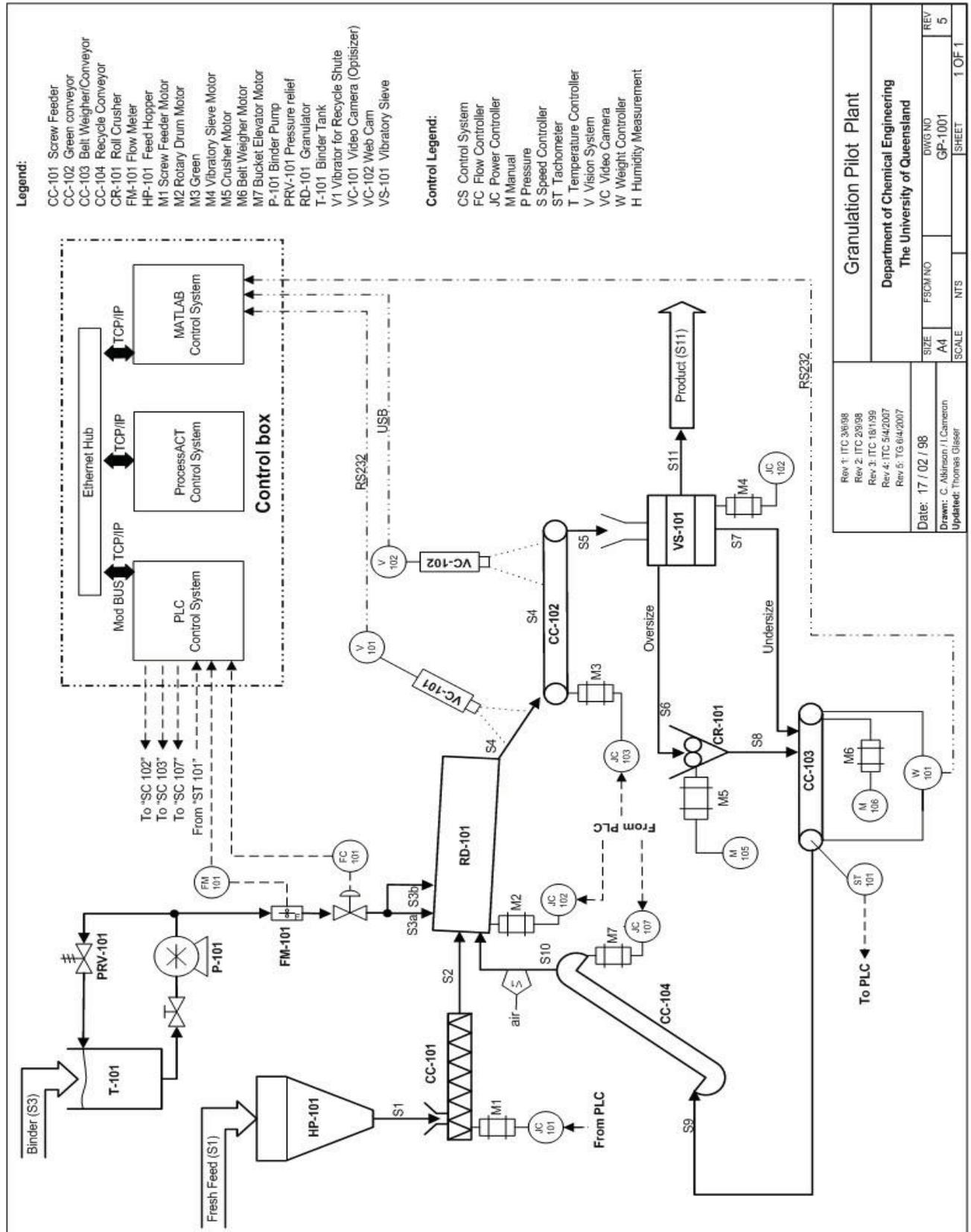


FIGURE 1.39 – Contrôle d'un pilote de granulation par la technique MPC d'après Glaser et al.,2007[91]

En 2006, Wang et al. [92] ont développé un modèle de bilan de population pour décrire la prédiction de la distribution des tailles de particules  $d_{50}$ . Puis en 2007, un deuxième modèle de prédiction du  $d_{50}$  a été développé par Glasser et al. [91], il s'agit d'une fonction de transfert du système obtenue à partir des données expérimentales :

$$G_{plant} = e^{-t_d s} \frac{-k}{\tau s + 1} \quad (1.21)$$

$k$  est le gain de la fonction de transfert,  $\tau$  est une constante du temps, et  $t_d$  est le temps de retard de cette fonction.

Une comparaison entre le modèle de bilan de population, le modèle de fonction de transfert et les résultats expérimentaux est présentée sur la figure 1.40.

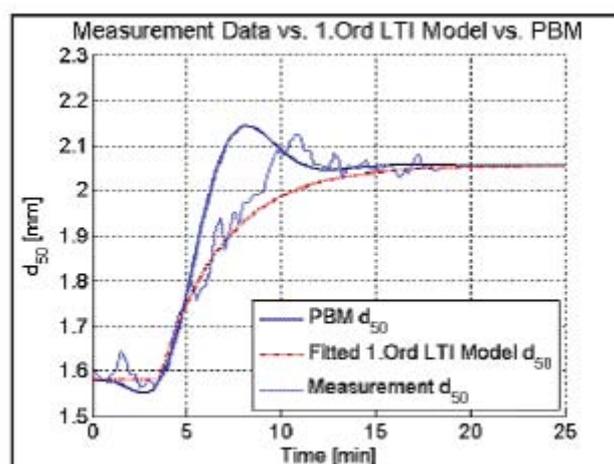


FIGURE 1.40 – Comparaison entre le bilan de population PBM, fonction de transfert, et les mesures expérimentales de la  $d_{50}$  : effet d'un échelon appliqué sur le débit d'alimentation de solides ; échelon de 151kg/h 141 kg/h à  $t=0$  ; d'après Glaser et al., 2007[91]

Pendant la phase transitoire qui suit l'application d'un échelon, la fonction de transfert donne une allure de  $d_{50}$  plus proche et plus précise que le modèle de bilan de population PBM. Ceci, a encouragé Glasser et al.[91] à utiliser la fonction de transfert comme modèle de prédiction pour contrôler la distribution de taille  $d_{50}$  en considérant le débit de solide ( $Q_{solide}$ ) comme un paramètre de commande ou d'action. Le schéma de la stratégie de commande prédictive (utilisée par Glasser et al.[91]) est présenté sur la figure 1.41.

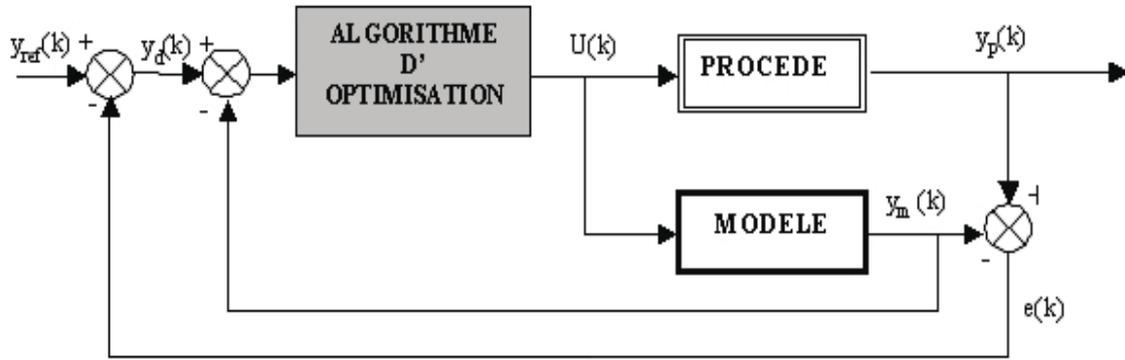


FIGURE 1.41 – Structure de la commande prédictive MPC

L'objectif de la commande prédictive est de déterminer, à chaque pas d'échantillonnage, le vecteur de commande (débit de solide  $Q_{solide} [U_k, \dots, U_{N_c}]$ ) minimisant l'erreur entre la trajectoire de référence (sortie souhaitée  $y_{ref} : d_{50}$ ) et la sortie du procédé prédite sur l'horizon de prédiction  $[k + 1, k + N_p]$ . La sortie du procédé dans le futur est déduite du modèle simulé. Ensuite, la première composante de la séquence de commande est appliquée au prochain pas d'échantillonnage, et la procédure est répétée en prenant en compte les nouvelles mesures actualisées du procédé.

En termes d'optimisation, le problème se résume à la minimisation du critère suivant :

$$\min_{U_k, \dots, U_{k+N_c-1}} J(U) = \sum_{j=k+1}^{j=k+N_p} (y_{ref}(k) - y_p(k))^2 \quad (1.22)$$

Avec :  $y_{ref}$  : sortie souhaitée  $d_{50}$  (la consigne) ;  $y_p$  : sortie du procédé ;  $N_p$  : horizon de prédiction ;  $N_c$  : horizon de commande.

Comme indiqué précédemment, Glaser et al., [91] ont appliqué la commande prédictive sur le procédé de granulation en continu. Un exemple des résultats obtenus par cette méthode est présenté sur la figure 1.42 :

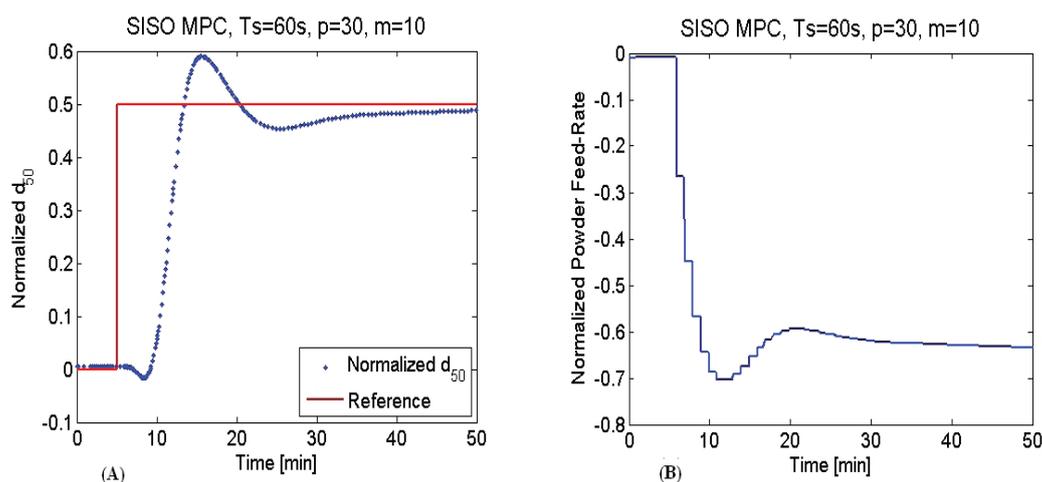


FIGURE 1.42 – (A) résultats de  $d_{50}$  « normalisée » obtenue par la commande prédictive; (B) débit de solide « normalisé » appliqué pendant la régulation par la commande prédictive; Temps d'échantillonnage  $T_s=60s$ ; horizon de prédiction  $N_p = 30$ , Horizon de commande  $N_c = 10$ ; d'après Glaser et al.,2007 [91]

La prédiction de la distribution de taille des particules  $d_{50}$  (sortie normalisée) est faite en calculant le vecteur des futures entrées (débit d'alimentation de solide normalisé (voir figure 1.42(B)) à travers l'optimisation de la fonction objectif 1.22. Cette optimisation force la sortie future  $d_{50}$  à se rapprocher de la trajectoire référence (sortie souhaitée  $d_{50}$ ).

Les résultats obtenus par la MPC dans le domaine de granulation sont encourageants ; l'application de cette technique dans le cas d'un mélangeur des poudres peut être envisageable à condition d'avoir un modèle précis, et suffisamment rapide pour qu'il soit résolu en ligne. Le succès de cette technique en dépend dans une large mesure.

## 1.7 Modèles dynamiques

### 1.7.1 Cinétique de mélange

La dynamique de mélange dans les systèmes discontinus est caractérisée par l'évolution cinétique de l'homogénéité en suivant la variation de l'écart type ou d'un indice de mélange avec le temps de mélange. En pratique, cette étude cinétique de l'homogénéité permet d'identifier le temps nécessaire pour obtenir un bon degré de mélange (temps optimal). Le graphe de la figure 1.43 présente la courbe cinétique la plus classique.

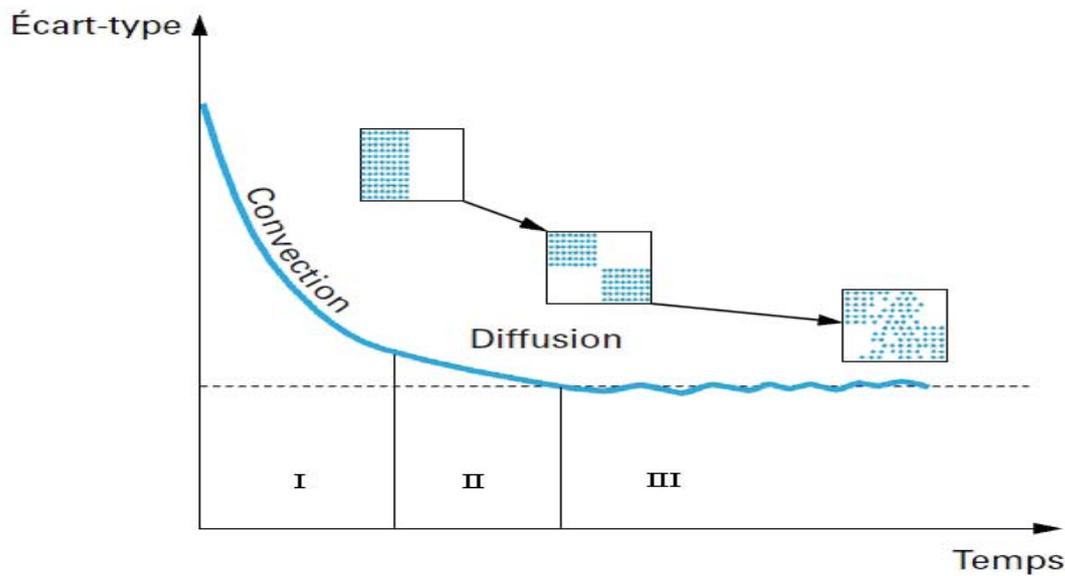


FIGURE 1.43 – Courbe cinétique caractéristique d'un procédé de mélange (batch)

Cette courbe cinétique peut être découpée en trois portions :

- (I) : cette zone est caractérisée par un mélange convectif prépondérant. Les mouvements convectifs, qui autorisent des réarrangements pratiquement à l'échelle du mélangeur, ont pour effet immédiat des réductions de variance particulièrement importantes, entraînant l'allure observée pour la première partie de la courbe (allure d'exponentielle décroissante).
- (II) : cette zone est marquée par un ralentissement de la cinétique de mélange, les mécanismes de mélange sont à la fois convectifs et dûs à des mouvements de cisaillement dont les effets sont moins notables.
- (III) : cette dernière zone présente une courbe qui se rapproche d'une asymptote en présentant parfois des oscillations de faibles amplitudes. Elle est caractérisée par un mécanisme de mélange diffusif prépondérant, et qui se trouve en compétition avec celui de ségrégation par percolation. Ceci donne lieu à un équilibre dynamique entre le mélange et la ségrégation.

### Modèle cinétique sans ségrégation

Pour tous les mélangeurs, le logarithme de l'écart type décroît linéairement avec le temps lors de la période initiale de mélange. Ceci peut s'exprimer par une équation de vitesse du premier ordre :

$$\frac{dM}{dt} = A(1 - M) \quad (1.23)$$

Avec  $M = 1 - \frac{\sigma}{\sigma_0}$

avec M indice de mélange de Rose [93].

Le coefficient A, appelé constante de vitesse du procédé, quantifie la pente de la droite obtenue à l'étape initiale. Cette constante est fortement dépendante des conditions opératoires et des propriétés des poudres.

### Modèle cinétique avec ségrégation

D'après Rose.,1959[93], on peut représenter mathématiquement la variation de l'indice de mélange M en fonction du temps. Ceci en mettant en compétition deux potentiels, un potentiel de mélange (1-M) et un potentiel de ségrégation  $\Phi$ .

$$\frac{dM}{dt} = A(1 - M) - B\Phi \quad (1.24)$$

$$M = 1 - \frac{\sigma}{\sigma_0} \quad \text{et} \quad \Phi = \sqrt{1 - M}$$

M indice de mélange de Rose ; A constante cinétique  $s^{-1}$  ; B constante de ségrégation  $s^{-1}$ .

Le potentiel de ségrégation peut être positif ou négatif selon la distribution spatiale des constituants. Par exemple, si les constituants sont de densité différente, le potentiel est négatif si le composant le plus dense est placé au dessus, et réciproquement, le potentiel est positif si le composant le plus dense est initialement chargé au fond du mélangeur. La résolution de l'équation de Rose 1.24 et la recherche de l'optimum permet de déterminer les temps de mélange opérationnels.

$$\forall t, \Phi > 0 \Rightarrow M = \eta \left[ 1 - \left( \frac{B}{A} + \left( 1 - \frac{B}{A} \right) \exp(-At) \right)^2 \right] \Rightarrow t_m = \frac{2}{A} \ln \left( 1 + \frac{B}{A} \right) \quad (1.25)$$

$$\forall t, \Phi < 0 \Rightarrow M = \eta \left[ 1 - \left( \frac{B}{A} - \left( 1 + \frac{B}{A} \right) \exp(-At) \right)^2 \right] \Rightarrow t_m = \frac{2}{A} \ln \left( 1 + \frac{B}{A} \right) \quad (1.26)$$

$t_m$  : temps optimal de mélange ;  $\eta$  : efficacité.

## 1.7.2 Modèle de mélange par diffusion et convection

### Modèle de mélange par diffusion

Nous avons vu précédemment (dans 1.1.2) qu'il existe trois mécanismes de transport de particules solides : la convection met en jeu le déplacement d'un ensemble des particules, la diffusion correspond à une succession de déplacements élémentaires d'une particule dans la structure, et le mécanisme de cisaillement qui représente un déplacement des particules

par couches. Pour modéliser la dispersion des particules solides, Lacey, 1954 [12] a proposé un mécanisme analogue à la diffusion moléculaire décrite par la loi de Fick (1855). Cette loi est purement phénoménologique et s'apparente aux célèbres lois de Fourier. En effet, après de nombreuses expériences, Fick a remarqué que le flux de matière est proportionnel au gradient de la concentration. Le flux est donné par la loi suivante :

$$J = -D \cdot \text{grad}(C) \quad (1.27)$$

$C$  est la concentration de l'espèce diffusante;  $D$  est le coefficient de diffusion en  $m^2/s$ ;  $\text{grad}(C)$  est le gradient de la concentration, le signe (-) indique que le flux va des lieux les plus concentrés vers les moins concentrés.

A partir de la première loi de Fick, on arrive à déterminer la concentration d'une espèce en fonction du temps et de l'espace : sa variation est décrite par la seconde loi de Fick.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (1.28)$$

Par analogie avec ce mécanisme de diffusion moléculaire, Lacey, 1954 [12] a proposé cette même loi (équation 1.28) pour décrire la diffusion des particules de solides.

Sur le même principe que Lacey, Koga, 1980 [94] a défini l'équation suivante pour des particules de densités différentes :

$$\frac{\partial p(x, n_t)}{\partial n_t} = D_a \frac{\partial^2 p(x, n_t)}{\partial x^2} \quad (1.29)$$

$n_t$  = nombre de tours effectuées par le mélangeur.

$p(x, n_t)$  = concentration relative du traceur =  $\frac{C(x, n_t)}{\int_0^L C(x, n_t)}$

$L$  = longueur du mélangeur.

$x$  = distance à partir de l'extrémité gauche du mélangeur.

Le modèle de diffusion tel qu'il est décrit ne prend pas en compte la ségrégation. Et par conséquent, il n'est pas applicable aux poudres réelles. Un autre modèle de mécanisme de diffusion a été développé pour tenir compte de la ségrégation (Strek., 1978 [95]). Ce modèle a été appliqué sur un mélange binaire en écoulement dans un mélangeur à tambour horizontal. Dans ce modèle, la concentration du composé clé  $C(z, t)$  est considérée comme une somme de deux concentrations :

$$C(z, t) = C_{\text{mélange}}(z, t) + C_{\text{ségrégation}}(z, t) \quad (1.30)$$

Le modèle de diffusion devient :

$$\frac{\partial C_{\text{mélange}}(z, t)}{\partial t} = D_{\text{mélange}} \left( \frac{\partial^2 C_{\text{mélange}}(z, t)}{\partial z^2} + \frac{1}{z} \frac{\partial C_{\text{mélange}}(z, t)}{\partial z} \right) \quad (1.31)$$

$$\frac{\partial C_{\text{ségrégation}}(z, t)}{\partial t} = \frac{D_{\text{ségrégation}}}{t^k} \left( \frac{\partial^2 C_{\text{ségrégation}}(z, t)}{\partial z^2} + \frac{1}{z} \frac{\partial C_{\text{ségrégation}}(z, t)}{\partial z} \right) \quad (1.32)$$

$D_{\text{mélange}}$  = coefficient de diffusion de mélange,  $D_{\text{ségrégation}}$  = coefficient de diffusion de ségrégation, et  $k$  est une constante.

### Modèle de mélange par diffusion et convection

Un modèle, basé sur le réarrangement de paquets de particules selon un mécanisme de type convectif, a été proposé par Lai.,1978[96]. Il consiste à représenter l'action de mélange à l'aide de divisions et de recombinaisons successives (figure 1.44 )

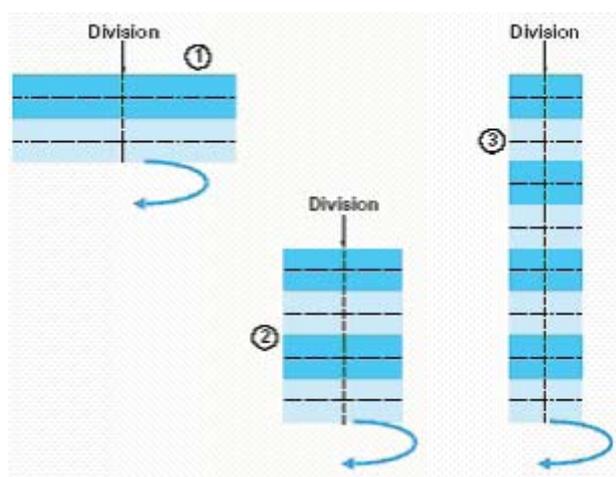


FIGURE 1.44 – Trois phases successives du mélange selon Lai et Col (d'après Lai et Fan 1978)

En ajoutant un caractère dispersif au modèle de Lai[96] , on peut essayer de représenter le mouvement des particules par un modèle combinant ces deux mécanismes (équation de Fokker-Planck [26]) :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -V \frac{\partial C}{\partial z} + D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (1.33)$$

$C$  : concentration locale en un des constituants ;  $z$  : coordonnée spatiale ;  $t$  coordonnée temporelle ;  $V$  : vitesse de transport local et  $D$  : coefficient de dispersion.

Cette équation représente les variations locales de composition dans le cas d'un mécanisme de mélange par diffusion couplé à la convection (figure 1.45).

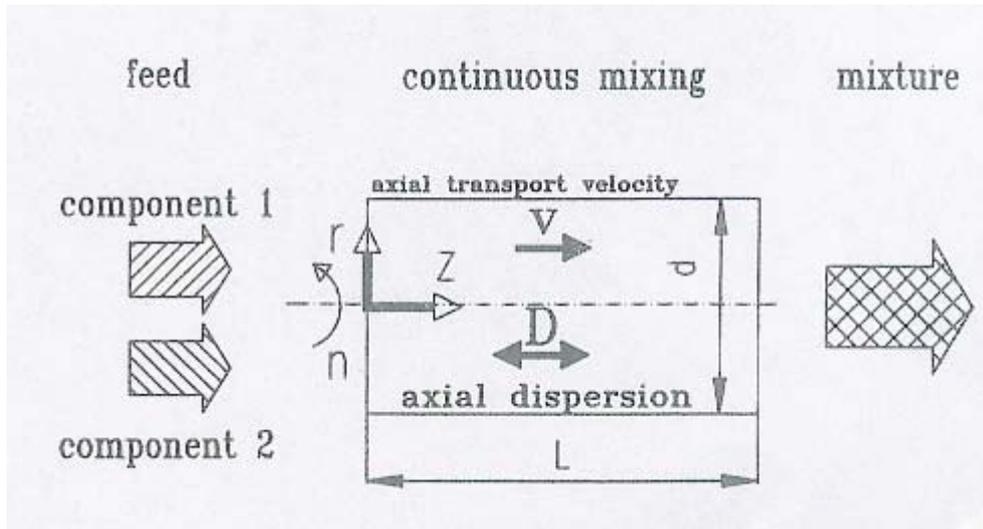


FIGURE 1.45 – Mélange par diffusion couplé à la convection d'après Weinekötter.,1995 [26]

où  $z$  est l'axe longitudinal du mélangeur ; et  $L$  est la longueur du mélangeur.

En régime permanent cette équation s'écrit sous la forme suivante :

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = V \frac{\partial C}{\partial z} \quad (1.34)$$

On peut transformer l'équation précédente (1.33) en une équation adimensionnelle en faisant intervenir les paramètres et abscisse effectifs (normalisés) :

$$x = \frac{z}{L}; \quad \theta = \frac{t}{\tau}; \quad \tau = \frac{L}{V}; \quad N_D = \frac{D}{LV}; \quad P_e = \frac{1}{N_D}$$

On obtient ainsi :

$$\frac{1}{LV} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{LV} D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - V \frac{1}{LV} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (1.35)$$

$$\frac{1}{L^2} \frac{\partial C}{\partial \theta} = \frac{1}{LV} D \frac{\partial^2 C}{L^2 \partial z^2} - V \frac{1}{L^2 V} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (1.36)$$

$$\frac{\partial C}{\partial \theta} = N_D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\partial C}{\partial z} \quad (1.37)$$

La diffusion des particules ne devient efficace pour le mélange qu'à des échelles de longueur suffisamment petites pour que le nombre de Peclet associé soit petit devant l'unité. Pour un nombre de Peclet faible, on se rapproche du comportement d'un mélangeur parfaitement agité. Inversement, pour un nombre de Peclet élevé, le mécanisme de transport par convection devient prédominant et l'écoulement se rapproche du modèle piston.

En 1994, Sommer.,[97] a utilisé ce modèle d'équation de Fokker Plank pour décrire comment les fluctuations périodiques de la concentration sont réduites dans un mélangeur continu. Puis en 2007, Kehlenbeck et Sommer [98] ont validé ce modèle expérimentalement dans le cas d'un mélange binaire. Pour cela, ils ont utilisé deux équations de Fokker Plank décrivant simultanément l'évolution de la concentration axiale de chaque composé dans le mélangeur continu :

$$\frac{\partial C_1(z, t)}{\partial t} = -V_1 \frac{\partial C_1}{\partial z} + D_1 \frac{\partial^2 C_1(z, t)}{\partial z^2} \quad (1.38)$$

$$\frac{\partial C_2(z, t)}{\partial t} = -V_2 \frac{\partial C_2}{\partial z} + D_2 \frac{\partial^2 C_2(z, t)}{\partial z^2} \quad (1.39)$$

$C_1$  composé 1 et  $C_2$  composé 2.

Le mélange dans la direction radiale est supposé idéal. De ce fait la concentration ne change que selon l'axe  $z$ . Les principaux paramètres de ces deux équations sont les vitesses de transport  $V_1$  et  $V_2$  et les coefficients de dispersion  $D_1$  et  $D_2$ . Pour des raisons de simplification, Kehlenbeck.,2007[98] a choisi deux types de poudres similaires en termes de diamètre moyen des particules, de densité et de forme. Cela lui a permis de supposer que les deux constituants ont le même coefficient de dispersion et la même vitesse de transport. En effet, le coefficient de dispersion décrit le mouvement aléatoire des particules dans le mélangeur, il dépend de la mobilité individuelle de chaque grain. Le coefficient de transport (ou la vitesse de transport) caractérise le flux convectif existant à l'intérieur du mélangeur, qui est créé par les mouvements rotatifs de mélangeur.

Les résultats obtenus par Kehlenbeck.,[98] ont montré deux points importants :

- les mécanismes de mélange des poudres dans un système continu peuvent être décrits correctement par les équations de Fokker Plank.
- la qualité du mélange est fortement influencée par le rapport du temps de séjour moyen sur la durée de la période des fluctuations appliquées en entrée du mélangeur.

### 1.7.3 Méthodes des éléments discrets DEM

Les méthodes des éléments discrets DEM «discret element method » sont des méthodes de calcul numérique permettant de décrire le mouvement d'un grand nombre des particules en écoulement. Le milieu composé de grains n'est pas traité comme un milieu continu, avec les méthodes de la mécanique des milieux continus, comme celle des éléments finis. Chaque grain, en effet, est traité indépendamment, comme un corps rigide ou simplement déformable, avec un nombre fini de degrés de liberté. Ceci consiste à affecter à chaque grain

ou particule une identité propre (nature, taille, forme) et par conséquent une cinématique et un comportement mécanique spécifique à cette échelle.

Parmi les méthodes DEM, on peut distinguer principalement les méthodes DEM de Cundall et Strack (Cundall.,1971 et Cundall.,1979) [99, 100], dédiées à des collections de grains rigides (parfois déformables), disques, sphériques, blocs polygonaux ou polyédriques. Les tailles de grains traitées par la DEM varient entre l'échelle macroscopique (roches) et mesoscopique (poudres). Les forces d'interaction de contact et de frottement sont décrites par des modèles provenant de méthodes explicites d'intégration numérique de l'équation de la dynamique.

La méthode des éléments discrets est basée sur l'application de la relation fondamentale de la dynamique sur chaque grain pour déterminer sa position à un instant donné. Lors de chaque itération on étudie le contact de chaque grain avec son entourage. Ces contacts permettent de modéliser les efforts que reçoit chaque grain de son environnement. Plus précisément, ces efforts (ou forces extérieures) sont essentiellement la gravité, les forces dues aux contacts particule-particule et particule-paroi, sans oublier les forces de Van Der Waals qui peuvent être considérées comme relativement négligeables.

La figure 1.46 montre le principe de l'algorithme utilisé par Cundal dans le cas de la méthode DEM.

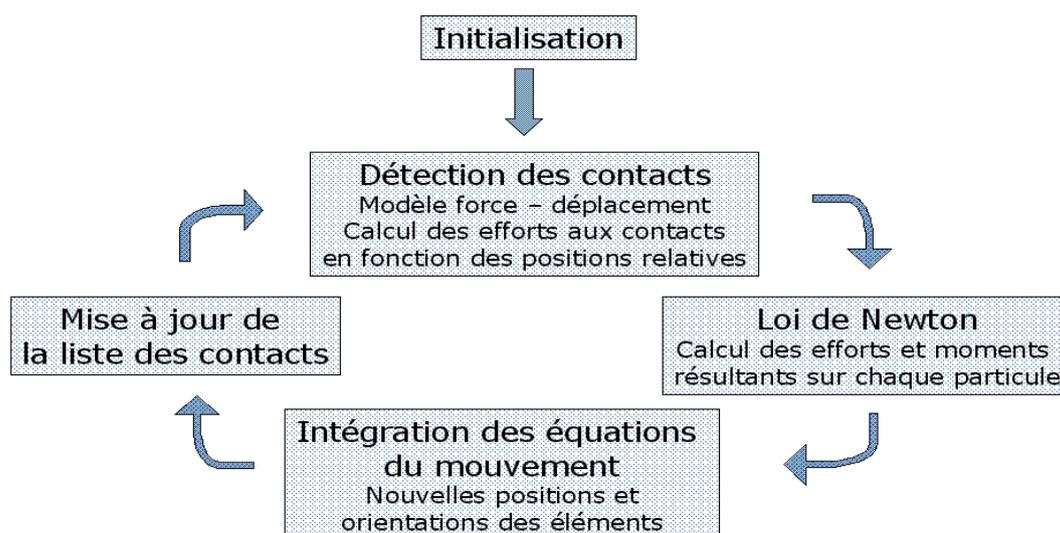


FIGURE 1.46 – Principe de la DEM

- Initialement, on définit les caractéristiques physiques (masse, densité, rugosité...) et géométriques (taille, forme...) du milieu granulaire. L'enceinte où se déroule l'écoulement (mélangeur, réacteur...) est également bien prédéfinie (forme, dimension...).
- La recherche des contacts potentiels entre deux grains constitue une étape déterminante de l'algorithme de Cundall. Deux grains sont en contacts si la somme de leur rayon est supérieure à la distance qui sépare leur centre de gravité.
- L'application de la relation fondamentale de la dynamique permet de déterminer les forces et les moments appliqués sur chaque particule.
- La position de chaque grain à l'instant  $t$  est déterminée par l'intégration des équations de mouvement.
- La dernière étape est la mise à jour des listes de voisinage. Elle sert à limiter la recherche du possible contact entre les grains dans un nombre limité des particules.

La limitation principale de cette méthode est le temps nécessaire pour calculer et détecter les points de contacts. Plusieurs chercheurs ont proposé des algorithmes permettant d'améliorer relativement ce temps. On peut citer par exemple O'Connor 1996[101] pour les particules super quadriques, Müller 1996 [102] pour les particules polygonales convexes, Chung et Weng[103] pour les polyèdres convexes, Lin et Ng [104] ou Trabelsi et Moakher[105] pour les particules ellipsoïdales. En ce qui concerne les particules sphériques, plusieurs approches ont été utilisées, par exemple Müller 1996 [102] a proposé en 2D de réaliser une triangulation de Delaunay de l'ensemble des barycentres de grains. Il est ensuite aisé, en utilisant les arêtes de trouver rapidement la liste des grains en contact potentiel avec un grain donné. En 3D, Ferrez.,2001[106] a utilisé une tétraédrisation de Delaunay pour résoudre ce problème de voisinage.

Malgré les progrès réalisés dans le domaine des systèmes informatiques, que ce soit en terme de puissance de calcul ou de capacité de stockage de l'information, l'utilisation de la DEM dans la simulation d'un écoulement granulaire reste très limitée. En 2000 par exemple, Kaneko et al.,[107] ont utilisé cette technique pour simuler l'écoulement des particules dans un mélangeur à rubans ; Pour uniquement  $10^5$  particules de diamètre de 8mm, il a fallu 8h de temps de calcul pour décrire 1 seconde de simulation. Dans un autre exemple, Stewart et al.,2001[108] ont pu comparer le comportement dynamique d'un flux granulaire dans un mélangeur avec des simulations basées sur la DEM. Le mélange étudié était composé de  $10^6$

particules de billes de verre de 5mm de diamètre.

Puis en 2002, Clearly et al., [109] ont réalisé des simulations d'un mélange de  $5 * 10^6$  particules dans un temps raisonnable, ceci en utilisant des stations de calcul très puissantes. Plus précisément, ils ont utilisé la DEM pour prédire la dynamique de l'écoulement et du mélange dans deux types de mélangeurs : le premier est de 50 mm de longueur et 250 mm de diamètre interne, alors que le deuxième est deux fois plus long (1m de longueur et de 250mm de diamètre). Au total,  $103 * 10^3$  particules sphériques ont été introduites dans le premier mélangeur, et  $250 * 10^3$  dans le deuxième. Les particules utilisées avaient un diamètre compris entre 2,5 et 5 mm.

Récemment, Lemieux et al., 2008 [110] ont montré que la DEM peut être utilisée pour décrire l'écoulement, d'un grand nombre des particules, réalisé pendant un certain temps relativement grand. Plus précisément, ils ont simulé l'écoulement de 225000 particules dans un mélangeur à double cuve en V, comme illustré sur la figure 1.47. Pour simuler 120 s d'écoulement (ou encore 60 rotations du mélangeur) il a fallu quelques semaines du temps de calcul.

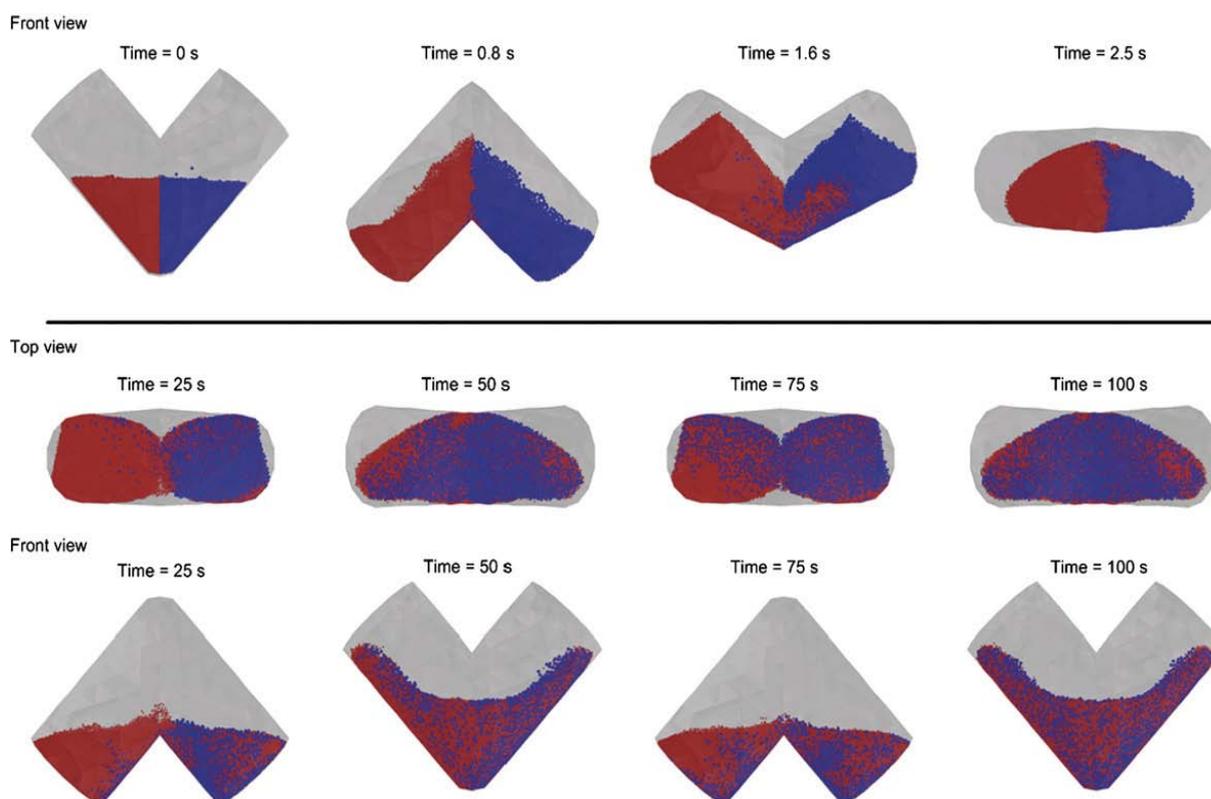


FIGURE 1.47 – Simulation DEM de l'écoulement des particules (rouges) de 3mm de diamètre mélangées avec des particules (bleues) de 6mm de diamètre ; Mélangeur à double cuve en V ; d'après Lemieux et al., 2008 [110]

Le tableau 1.2 permet d'avoir une idée du temps nécessaire pour la simulation (DEM) en fonction de la puissance des ordinateurs [111]. On note ici que même avec un ordinateur de 64 processeurs, le temps de simulation reste très limitant (surtout dans une optique de contrôle).

TABLE 1.2 – Temps de simulation DEM pour une rotation de mélangeur «tambour rotatif» : cas des particules sphériques (d'après Bertrand.,2005[111])

nombre de particule	Simple ordinateur en série	32 processeurs	64 processeurs
$10^3$	3 heures	10 minutes	5 minutes
$10^4$	1.25 jours	2 heures	1 heure
$10^6$	4 mois	1 semaine	3.5 jours

Pour ces différents raisons de limitation en taille de mémoire et en temps de calcul, les échantillons traités par le calcul numérique comportent nécessairement un nombre limité de grains, en particulier si les actions intergranulaires sont décrites avec exigence. Généralement, ce nombre varie de  $10^3$  à  $3 * 10^3$ , voire  $10^6$  à  $3 * 10^6$ . Cependant, de tels échantillons de mélange sont de taille bien petite, comparée à celle utilisée dans les applications industrielles à grande échelle ou de même en recherche. A titre d'illustration,  $1\text{ cm}^3$  de sable de plage fin de diamètre(0.1mm) contient environ  $10^6$  grains. Si on utilise une poudre cohésive de  $10\mu\text{m}$  de diamètre, le nombre de particules dans le mélangeur dépasse les limites que les ordinateurs actuels peuvent simuler par la DEM, ceci même si on utilise un mélangeur de petit volume [98].

Vue l'actuelle limitation de la DEM, notamment en terme de temps de simulation, il est indispensable de s'intéresser aux méthodes stochastiques qui sont beaucoup plus rapides en terme de temps de calcul, comme c'est le cas par exemple pour le modèle de Fokker-Planck, la simulation de Monte-Carlo et la théorie des chaînes de Markov.

#### 1.7.4 Modèle stochastique d'une chaîne de Markov

En mathématiques, une chaîne de Markov est un processus stochastique possédant la propriété Markovienne (Tamir.,1998[112]). Dans un tel processus, toute l'information utile pour la prédiction du futur est contenue dans l'état présent du système et dans la probabilité de transition de celui-ci vers l'état suivant. La connaissance de tous les états du passé n'est alors pas nécessaire pour la prédiction du futur, ce qui est un point réduisant très sensiblement les temps de calcul.

Mathématiquement, une chaîne de Markov est une séquence  $X_1, X_2, X_3, \dots$  de variables aléatoires. L'ensemble de leurs valeurs possibles est appelé l'espace d'états, la valeur  $X_n$  étant l'état du processus au moment  $n$ . Si la distribution de probabilité conditionnelle de  $X_{n+1}$  sur les états passés est une fonction de  $X_n$  seul, alors :

$$P(X_{n+1} = x / X_0, X_1, X_2, \dots, X_n) = P(X_{n+1} = x / X_n) \quad (1.40)$$

où  $x$  est un état quelconque du processus.

La modélisation par chaîne de Markov reste relativement peu connue en génie des procédés. La raison de cette méconnaissance relève principalement du fait que la plupart des publications sur la théorie des chaînes de Markov sont destinées aux mathématiciens, et plus particulièrement à ceux qui travaillent dans les domaines des probabilités et des statistiques. Ce n'est que depuis quelques années que les chercheurs en génie des procédés, et plus particulièrement dans le domaine des solides divisés, ont commencé à s'intéresser aux chaînes de Markov comme une alternative aux approches plus traditionnelles. L'avantage principal de l'utilisation de cette théorie Markovienne, qui prend en compte l'aspect non continu du milieu granulaire et le caractère aléatoire des mouvements des particules, réside dans la simplicité du modèle et dans le faible temps de calcul.

### **Principe de chaîne de Markov**

Le principe du modèle Markovien consiste à décomposer le système étudié en un nombre fini de cellules reliées entre elles par des flèches représentant les transitions entre ces cellules qui sont appelées les états du système.

Pour faciliter la compréhension de la théorie des chaînes de Markov, nous présentons dans la figure 1.48 un exemple d'un procédé (en fonctionnement continu) découpé en 3 cellules actives plus un état absorbant qui représente la sortie du système, et depuis lequel aucune transition n'est possible.

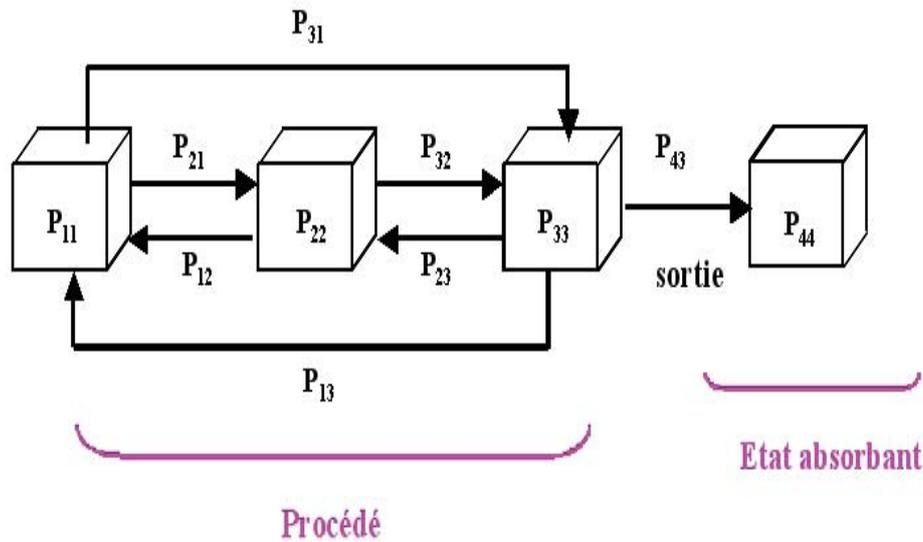


FIGURE 1.48 – Schéma de principe du modèle Markovien appliqué à un système continu

Soit  $S(n)$  le vecteur représentant l'état de la chaîne à la transition  $n$  :

$$S(n) = \begin{pmatrix} S_1(n) \\ S_2(n) \\ S_3(n) \\ S_4(n) \end{pmatrix} \quad (1.41)$$

$S_i(n)$  est l'état de la cellule  $i$  à la transition  $n$ .

Les probabilités de transitions de la cellule  $j$  à la cellule  $i$  sont regroupées dans la matrice  $P$  données sous la forme suivante :

$$P(n) = \begin{pmatrix} P_{11}(n) & P_{12}(n) & P_{13}(n) & P_{14}(n) \\ P_{21}(n) & P_{22}(n) & P_{23}(n) & P_{24}(n) \\ P_{31}(n) & P_{32}(n) & P_{33}(n) & P_{34}(n) \\ P_{41}(n) & P_{42}(n) & P_{43}(n) & P_{44}(n) \end{pmatrix} \quad (1.42)$$

Pour ce système composé de 4 cellules, la matrice  $P$  est une matrice carrée de (4,4). Chaque élément  $P_{ij}(n)$  de cette matrice représente la probabilité d'une transition (de la propriété observée par la chaîne de Markov) de la cellule  $j$  vers la cellule  $i$  à la transition  $n$ . La somme des éléments d'une colonne vaut toujours 1 :

$$\sum_{i=1}^{i=n} P_{j,i} = 1 \quad (1.43)$$

La connaissance de la matrice des probabilités à la transition  $n$  ( $P(n)$ ) permet de déterminer

la distribution du système après (n+1) transitions en utilisant l'équation matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} S_1(n+1) \\ S_2(n+1) \\ S_3(n+1) \\ S_4(n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11}(n) & P_{12}(n) & P_{13}(n) & P_{14}(n) \\ P_{21}(n) & P_{22}(n) & P_{23}(n) & P_{24}(n) \\ P_{31}(n) & P_{32}(n) & P_{33}(n) & P_{34}(n) \\ P_{41}(n) & P_{42}(n) & P_{43}(n) & P_{44}(n) \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} S_1(n) \\ S_2(n) \\ S_3(n) \\ S_4(n) \end{pmatrix} \quad (1.44)$$

Habituellement, dans la représentation Markovienne les transitions ne sont autorisées que d'une cellule aux cellules adjacentes. Ainsi le système matriciel de l'équation 1.44 devient :

$$\begin{pmatrix} S_1(n+1) \\ S_2(n+1) \\ S_3(n+1) \\ S_4(n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11}(n) & P_{12}(n) & 0 & 0 \\ P_{21}(n) & P_{22}(n) & P_{23}(n) & 0 \\ 0 & P_{32}(n) & P_{33}(n) & 0 \\ 0 & 0 & P_{43}(n) & 1 \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} S_1(n) \\ S_2(n) \\ S_3(n) \\ S_4(n) \end{pmatrix} \quad (1.45)$$

Comme on peut le constater, l'expression proposée pour les systèmes Markoviens montre qu'il n'est pas nécessaire de connaître tous les états antérieurs occupés par un système pour prédire quelle sera son évolution après (n+1) étapes, la connaissance de l'état n est suffisante. Si les probabilités de transitions sont indépendantes du temps ou de l'état du système, la matrice sera constante et le processus est linéaire. Dans ce cas, la chaîne de Markov est homogène et le système matriciel Markovien est donné par l'équation suivante :

$$S(n+1) = P^n * S(t=0) \quad (1.46)$$

### Quelques exemples d'application de la chaîne de Markov

Dans le domaine des solides divisés, L.T Fan et son équipe ont été les premiers à s'intéresser à l'utilisation des chaînes de Markov pour traiter des problèmes mettant en jeu un écoulement granulaire (1970 - 1990). Ensuite, d'autres chercheurs se sont intéressés à ce type de modélisation. Ils l'ont appliqué sur différents procédés ; tels que la fluidisation et le mélange des poudres. Certains exemples de ces travaux de recherches sont commentés dans ce qui suit.

#### 1-Cas d'un écoulement granulaire en lit fluidisé :

En 1986, Fox et Fan [113] ont utilisé un modèle Markovien monodimensionnel pour modéliser un lit fluidisé cylindrique. L'appareil a été divisé en plusieurs cellules successives le long de la direction axiale. Les transitions des particules ont été autorisées uniquement entre chaque cellules adjacentes. Ce modèle Markovien homogène (avec des probabilités constantes) a été considéré comme une première approche permettant de représenter l'écoulement des poudres dans un lit fluidisé. Par la suite, cette approche a été développée pour prendre en compte toute la complexité du système.

En 1999, Dehling et al. [114] ont utilisé une chaîne de Markov pour décrire la distribution des temps de séjours (DTS) dans un lit fluidisé continu. Le principe de ce modèle consiste à diviser le lit en un certain nombre de cellules axiales entre lesquelles les particules peuvent transiter sous l'action des mécanismes de transport. Dans ce travail, le modèle Markovien est basé principalement sur les équations différentielles obtenues par la théorie de la diffusion. La chaîne de Markov a été également utilisée comme une approximation du modèle diffusif, en prenant en compte la force de traînée due aux efforts exercés par le flux d'air et par la force de gravité. Comme pour le modèle de Fox et Fan [113], ce modèle est unidimensionnel car seul le flux axial est considéré.

Dans un autre exemple, Harris et al., 2002 [115] ont développé un modèle stochastique pour décrire la distribution de temps de séjour des particules solides dans un lit fluidisé. Basé sur une chaîne de Markov, ce modèle illustre l'effet des variables opératoires sur la DTS. Dans cet exemple, Harris et al., [115] ont utilisé la structure de cœur-anneau de l'écoulement (flux de solide montant au centre et un autre descendant près de la paroi). Le lit fluidisé est divisé en  $(n-1)$  cellules qui représentent le corps du système. Deux autres cellules sont ajoutées pour représenter l'entrée et la sortie du système (voir figure 1.49).

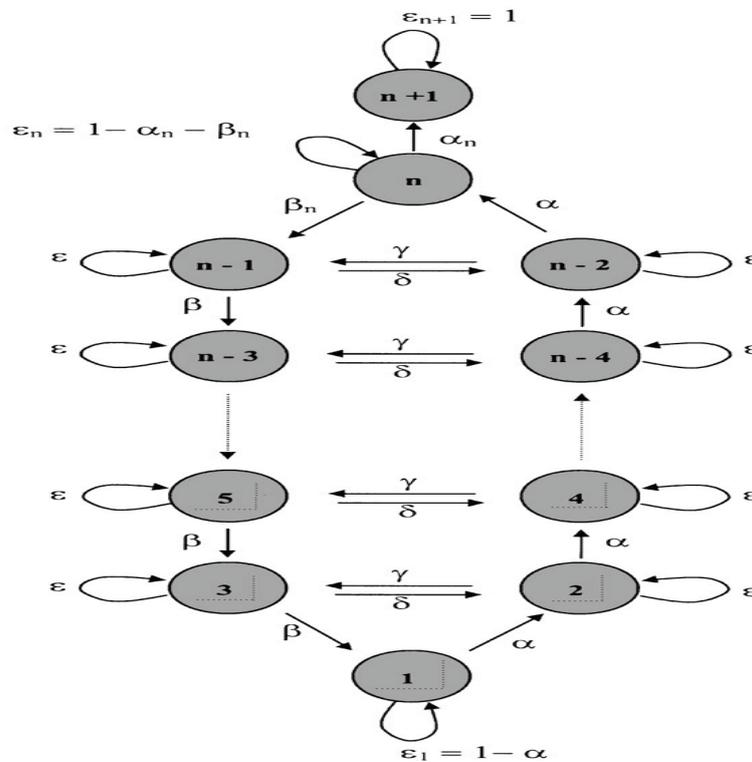


FIGURE 1.49 – Représentation Markovienne du modèle des cœur-anneaux en lit fluidisé, Harris, 2002 [115]

Les valeurs de probabilités ( $\alpha, \beta, \delta, \gamma$  et  $\epsilon$ ) sont les mêmes pour toutes les cellules, sauf la première et la dernière. La somme de toutes les probabilités possibles pour une cellule est égale à 1. Ce modèle considère que les probabilités de transitions des particules en pied de lit (la phase dense), au milieu (la phase de transition) et en tête de lit (phase diluée) sont identiques.

La matrice de transition de ce modèle s'écrit sous la forme suivante :

$$\mathcal{P}_{core-annulus} = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & \alpha_1 & 0 & 0 & 0 & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon & \gamma & \alpha & 0 & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \beta & \delta & \epsilon & 0 & 0 & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \epsilon & \gamma & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \beta & \delta & \epsilon & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \beta & . & . & 0 & 0 & 0 & 0 \\ . & . & . & . & . & . & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . & . & . & . & . & . \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & . & . & \epsilon & \gamma & \alpha & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & . & . & \delta & \epsilon & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & . & . & 0 & \beta_n & \epsilon_n & \alpha_n \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & . & . & 0 & 0 & 0 & \epsilon_{n+1} \end{pmatrix} \begin{array}{l} \rightarrow \text{Cellule 1 : } \epsilon_1 + \alpha_1 = 1 \\ \rightarrow \text{Cellule 2 : } \alpha + \epsilon + \gamma = 1 \\ \rightarrow \text{Cellule 3 : } \beta + \delta + \epsilon = 1 \\ \\ \\ \\ \rightarrow \text{Cellule } (n-2) : \alpha + \epsilon + \gamma = 1 \\ \rightarrow \text{Cellule } (n-1) : \beta + \delta + \epsilon = 1 \\ \rightarrow \text{Cellule } n : \beta_n + \epsilon_n + \alpha_n = 1 \\ \rightarrow \text{Cellule } n+1 : \epsilon_{n+1} = 1 \end{array} \quad (1.47)$$

Pour chaque ligne la somme des probabilités est égale à 1. Cette matrice a 6 paramètres indépendants, leurs valeurs ont été déterminées à partir des données expérimentales.

En langage Markovien, la fonction de distribution des temps de séjour, notée  $E(t)$ , se déduit à partir de la variation de l'état absorbant (n+1) entre deux transitions :

$$E(t + \Delta t) = S_{n+1}(t + \Delta t) - S_{n+1}(t) \quad (1.48)$$

Ce modèle a permis à Harris et al. [115] d'illustrer l'effet des variables opératoires sur la DTS pour différentes conditions opératoires, à savoir : débit de solides en circulation  $G_s$ , vitesse superficielle de gaz de fluidisation  $U_g$ , diamètre moyen des particules utilisées  $d_p$ , la masse volumique du solide  $\rho_p$ , diamètre de la colonne de fluidisation  $D$ , et sa hauteur  $H$ .

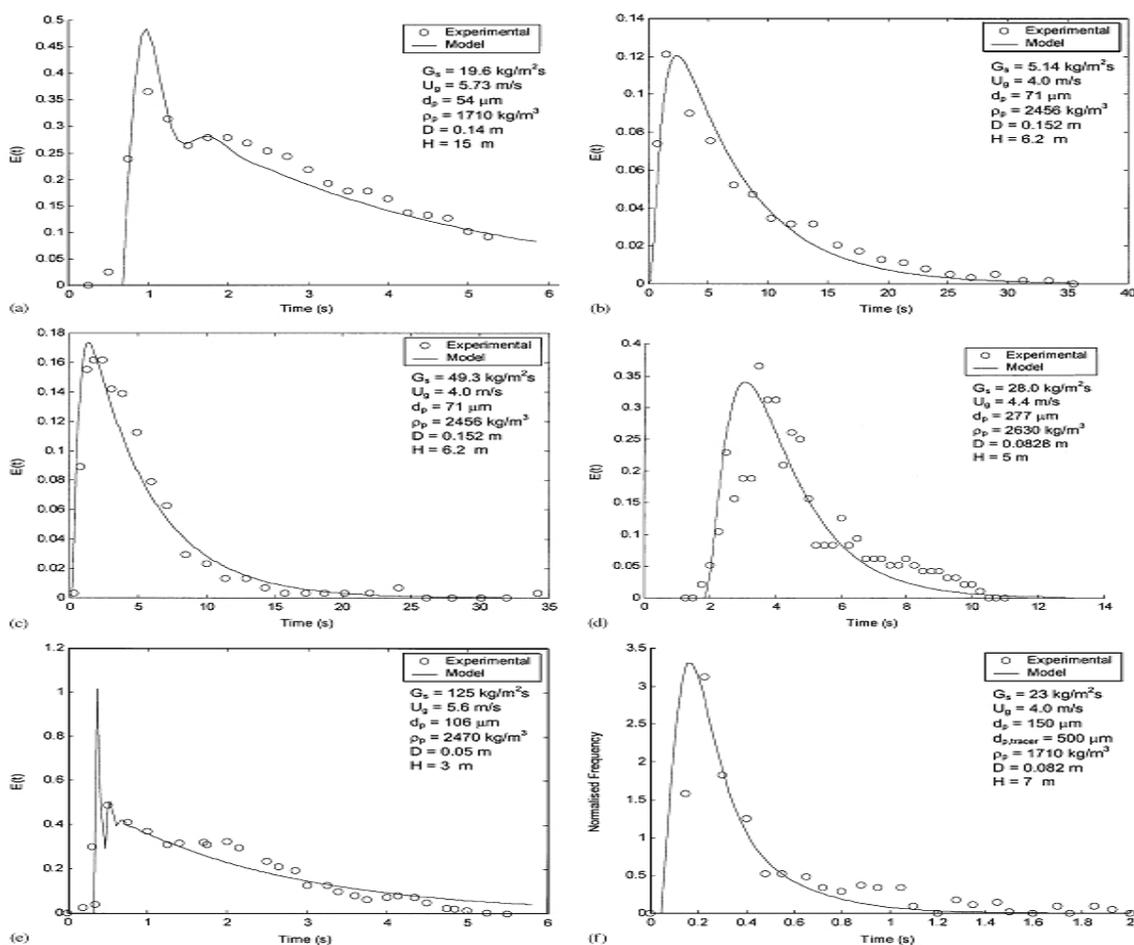


FIGURE 1.50 – Courbes de DTS simulées par modèle Markovien pour un lit fluidisé [115]

La comparaison entre les simulations et les résultats expérimentaux, obtenus par Harris et al. [115] (voir figure 1.50), montre qu'il est possible de décrire correctement la DTS des particules dans ce système de fluidisation en utilisant une chaîne de Markov, de manière généralisé.

## 2- Exemples en mélange des poudres :

Dans le domaine du mélange, une chaîne de Markov sert principalement à représenter deux aspects du mélange :

A) Décrire l'écoulement sous agitation, en s'intéressant uniquement à l'aspect dynamique de l'écoulement des poudres. Dans la plupart des cas, un traceur est injecté dans l'écoulement d'un produit pur ou d'un mélange binaire. Une chaîne de Markov sert alors à la description de l'écoulement des particules à travers la prédiction de la distribution des temps de séjours (DTS). Ce genre d'études, permet de caractériser l'effet des paramètres d'agitation sur la dynamique des écoulements de particules à l'intérieur du mélangeur.

B) Décrire l'homogénéité du mélange : dans ce deuxième cas, une chaîne de Markov est utilisée pour représenter l'écoulement d'un mélange de plusieurs produits. L'objectif est de prédire l'évolution de la qualité de mélange à travers la modélisation de l'écoulement de chaque composé.

Parmi les chercheurs qui ont utilisé l'outil markovien pour modéliser l'écoulement des poudres dans les mélangeurs, nous citerons Inoue et Yamaguchi.,1970 [116] ; Chen et al.,1972[117] ; Lai et Fan.,1975 [118] ; Aoun et al.,2002[119], Berthiaux et Mizonov.,2004 [120]. En 1970, Inoue et Yamaguchi [116] ont utilisé les chaînes de Markov pour décrire l'écoulement de billes de verre dans un tambour de mélange discontinu. Une bille colorée a été ajoutée au mélange, et sa position a été enregistrée après chaque transition (rotation du tambour). Les résultats expérimentaux ont été utilisés pour déterminer la matrice de transition du modèle. Ce travail a permis de développer un modèle Markovien homogène et bidimensionnel.

Dans un autre exemple, Aoun et al. [119] ont appliqué ce type de modélisation sur un mélangeur batch à cerceaux. L'appareil a été divisé en 11 cellules axiales (voir figure 1.51). A son tour, chaque cellule a été divisée en trois compartiments radiaux. Au total, le mélangeur a été représenté par 33 cellules permettant la description du mouvement des particules dans les deux sens axial et radial. Les résultats expérimentaux, obtenus à partir d'un traceur suivi par analyse d'images, ont permis à nouveau de diagnostiquer le flux des particules dans le mélangeur.

Récemment(2004), Berthiaux et al. [121] ont développé un modèle basé sur une chaîne de Markov pour décrire l'écoulement d'un mélange de deux systèmes granulaires (couscous et semoule). Le principe de ce modèle consiste à décomposer le volume d'un mélangeur continu (de type Gericke CM 500) en un nombre fini de cellules entre lesquelles le traceur peut transiter. Ces 14 cellules étaient supposées homogènes, le nombre de cellules correspondant au nombre de pales dans le mélangeur. Une quinzième cellule a été ajoutée à ce modèle pour représenter la sortie du mélangeur. Ces cellules sont reliées entre elles par flèches représentant la circulation dans le sens d'écoulement et la re-circulation dans le sens inverse. Ce modèle a été utilisé pour prédire la dynamique de l'écoulement des particules dans le mélangeur, ceci à travers des simulations de la distribution des temps de séjour dans le mélangeur.

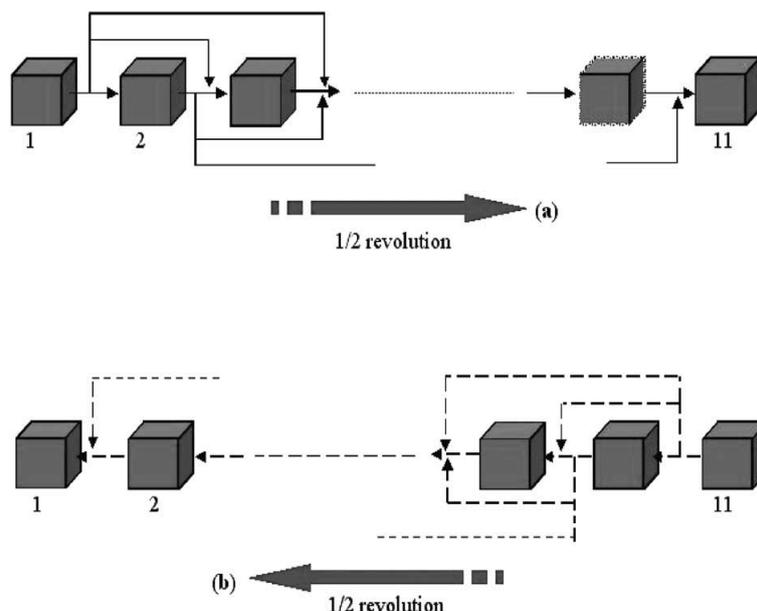


FIGURE 1.51 – Principe du modèle Markovien utilisé par Aoun et al. [119]

La majorité des études consacrées à l'agitation, en utilisant un seul produit et un traceur, ont été étendues par la suite au cas d'un mélange binaire. Ainsi, l'objectif est devenu comment décrire la qualité du mélange et non uniquement la dynamique de l'écoulement par la modélisation Markovienne. Ici, on peut citer les travaux de Oyama et Agaki.,1956 [122] ; Wang et Fan.,1976[123, 124] ; Fan et Shin.,1979 [125] ; Ponomarev et al [126].

En 1979, par exemple, Fan and Shin ont étudié un mélange binaire de particules sphériques de deux tailles différentes. Le mélangeur a été divisé en 10 sections de mêmes volumes. La matrice des probabilités de transition entre les différentes sections a été reliée au coefficient de diffusion, et a été déterminée expérimentalement. Les résultats obtenus ont montré que le modèle pouvait prédire l'évolution des profils de concentration des deux composés du mélange.

Récemment (2009), un modèle Markovien bidimensionnel a été développé pour décrire la distribution horizontale et verticale des particules dans un mélangeur statique de type Sysmix®. La figure 1.52 montre la représentation graphique développée pour ce modèle.

La matrice de transition correspondante à cette représentation s'écrit sous la forme suivante :



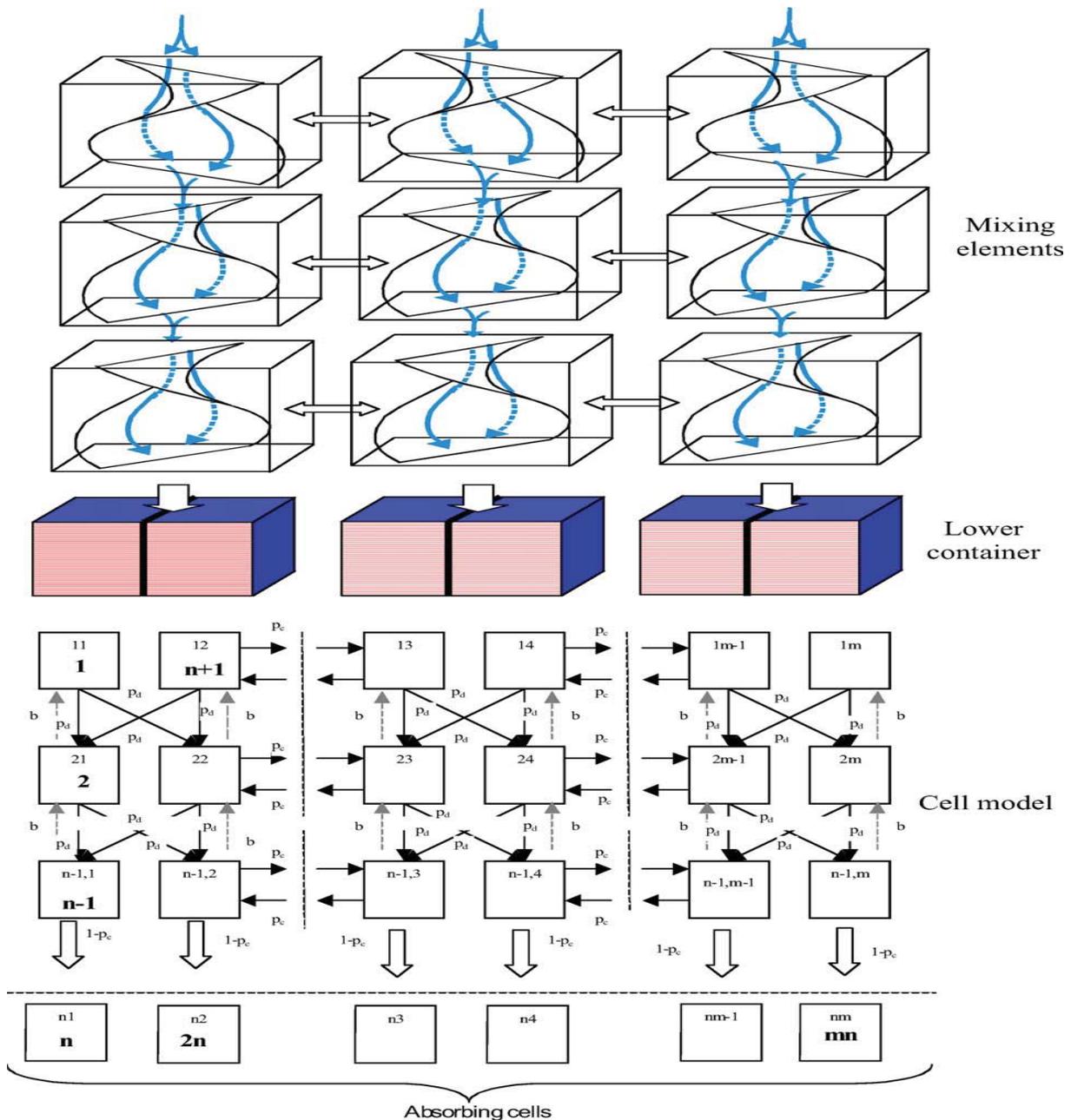


FIGURE 1.52 – Représentation Marvienne de l’écoulement de mélange des poudres dans un mélangeur statique de type Sysmix® d’après [126]

## Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous nous sommes intéressés aux différents travaux existant dans la littérature sur le mélange des poudres, avec une attention particulière sur le mélange en continu. Comme nous avons pu le constater, l’expansion des procédés de mélange des poudres en continu reste freiné principalement par le manque d’une véritable technique analytiques pouvant être utilisée en temps réel pour évaluer la qualité d’un mélange. Plu-

sieurs techniques sont bien en cours de développement mais elles sont souvent spécifiques à un mélange granulaire bien déterminé.

D' un autre coté, l'absence de loi de comportement du mélange, vis-à-vis des conditions d'agitation, empêche encore le développement d'une stratégie pour commander ce procédé. Ce point a été abordé dans la littérature en utilisant principalement trois approches de modélisation. Il s'agit de la Méthode des Éléments discrets (DEM), de l'équation de Fokker Planck et de la chaîne de Markov. Ces différentes méthodes ont été utilisées pour décrire la qualité du mélange à travers la modélisation de la dynamique de l'écoulement des particules. Quel que soit le modèle utilisé, la plupart des travaux réalisés jusqu'à nos jours ont été destinés uniquement à la modélisation du régime permanent, pendant lequel tous les paramètres opératoires, choisis au départ de l'opération du mélange, sont supposés rester fixes. Cependant, la régulation d'un système de mélange des poudres en continu nécessite de disposer d'un modèle capable de décrire la dynamique du système, non pas uniquement en régime permanent, mais également pendant les régimes transitoires, qui surviennent lors du démarrage du mélangeur, lors de sa vidange, lors d'échelons de vitesse ou de débit, de créneaux, etc.

---

# Matériels et méthodes

---

## 2.1 Dispositif expérimental

Le pilote de mélange en continu de type Gericke GCM500 est constitué principalement d'un système de dosage gravimétrique et d'un mélangeur horizontal convectif (voir figure 2.1). Le système de dosage est constitué de trois doseurs pondéraux qui sont des trémies de différents volumes positionnées sur des balances. Celles-ci permettent de mesurer le poids total en continu et d'assurer une grande précision de réglage des débits d'alimentation.

Dans ce mode de dosage gravimétrique, le débit de solides est réglé, soit de façon continue, soit de façon discontinue :

- En mode gravimétrique par batch ou semi-batch, une charge précise est introduite initialement dans le mélangeur. Le rôle des doseurs est limité au remplissage initial, ils ne sont pas utilisés au cours de l'opération du mélange.
- En mode continu, le doseur gravimétrique alimente en continu le mélangeur avec un débit constant dans le temps. Les différents ingrédients de mélange sont d'abord pesés par le système de dosage, puis ajoutés de manière continue dans la chambre de mélange.

Au cours de ce travail nous nous intéressons principalement à ce deuxième mode de fonctionnement continu.

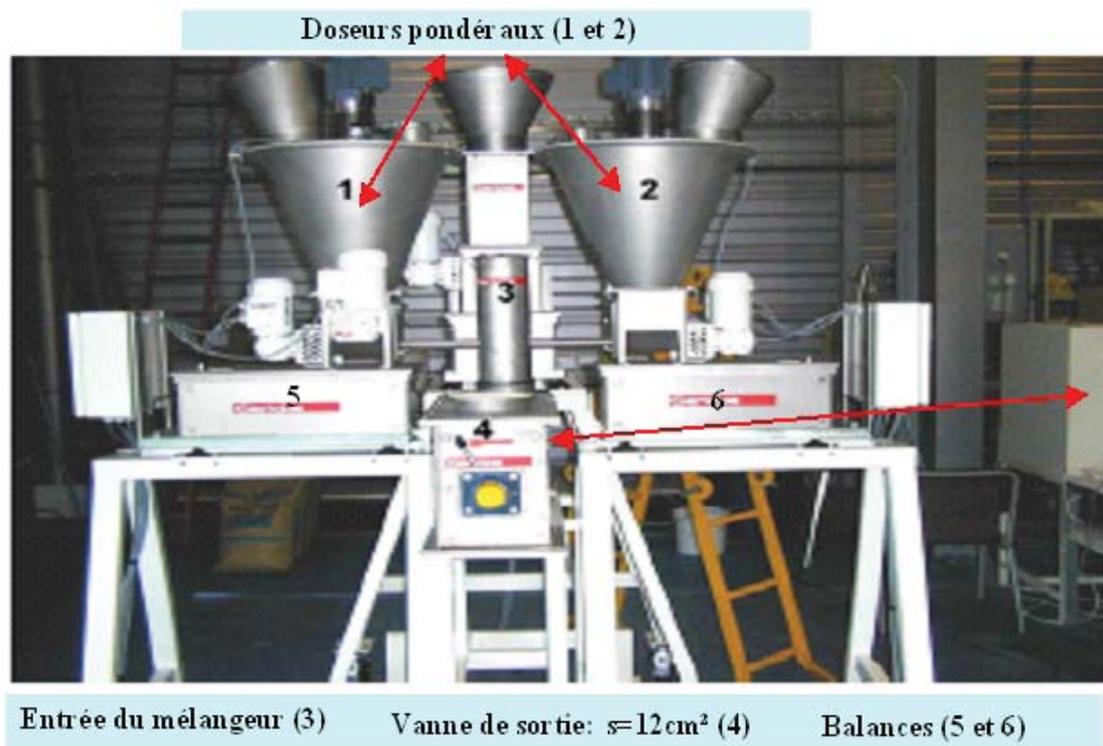


FIGURE 2.1 – Pilote de mélange de type Gericke CM500

### 2.1.1 Système de dosage

Le pilote de mélange Gericke GCM 500 est équipé d'un système de dosage qui assure le fonctionnement en parallèle de 3 doseurs débitant les produits nécessaires au procédé.

Pour les trois doseurs existants, le système de dosage de précision utilisé (appelé GLD87) est constitué d'une vis d'extraction sans fin placée au sein d'une auge équipée d'un homogénéisateur qui sert à éviter le tassement des poudres au fond de l'auge. Comme le montre la figure 2.2, cet instrument de dosage est entraîné par un moto-réducteur à engrenage (6) ; le changement de vitesse de l'électro-réducteur permet de modifier le débit du doseur. En ce qui concerne le dispositif de détassement, il est entraîné à vitesse constante par un deuxième moto-réducteur(7).

Ce système de dosage est positionné sur un capteur de poids, formant ainsi une balance doseuse à perte de poids (figure 2.3). Comme on peut le constater sur cette figure, la balance doseuse est composée principalement du doseur (A), du système de pesage (B), de la commande et du régulateur de dosage (C), de l'entraînement du doseur (D).

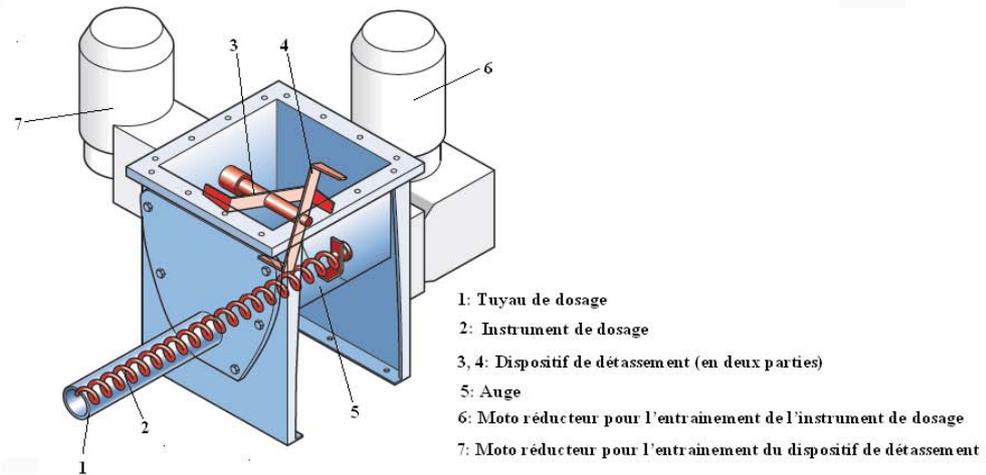


FIGURE 2.2 – Système de dosage GLD87

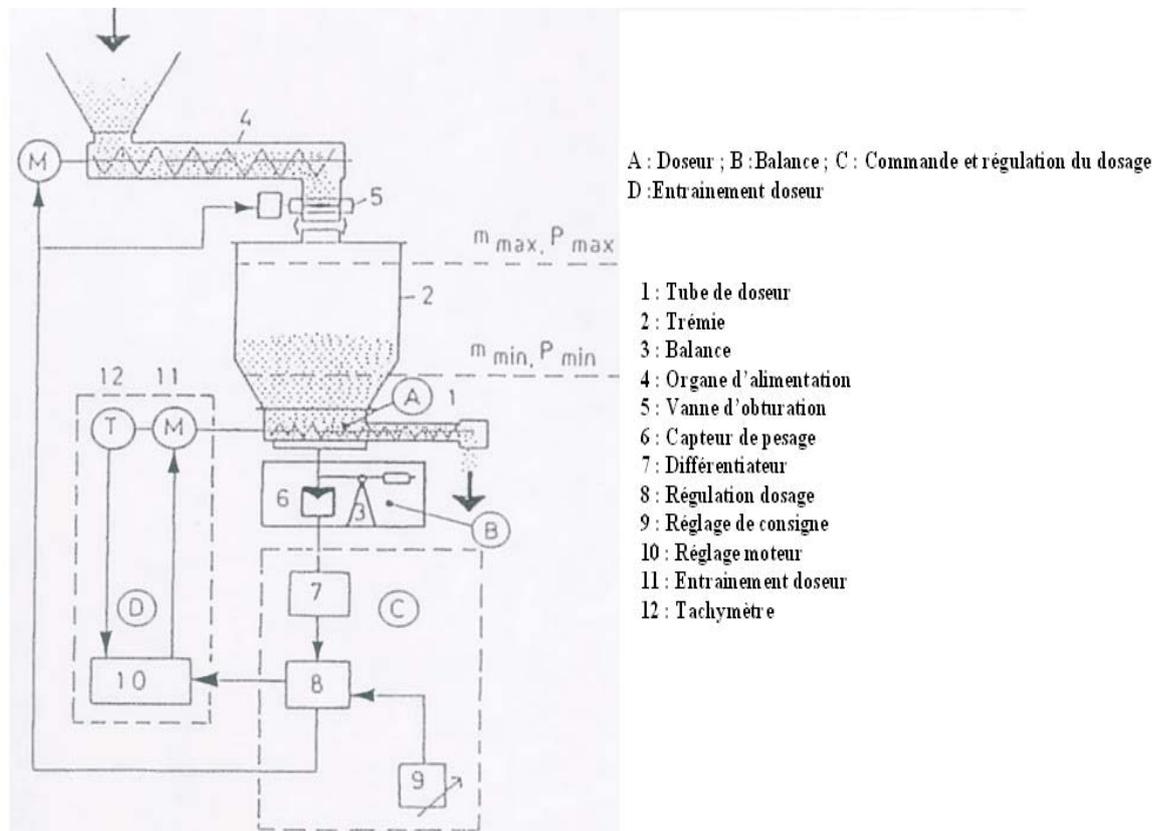


FIGURE 2.3 – Principe de la balance doseuse à perte de poids

L'ensemble doseur (1) + trémie (2) est installé sur un système de pesage (3). Un capteur de poids (6) effectue des mesures à des intervalles réguliers très courts (fraction de seconde). La variation du poids par unité de temps est calculée par un élément différentiateur (7). On peut ainsi utiliser le différentiel de masse  $dm/dt$ , qui représente le débit effectif du doseur et

constitue la grandeur de réglage pour la commande de dosage.

Le régulateur de dosage (8) compare le débit effectif avec la consigne sélectionnée au niveau du dispositif d'ajustage (9). Si une différence est constatée, la tension d'alimentation du moteur d'entraînement de vis d'extraction est adaptée à la nouvelle mesure, et le régulateur (10) agit alors sur l'entraînement du doseur (11) de manière à ce que le débit se rapproche de la consigne sélectionnée.

Dès que le niveau de remplissage de la trémie atteint le niveau minimal appelé  $M_{min}$  ou  $P_{min}$  (masse minimale  $M_{min}$  ou poids minimal  $P_{min}$ ), l'entraînement du doseur (11) bascule vers un mode de fonctionnement volumétrique permettant ainsi de maintenir la vitesse du moteur constante pendant toute la phase de chargement de la trémie. Ce chargement peut être réalisé, soit automatiquement via l'organe d'alimentation (4), soit manuellement.

### 2.1.2 Système de mélange

Le système de mélange en continu Gericke type GCM a pour objectif d'améliorer les effets du mélange radial et axial (dispersion) en tenant compte des proportions de chaque matière première. La chambre de mélange est une cuve hémicylindrique dont les dimensions sont 50 cm de longueur, 16 cm de hauteur et 20 cm de diamètre (figure 2.4).

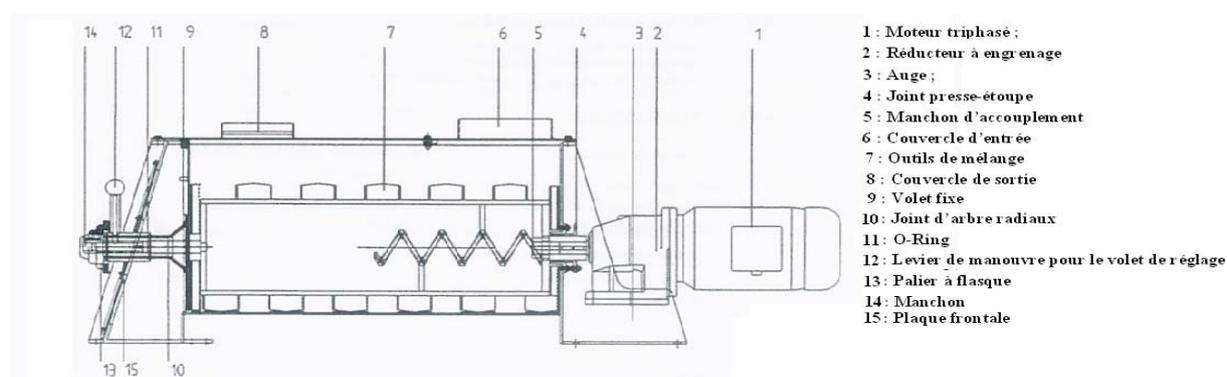


FIGURE 2.4 – Système de mélange

Le mélangeur est équipé d'une trappe de sortie dont on peut régler le positionnement. Les résultats présentés dans ce travail sont obtenus avec une ouverture maximale de cette trappe. La surface de passage correspondant à cette ouverture est  $s = 12\text{cm}^2$ .

L'outil de mélange (7) est entraîné par le moto-réducteur (1) qui est équipé d'un variateur de fréquence dont on peut modifier la vitesse du rotor et ainsi faire varier le temps de séjour moyen du produit dans le mélangeur.

Comme le montre la figure 2.5, le mobile d'agitation utilisé est constitué d'une "vis" qui sert à transporter les poudres vers la sortie selon un mouvement axial. Le mouvement radial des particules est assuré par des pales rectangulaires qui sont montées sur le cadre du mobile d'agitation. Ces pales sont inclinées de 45° par rapport à l'horizontale afin d'éviter tout frottement avec les parois du mélangeur.

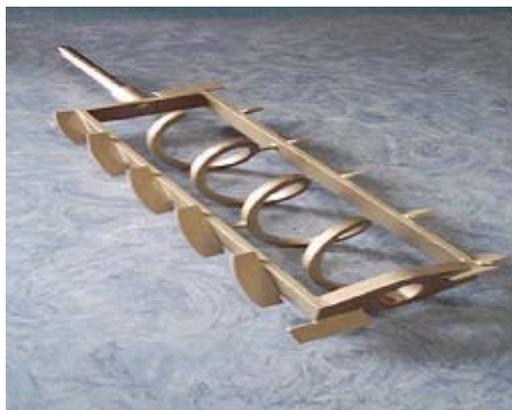


FIGURE 2.5 – Mobile d'agitation avec une vis sans fin et des pales montées sur cadre

Selon la vitesse de rotation du mobile d'agitation et les débits des doseurs, la masse retenue peut être plus ou moins importante. Ceci influence la distribution des temps de séjour des particules dans le mélangeur, et en premier lieu le temps de passage :

$$\tau(s) = \frac{M_r(Q, N)}{Q_{out}} \quad (2.1)$$

$M_r$  : Masse retenue en régime permanent ;  $\tau$  : temps de passage ;  $Q$  : débit d'alimentation ;  
 $N$  : vitesse de rotation du mobile d'agitation ;  $Q_{out}$  : débit de sortie.

Il existe d'autres facteurs qui peuvent influencer directement le taux de remplissage (ou masse retenue), comme la fragilité des produits utilisés et le niveau d'ouverture de la vanne de sortie. Cependant, dans ce travail nous nous intéresserons uniquement aux deux principales variables du procédé, que sont le débit et la vitesse d'agitation. Ainsi, pour un faible débit d'alimentation ou une forte vitesse d'agitation, le temps de séjour moyen est court car la masse retenue des particules dans la chambre de mélange est faible. Inversement, une baisse de la vitesse d'agitation ou une augmentation du débit d'alimentation accroît la masse retenue dans le mélangeur, ce qui augmente le temps de séjour moyen. L'effet de la vitesse d'agitation et des débits d'alimentation sur le niveau de remplissage du mélangeur,

en régime permanent et en régime transitoire, sera étudié expérimentalement au chapitre 3. Les expériences seront réalisées avec des vitesses d'agitation comprises entre 5 et 60Hz. Pour chaque vitesse (N), 12 débits d'alimentation sont étudiés dans une gamme de 5 à 100kg/h.

## 2.2 Caractérisation des produits utilisés

Le mélange étudié est constitué de deux types de couscous commercial appelés par la suite "couscous moyen" et "couscous fin". Ces deux produits sont composés de granules sphériques qui sont obtenues à partir de semoule de blé dur sélectionnée, humidifiée, agglomérée, soumise à une pré-cuisson à la vapeur puis séchée et calibrée.

La différence principale entre ces deux types de couscous est la taille des particules. Le couscous moyen est formé majoritairement des particules de tailles supérieures à  $1250\mu m$  alors que le couscous fin a une taille moyenne de  $800\mu m$ . Cette deuxième partie de ce chapitre est dédiée principalement à la présentation des caractéristiques de ces deux poudres.

Comme on peut le constater, le système étudié est composé de poudres à libre écoulement (tailles de particules  $> 100\mu m$ ). Ce choix s'est fait principalement pour trois raisons :

- Le mobile d'agitation utilisé dans cette étude est destiné principalement à mélanger des particules de ce type.
- La caméra utilisée, pour caractériser le mélange par analyse d'images, ne permet pas de détecter et d'analyser des particules de tailles inférieures à  $70\mu m$ .
- Les poudres à libre écoulement ne sont pas susceptibles de provoquer un mottage ou un tassement au niveau des auges du système de dosage et à la sortie du mélangeur. Ainsi, la régulation du débit effectif par rapport à la consigne d'entrée est plus précise et les fluctuations sont plus faibles qu'avec des poudres cohésives [2].

### 2.2.1 Distribution granulométrique

Les distributions granulométriques des particules de couscous moyen et fin ont été obtenues par tamisage à l'aide des tamiseuses d'analyse RETSCH. Au total, sept tamis ont été utilisés dans la gamme de  $400\mu m$  à 2mm. L'entraînement électromagnétique des tamiseuses utilisées (AS 200 control) assure un mouvement de projection tridimensionnel qui répartit l'échantillon uniformément sur toute la surface du tamis. L'amplitude de ces appareils se

règle manuellement, le temps de tamisage choisi est de l'ordre de 3 minutes. Les résultats obtenus pour différents échantillons analysés sont présentés sur la figure 2.6.

Nous précisons ici que le couscous moyen a été prètamisé pour éliminer les particules de tailles inférieures à  $1000\mu m$ . Ceci permettra de faciliter la séparation des deux produits lorsqu'on étudiera leur mélange.

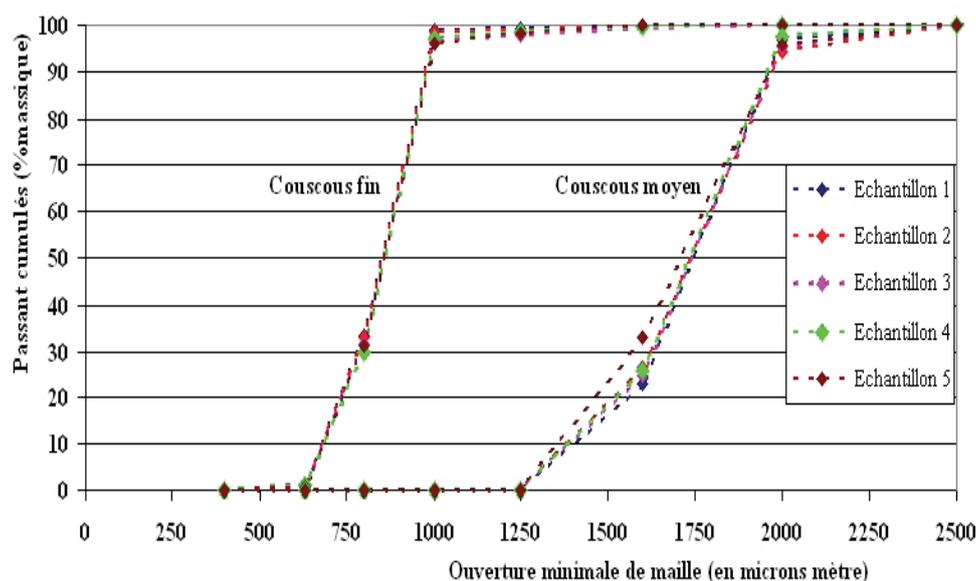


FIGURE 2.6 – Distribution granulométrique des produits utilisés (couscous moyen et fin)

Les diamètres caractéristiques de ces distributions ainsi que leur coefficient de resserrement et le Span sont présentés dans le tableau 2.1.

Notons que Le diamètre  $d_x$  est l'ouverture théorique du tamis telle que  $x\%$  des particules, en masse, ont un diamètre inférieur et  $(100 - x)\%$  un diamètre supérieur.

TABLE 2.1 – Diamètres caractéristiques, Span et  $C_{ress}$  des produits utilisés

$d_x$	Couscous moyen ( $\mu m$ )	couscous fin ( $\mu m$ )
$d_{10}$	1375	680
$d_{50}$	1700	860
$d_{90}$	1970	980
$Span = \frac{d_{50} - d_{10}}{d_{50}}$	0.35	0.35
$C_{ress} = \frac{(d_{90} - d_{10})}{2 * d_{50}}$	0.175	0.17

Ces résultats montrent que la distribution de taille des particules du couscous moyen utilisé est comprise entre 1250 et  $2000\mu m$ , alors que pour le couscous fin elle est située

entre 600 et 1000  $\mu m$ . Pour des valeurs du coefficient  $C_{ress}$  proches de 0,5, la distribution granulométrique est considérée resserrée autour de son diamètre moyen. D'après les résultats obtenus, nous remarquons que les deux produits étudiés ont des valeurs de Span et de  $C_{ress}$  quasi identiques.

### 2.2.2 Masse volumique

Dans la pratique, on distingue trois types de masse volumique qui permettent de caractériser une poudre :

- La masse volumique vraie des produits : elle a été mesurée au pycnomètre à Hélium. Le principe de cette technique consiste à injecter l'hélium dans une cellule (de volume connu) remplie par un échantillon de produit. L'appareil détermine le volume exact occupé par l'échantillon. Connaissant la masse de l'échantillon, il est possible de calculer sa masse volumique vraie.

- La masse volumique apparente aérée : elle a été obtenue en laissant tomber une certaine masse de poudres dans un récipient de volume calibré ( $100cm^3$ ) à travers un tamis vibrant qui permet d'individualiser les particules. Afin d'obtenir le volume le plus exact possible, nous arasons cette cellule puis nous déterminons la masse volumique apparente aérée en divisant la masse de poudre par le volume apparent.

- La masse volumique apparente tassée : elle a été mesurée par un volumétre, son principe consiste à introduire une masse connue de poudre dans une éprouvette graduée, et de relever ensuite le volume obtenu après un certain nombre de coups (500 coups) qui permettent de la tasser autant que possible.

Les résultats obtenus pour ces différentes masses volumiques sont présentés dans le tableau suivant (2.2) :

TABLE 2.2 – Différentes masses volumiques des produits utilisés

Masse volumique	Couscous moyen ( $g/cm^3$ )	couscous fin ( $g/cm^3$ )
$\rho_{vraie}$	1.4516	1.4424
$\rho_{aérée}$	0,76213	0.7591
$\rho_{tassée}$	0.7794	0.7875

où :  $\rho_{vraie}$  est la masse volumique vraie ;  $\rho_{tassée}$  est la masse volumique apparente tassée ;  $\rho_{aérée}$  est la masse volumique apparente non tassée.

On note ici que les masses volumiques obtenues pour les deux produits sont très proches, ce qui rend peu probable le risque d'une possible ségrégation due à la densité.

### 2.2.3 Compressibilité et coulabilité

La compressibilité d'un milieu granulaire est liée aux propriétés d'écoulement car elle est représentative des forces inter-granulaires et donc, indirectement, de la cohésion du milieu. Malgré l'impossibilité de quantifier effectivement la coulabilité d'une poudre, il existe des méthodes de mesure qualitatives qui permettent de déterminer la compressibilité d'une poudre et d'évaluer son aptitude à être manipulée en se basant tout simplement sur les valeurs de densité. En particulier, des mesures des variations des masses volumiques (aérée et tassée) peuvent être utilisées comme indicateurs de la compressibilité de ce milieu à travers l'indice de coulabilité (dit indice de Carr ou Carr index ou indice de compressibilité), ce dernier est calculé selon le rapport suivant :

$$I_{Carr} = 100 * \frac{\rho_{tassée} - \rho_{aérée}}{\rho_{tassée}}$$

Généralement, on considère que la poudre a une bonne coulabilité si cet indice est inférieur à 18 (voir tableau d'interprétation des indices de Carr et Hausner en annexe 2). On peut aussi calculer le ratio de Hausner (ou indice de Hausner) qui représente l'état de friction interparticulaire. Plus celui-ci est proche de 1, meilleure est la coulabilité. Les poudres de moins bonne coulabilité ont, en général, un ratio supérieur à 1,25. On le calcule ainsi :

$$R_h = \frac{\rho_{tassée}}{\rho_{aérée}}$$

Le calcul de l'indice de Carr et l'indice d'Hausner a montré que le couscous moyen et le couscous fin ont une excellente coulabilité (voir tableau 2.3).

TABLE 2.3 – Mesure d'indices de compressibilité

Produits utilisés	Indice de Carr(%)	Ratio d'Hausner
<i>Couscous moyen</i>	2.22	1.022
<i>Couscous fin</i>	3.60	1.037

Ces résultats indiquent que tout phénomène de mottage et de tassement de poudres dans la cuve de mélange est peu probable. Cependant, la différence de taille entre les deux

produits, qui sont classés comme étant des poudres à libre écoulement, peut favoriser une tendance à la ségrégation durant l'opération de mélange. Pour cette raison, le réglage correct des actionneurs du procédé (vitesse d'agitation, débit de dosage...) pourrait réduire l'effet de démixage.

## 2.2.4 Attrition

Les tests d'attrition des deux produits (couscous moyen et fin) ont été réalisés à partir de l'analyse de la distribution granulométrique des deux produits purs en entrée et en sortie du mélangeur continu. Au total, 6 échantillons de chaque produit pur (couscous moyen et couscous fin) ont été prélevés (en sortie du mélangeur) à différents temps de régime permanent. La comparaison entre la distribution granulométrique du produit obtenu en sortie du mélangeur continu et celle du produit initial a permis d'évaluer l'effet de l'agitation sur le phénomène d'attrition des produits utilisés. Un exemple des résultats obtenus à une vitesse d'agitation de 60Hz est présenté sur la figure 2.7. D'après ceux-ci, nous remarquons que même à des vitesses relativement élevées, la distribution de taille des particules de couscous fin est restée la même sans aucun signe de réduction de taille. Cependant, une légère réduction de la distribution de taille des particules de couscous moyen est constatée (voir figure 2.7). La formation de quelques particules fines montre que l'action de mélange à des fortes vitesses d'agitation conduit à un léger phénomène d'attrition. C'est la raison pour laquelle, le long de ce travail nous nous limiterons à des vitesses moyennes inférieures à 60Hz.

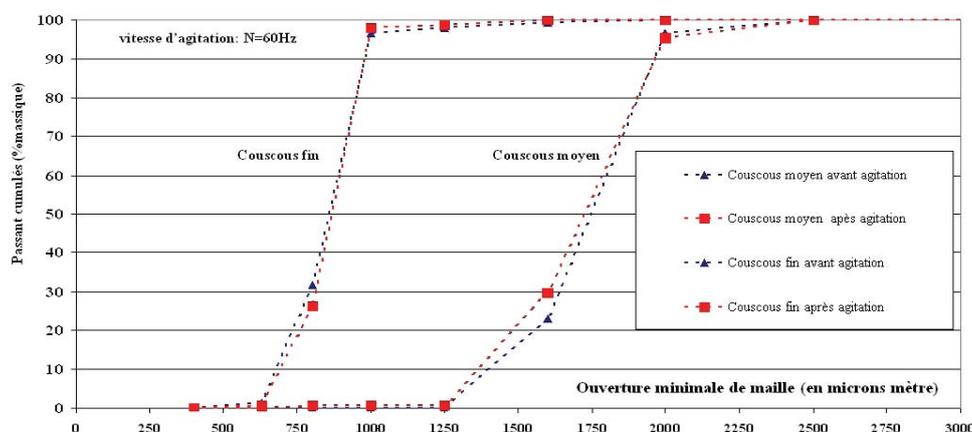


FIGURE 2.7 – Comparaison des distributions granulométriques des produits purs en entrée et en sortie du mélangeur continu (N=60Hz)

## 2.3 Mesures des masses et des débits massiques

L'utilisation industrielle d'un mélangeur continu de poudres nécessite d'être capable de contrôler ce procédé durant le régime permanent et aussi durant les phases transitoires. Ces dernières ont lieu lors du démarrage du procédé, lors de son arrêt, durant les phases de remplissage des doseurs,... ou encore après un changement des conditions opératoires pour ajuster l'homogénéité de mélange. Pendant ces différents régimes, les paramètres opératoires utilisés ont une influence directe sur le niveau de remplissage du mélangeur (masse retenue), et par conséquent sur les temps de séjour des particules et sur la qualité du mélange. Une étude expérimentale approfondie de l'effet de ces paramètres sur le comportement dynamique des poudres, quel que soit le régime, est nécessaire au développement d'une stratégie de contrôle de ce procédé, qui passe également par l'élaboration d'un modèle. Dans cette stratégie, les débits des doseurs et la vitesse d'agitation peuvent être considérés comme étant les véritables variables de commande de ce procédé.

Ici, nous nous attachons à décrire le protocole expérimental spécifique développé pour déterminer la masse retenue et sa répartition dans la chambre de mélange en régime permanent et en régime transitoire.

### 2.3.1 Masse retenue et débit de sortie

Afin de pouvoir mesurer la masse retenue et le débit de sortie, une balance analytique a été installée en sortie du mélangeur, comme illustré sur la figure 2.8. L'interface graphique entre la sortie de la balance « port série RS232 » et un ordinateur de contrôle a été réalisée sous Matlab Control Toolbox. Une acquisition en continu de la masse totale sortante est réalisée toutes les 1600 millisecondes.

Par ailleurs, le système de dosage est commandé par un automate qui communique en temps réel avec l'ordinateur de contrôle. Ainsi, la masse de chaque trémie de dosage est mesurée en temps quasi réel.

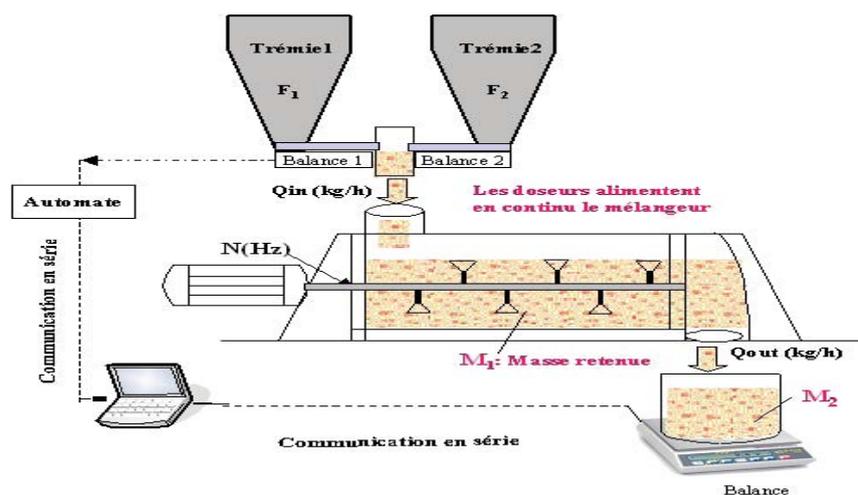


FIGURE 2.8 – Mesure de la masse retenue dans le mélangeur

On note  $M_1$  la masse retenue dans le mélangeur,  $M_2$  la masse totale sortante et  $F_i$  la masse des particules dans le doseur  $i$ .

La masse retenue dans le mélangeur est ainsi mesurée indirectement à partir de la différence entre la masse totale entrante dans le mélangeur et la masse sortante, en prenant en compte la masse des particules restantes dans chaque doseur (acquise en temps réel), et la masse des particules en sortie du mélangeur. A un instant donné  $t$ , la masse retenue dans le mélangeur peut en effet être calculée par l'équation suivante :

$$M_1(t) = \sum_{i=1}^{n_d} (F_i(0) - F_i(t)) - (M_2(t) - M_2(t=0)) + M_1(t=0) \quad (2.2)$$

$n_d$  est le nombre de doseurs utilisés (dans le cas d'un mélange binaire  $n_d = 2$ ).

Généralement, à l'état initial  $M_2(t=0) = 0$  et  $M_1(t=0) = 0$ . Ainsi l'équation 2.2 devient :

$$M_1(t) = \sum_{i=1}^{n_d} (F_i(0) - F_i(t)) - M_2(t) \quad (2.3)$$

Nous précisons ici que chaque doseur est rempli d'un seul produit, et que le mélangeur peut être alimenté, soit par un seul doseur comme c'est le cas dans l'étude de l'agitation d'un produit pur, soit par les deux doseurs dans le cas de l'étude d'un mélange binaire (ou pour assurer un débit plus fort d'un produit pur).

Deux exemples illustrant l'évolution expérimentale de la masse retenue, lors du démarrage du procédé et sa mise en régime permanent, sont présentés sur la figure 2.9. Le premier

correspond au cas d'une alimentation avec un seul doseur (couscous moyen), tandis que dans le deuxième exemple, les deux produits sont introduits avec 2 doseurs.

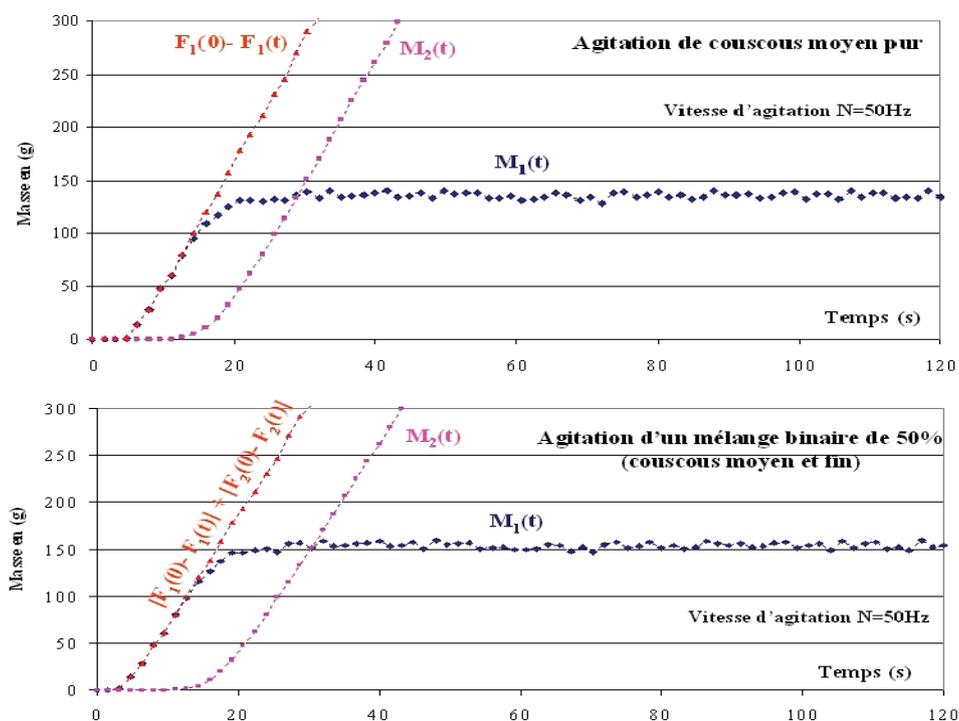


FIGURE 2.9 – Évolution expérimentale de la masse retenue pour  $Q=40\text{kg/h}$  et  $N=50\text{Hz}$

Comme on peut le constater sur la figure 2.9, pendant la phase de démarrage, la masse retenue  $M_1$  augmente progressivement jusqu'à ce qu'elle atteigne une valeur seuil en régime permanent. En comparant les deux exemples proposés sur cette figure, on peut remarquer que, dans les mêmes conditions d'agitation, la masse retenue dans le cas d'un mélange contenant le couscous moyen et le couscous fin est légèrement supérieure à celle obtenue avec le couscous moyen pur. Ce protocole expérimental, basé sur l'acquisition en temps réel des masses entrantes et sortantes, rend donc possible la mesure indirecte de la masse retenue dans le mélangeur et de son évolution pendant les différentes phases de son fonctionnement. D'un autre côté, l'évolution expérimentale du débit de sortie  $Q_{out}$  est accessible par la variation de la masse sortante entre deux instants d'acquisition successives :

$$Q_{out}(t) = \frac{M_2(t + \Delta t) - M_2(t)}{\Delta t} \quad (2.4)$$

avec  $\Delta t = 1,6 \text{ s}$ .

La balance utilisée pour mesurer la masse sortante  $M_2$  présente une incertitude de  $\pm 50\text{mg}$ .

Ceci signifie que le débit de sortie est calculé (par l'équation 2.4) avec une erreur expérimentale de  $\pm 0.22 \text{ kg/h}$ .

Connaissant le débit de sortie et la masse retenue, nous pouvons calculer le temps de passage des particules dans le mélangeur pour différentes conditions opératoires. Un exemple dans le cas d'une alimentation à  $40 \text{ kg/h}$  et une agitation à  $40 \text{ Hz}$  est présenté sur la figure 3.19.

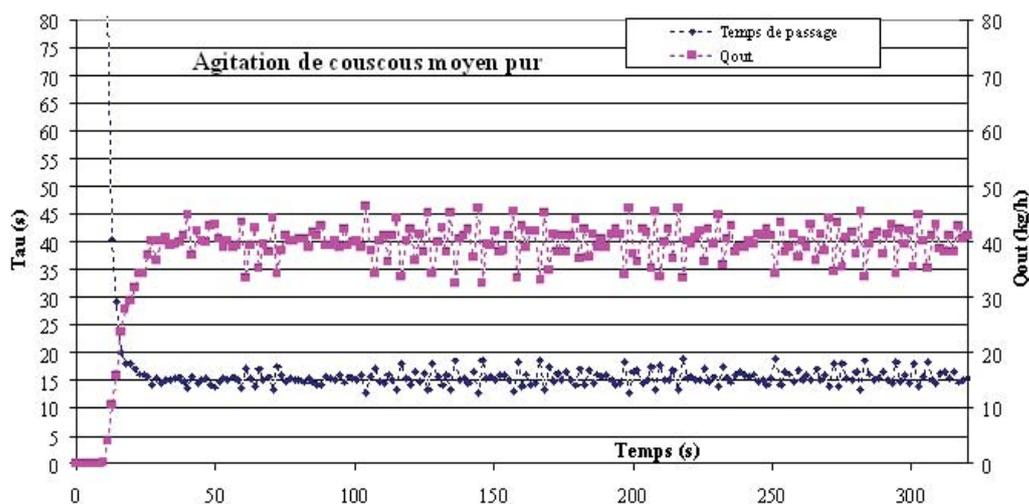


FIGURE 2.10 – Évolution du temps de passage et du débit de sortie instantané ( $Q=40 \text{ kg/h}$ ;  $N=40 \text{ Hz}$ ; alimentation : couscous moyen pur)

L'effet de la vitesse d'agitation et du débit d'alimentation sur l'évolution de la masse retenue, et par conséquent du temps de passage, sera étudié en détails dans le chapitre 3.

### 2.3.2 Répartition des particules et des débits internes

Pour mieux comprendre le comportement dynamique des poudres à l'intérieur de l'appareil, nous nous sommes intéressés à l'évolution de la répartition des particules dans le mélangeur pendant le démarrage et en régime permanent. Comme le montre la figure 3.22, nous avons divisé le mélangeur en 5 cellules de même volume et de même nombre de pales d'agitation (2 pales dans chaque cellule). Ensuite, nous avons mesuré la masse des particules dans chaque cellule à différents temps "t", en arrêtant à chaque fois le mélangeur à cet instant "t". L'objectif principal est de déterminer l'effet de la vitesse du mobile d'agitation sur la cinétique de remplissage des différentes régions du mélangeur, afin de modéliser par la suite l'écoulement à l'intérieur du mélangeur en fonction de l'agitation.

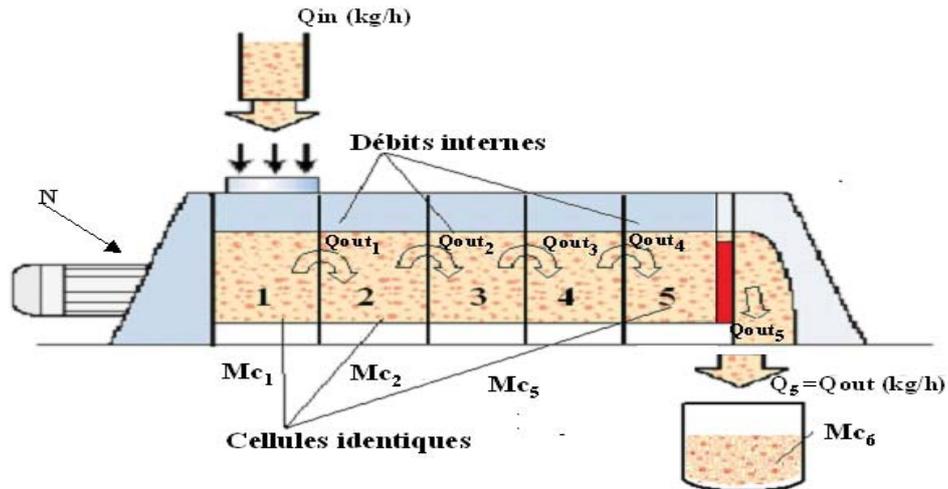


FIGURE 2.11 – Définition des cellules internes

Dans cette représentation du mélangeur, nous appelons  $Mc_i$  la masse des particules dans une cellule  $i$ , et  $Mc_6$  la masse totale des particules en sortie du mélangeur  $Mc_6$ . La mesure de la masse des particules dans chaque cellule en fonction du temps pendant le démarrage permet d'acquérir des données représentatives de cette phase transitoire qui est caractérisée par le remplissage de toutes les cellules du mélangeur. Une fois que le régime permanent est établi, la masse des particules dans chaque cellule devient quasi constante. Dans notre cas, il est quasi impossible de mesurer en continu l'évolution de la masse des particules dans les différentes régions ou cellules du mélangeur au cours d'une expérience. Pour surmonter cette difficulté, nous représenterons les points d'une cinétique de remplissage ( $Mc_i(t)$ ) à partir de plusieurs expériences qui correspondent à différents temps du procédé de mélange (ou d'agitation d'un produit pur), et qui sont réalisées dans les mêmes conditions opératoires. A la fin de chaque expérience les cellules sont vidées successivement les unes après les autres (de 5 à 1), ensuite la masse retenue dans chaque cellule est pesée. Un exemple de la cinétique de remplissage des cellules est présenté sur la figure 2.12.

Une fois les masses des particules dans les différentes zones du mélangeur mesurées, les débits internes des particules passant d'une cellule  $i$  à la cellule suivante  $i+1$  peuvent être déterminés par l'équation 2.5. Un exemple de résultat obtenu est présenté sur la figure 2.13(a).

$$Q_{out_i}(t) * \Delta t = \sum_{j=i+1}^6 M_j(t + \Delta t) - \sum_{j=i+1}^6 M_j(t) \quad (2.5)$$

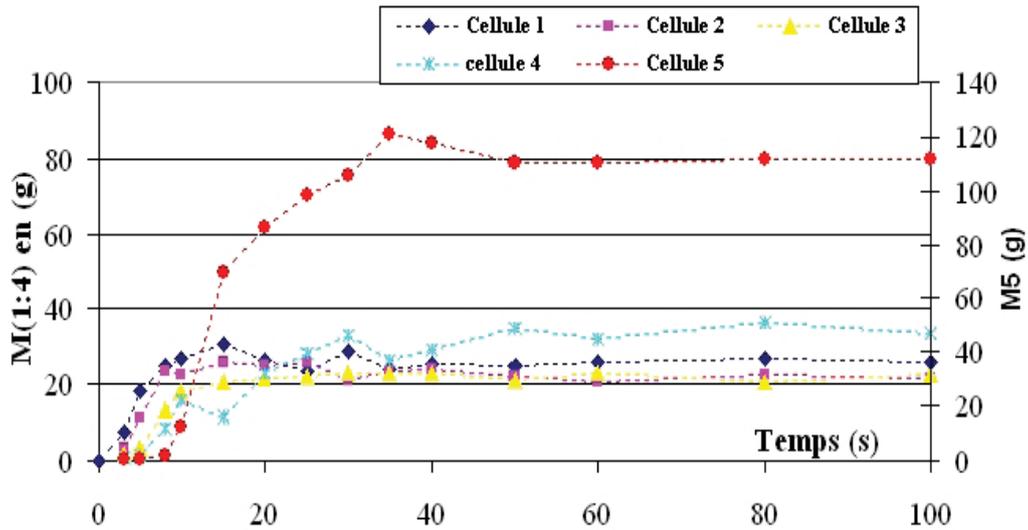


FIGURE 2.12 – Cinétique de remplissage des cellules du mélangeur (Q =40kg/h ; N=30Hz ; alimentation : couscous moyen ; Incertitude : ±50mg)

Si il n’y a pas de re-circulation à l’intérieur du mélangeur, le temps de passage dans chaque cellule peut être calculé par l’équation 2.6. L’évolution de ce temps pendant le démarrage et en régime permanent est présentée sur la figure 2.13(b).

$$\tau_i(t) = \frac{M c_i(t)}{Q_{out_i}(t)} \tag{2.6}$$

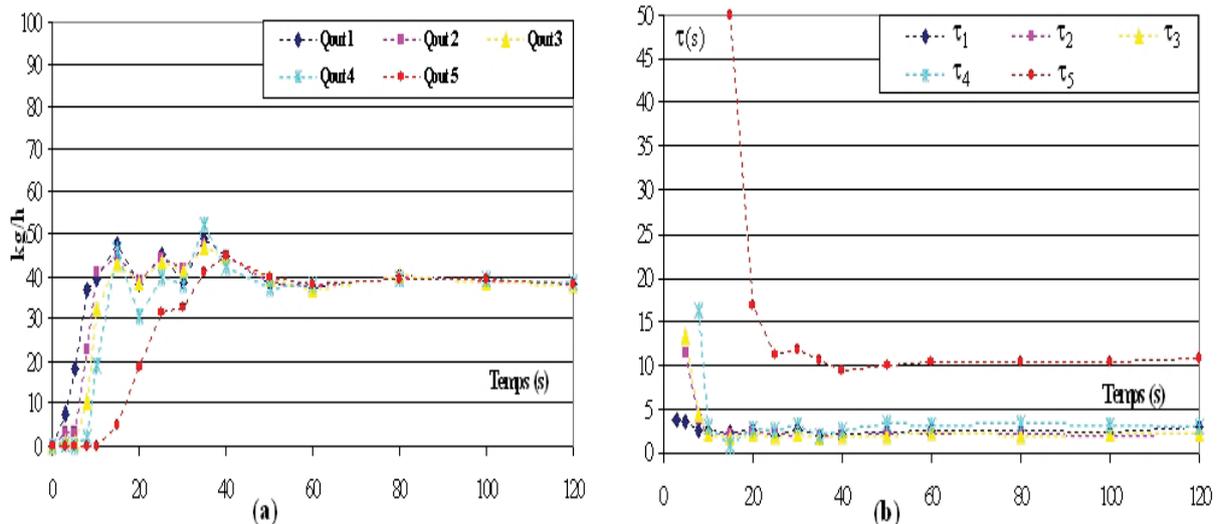


FIGURE 2.13 – (a) Évolution des débits internes; (b) Évolution de taux de passage dans les différentes régions du mélangeur (Q =40kg/h ; N=30Hz ; alimentation : couscous moyen ; Incertitude de mesure ±0.22kg/h)

## 2.4 Mesure de la qualité des mélanges en ligne

La mesure de la composition d'un mélange des poudres effectuée au cœur même du procédé séduit le monde industriel depuis déjà une dizaine d'années. Elle permet la prise en dynamique des échantillons, l'analyse de nombreuses entités et l'obtention rapide des résultats, évitant le transport de l'échantillon au laboratoire d'analyse, sa préparation avant la mesure et le réglage manuel de l'installation si les spécifications requises ne sont pas atteintes. De ce fait, l'analyse en ligne réduit les incertitudes sur les résultats obtenus et permet d'envisager le contrôle et la régulation des procédés en développant un système d'asservissement approprié. Malgré tous ces avantages, l'analyse quantitative en ligne de la qualité du mélange des poudres n'est pas encore une pratique courante dans l'industrie. L'utilisation industrielle des techniques de mesures en ligne reste freinée par le coût élevé des appareils analytiques, la méconnaissance des performances des techniques actuelles et la nécessité de développer des méthodes de traitement des données en temps réel.

Parmi les techniques analytiques en ligne qui sont en plein développement, nous avons choisi d'utiliser celle de l'analyse d'image en temps réel. La composition d'un mélange en sortie d'un mélangeur continu peut être définie grâce à l'analyse des couleurs des produits qui constituent ce mélange par analyse d'images. En pratique, une caméra linéaire (CCD) est installée en sortie du mélangeur pour filmer le mélange convoyé par une bande transporteuse (voir figure 2.14). Le mélange obtenu en sortie du mélangeur est filmé en continu, aussi bien en régime permanent qu'en régime transitoire.

La caméra utilisée possède une résolution de 16 bits permettant d'identifier 65536 niveaux gris. Ainsi il est possible de différencier deux poudres, même de couleurs très proches.

Le traitement des images acquises permet alors de définir une échelle d'observation (taille d'échantillon) et de mesurer l'homogénéité de mélange à cette échelle en temps quasi réel. De plus, grâce à la différence de taille existant entre les deux produits purs, plusieurs échantillons de mélange seront prélevés et analysés (hors ligne) par tamisage, de manière à valider la méthode d'analyse d'image.

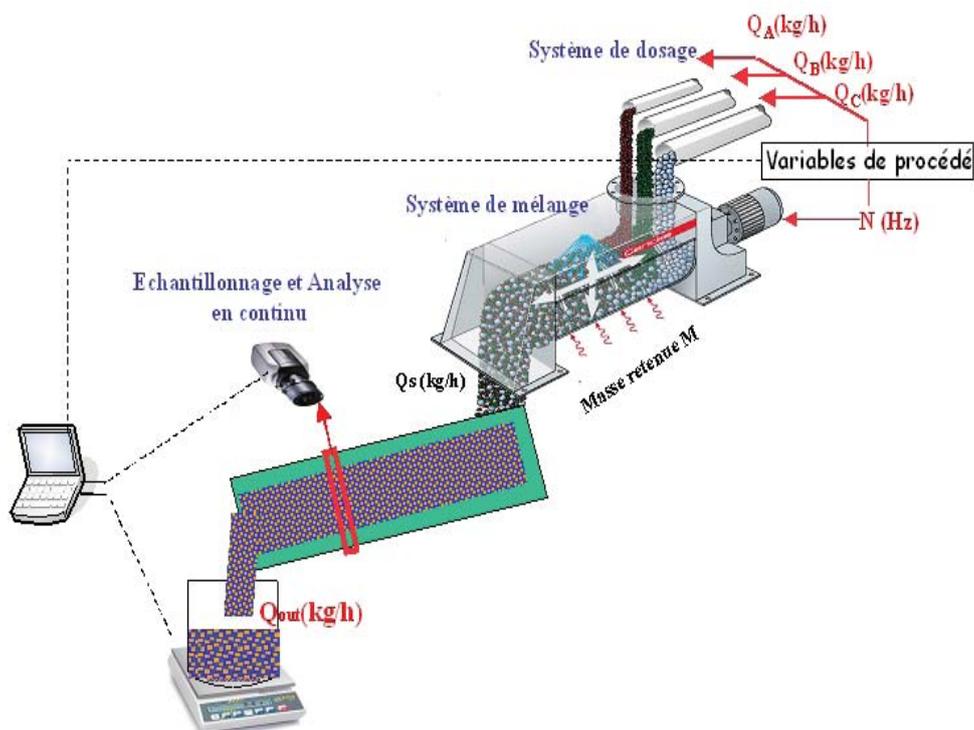


FIGURE 2.14 – Analyse en ligne de qualité de mélange

Les mélanges étudiés sont réalisés à partir de deux produits qui sont très proches en terme de propriétés d'écoulement. Il s'agit des particules de couscous fin qui ont été d'abord colorées en noir (par une solution de Betadine) et séchées ; puis mélangées en continu avec les particules de couscous moyen qui sont de couleur blanche. Le contraste entre les deux produits étant suffisamment important, nous utiliserons uniquement 8 bits de résolution pour gagner en temps de traitement. Ceci signifie que le mélange sera filmé avec des niveaux de gris compris entre 0 pour le noir et 255 pour le blanc.

### 2.4.1 dispositif d'analyse d'images

#### Caractéristique de la camera linéaire

La camera utilisée « camera Lord DVL 5000 T » est une caméra CCD numérique linéaire conçue pour un usage intensif en milieu industriel. Une caméra est dite linéaire lorsque son capteur (CCD) a une dimension de  $1 \times n$  capteurs. Ce type de caméra est largement utilisé en vision industrielle puisqu'il permet l'acquisition ligne à ligne d'un objet défilant devant la caméra. Comme illustré sur la figure 2.15, la caméra est placée au dessus de la bande transporteuse afin de filmer en continu les poudres sortant du mélangeur (figure 2.15). La

fixation de la caméra permet d'assurer la stabilité du capteur d'image. L'installation est munie d'un système d'éclairage assez puissant, composé de deux lampes diffusant une lumière blanche et positionnées de chaque côté de la bande transporteuse, ce qui assure une grande surface d'éclairage.

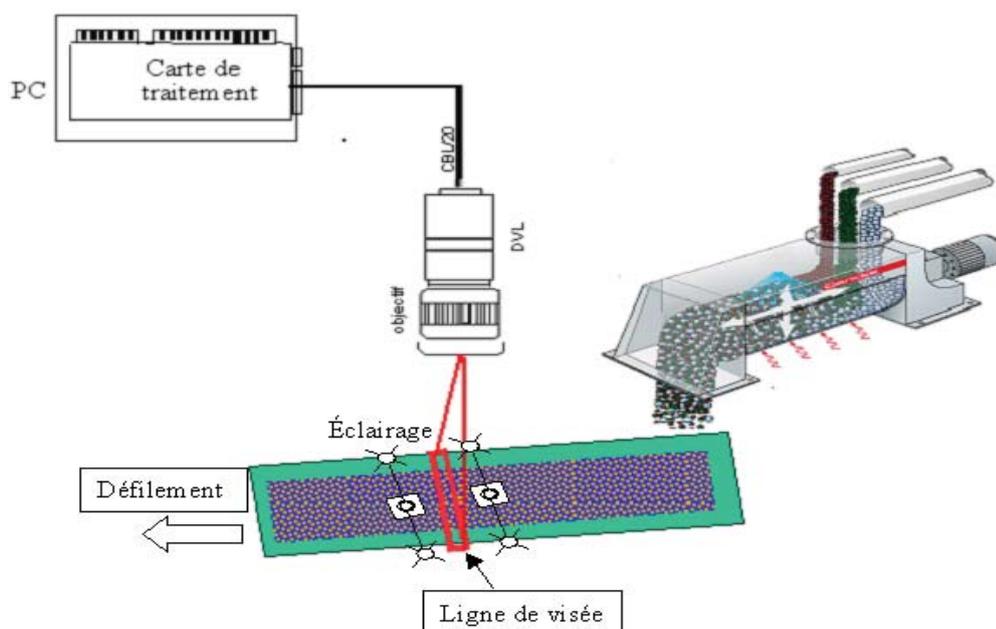


FIGURE 2.15 – Mesure en ligne de la composition du mélange par une caméra linéaire

Les signaux et l'alimentation de la caméra ne sont transmis que par un seul câble connecté à la carte installée dans le PC. Cette caméra numérique se caractérise par :

- un capteur de technologie CCD avec une résolution de 5000 pixels de  $7 * 7 \mu m$  (figure 2.16(b)).
- une fréquence pixel atteignant 20 MHz.
- une fréquence ligne jusqu'à 3,8 kHz.
- une interface logique RS232.
- une sortie vidéo numérique sur 16 bits en différentiel RS422.
- une alimentation monotension à large plage d'entrée de 10 VDC à 24 VDC.
- la possibilité de fixer la caméra sur les quatre faces, dont une est référencée mécaniquement par deux orifices de centrage (figure 2.16 (a)).



FIGURE 2.16 – (a) Caméra linéaire; (b) Capteur CCD de 5000 pixels

### Construction d'une image

Le principe d'une caméra linéaire consiste à reconstruire une image à partir d'une succession de lignes. En pratique, la largeur de la bande transporteuse, qui fait  $30\text{cm}$ , est représentée par une ligne de 5000 pixels. Chaque pixel représente alors une zone de  $60 * 60 \mu\text{m}^2$ . Dans ce travail, nous avons choisi de construire une image à partir de la succession de 200 lignes, comme indiqué sur la figure 2.17. Chaque image de  $5000 * 200$  pixels représente ainsi une surface totale de  $30 * 1,2\text{cm}^2$ .

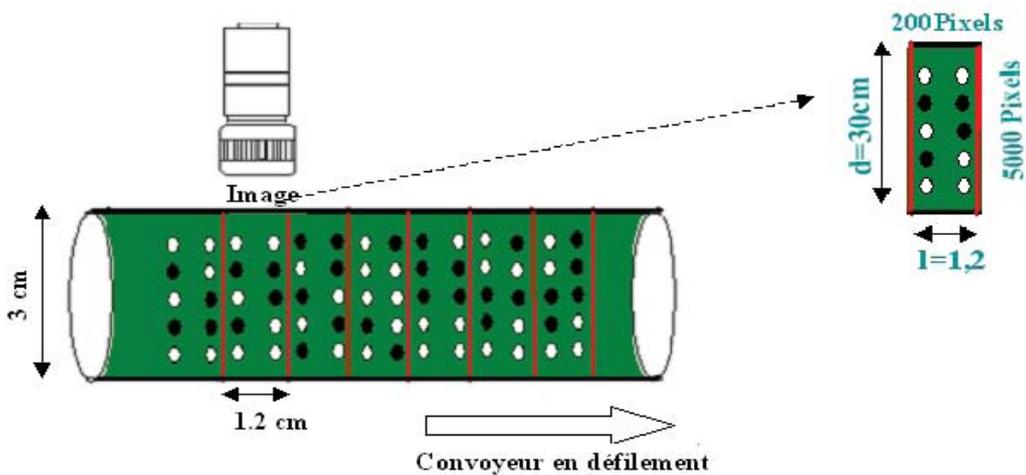


FIGURE 2.17 – Acquisition d'une image à partir de 200 lignes

Pour filmer la totalité du mélange, il faut synchroniser la vitesse de défilement du produit avec la vitesse d'acquisition d'image. En moyenne, la caméra réalise 14 images toutes les secondes ; chaque image ayant une "largeur" de  $1,2\text{ cm}$ . Par conséquent, la caméra filme le

mélange à une vitesse de  $16,8 \text{ cm.s}^{-1}$  ( $14 * 1,2 \text{ cm.s}^{-1}$ ). Afin de pouvoir filmer et analyser la totalité du mélange, la bande transporteuse a été réglée à la même vitesse que celle de la caméra ( $16,8 \text{ cm.s}^{-1}$ ).

### **Traitement de l'information contenue dans une image**

Dans le cadre de ce travail, l'analyse des images numériques acquises est basée sur un programme développé à l'aide du logiciel Labview. La programmation a été faite en langage graphique. Les images acquises par la caméra sont numérisées et envoyées dans la mémoire du PC grâce à une carte d'acquisition Imaq1408.

Nous utilisons également les fonctions d'acquisition du logiciel NI-IMAQ, développé par National instrument, qui permettent d'acquérir en continu des images en temps réel. C'est une acquisition asynchrone. La carte d'acquisition est programmée pour transférer en continu les images dans une mémoire tampon "buffer" unique qui est écrasée par le transfert de l'image suivante. Chaque image est retirée de ce "buffer" par le logiciel Labview qui s'occupe de son traitement. Pour réaliser le traitement d'image sous Labview, nous avons utilisé une bibliothèque appelée IMAQ Vision qui est une bibliothèque de traitement du signal destinée à plusieurs logiciels tels que Labview, BridgeVIEW, LabWindows/CVI, ComponentWorks et container ActiveX. Elle comprend un jeu de fonctions optimisé MMX pour les images à niveau de gris, couleurs et binaires. Elle intègre par exemple des fonctions de statistique, filtrage, transformations géométriques, détection de formes et de couleurs, analyse de particules. Chaque pixel de l'image acquise par la caméra a une valeur comprise entre 0 et 255 suivant le niveau de gris perçu par le capteur (0 pour le noir et 255 pour le blanc).

Comme la bande transporteuse utilisée a une couleur verte, l'image filmée contient trois différentes couleurs : le blanc pour le couscous moyen, le noir pour le couscous fin et le vert pour la bande transporteuse. Ainsi, pour différencier les produits du mélange par couleurs, nous avons procédé à deux binarisations de chaque image acquise en donnant à chaque pixel la valeur 0 ou 1. Les pixels dont le niveau de gris est inférieur à la valeur choisie pour le seuillage prendront la valeur 0, les autres pixels prendront la valeur 1 (voir figure 2.18).

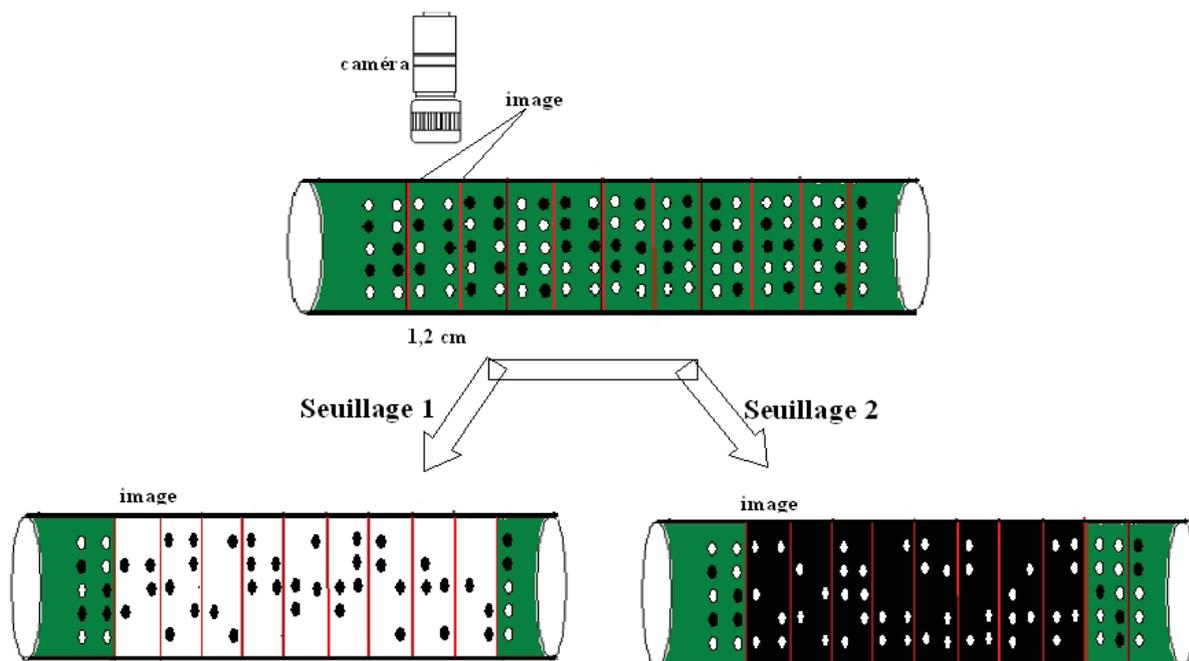


FIGURE 2.18 – Traitement d'une image avec deux différents seuillages

De nombreux tests ont été réalisés pour déterminer le meilleur niveau de seuillage, c'est à dire le niveau de gris en dessous duquel une particule sera considérée sombre.

Dans le premier seuillage de la figure 2.18, la bande transporteuse et les particules blanches ont une valeur de 1, alors que les particules noires ont une valeur de 0. Tandis que dans le deuxième seuillage, la bande transporteuse est comptée avec les pixels blancs.

A partir du premier seuillage, nous pouvons déterminer directement le nombre de pixels noirs par image. Ensuite, à partir du deuxième seuillage nous déterminons le nombre de pixels blancs. La différence entre le nombre total de pixels dans une image et la somme des pixels noirs et blancs permet de déduire le taux de "vide" dans chaque image, correspondant à la bande transporteuse. Ainsi, la proportion surfacique de chaque produit peut être calculée :

$$X_f = \frac{\text{pixels noirs}}{\text{pixels noirs} + \text{pixels blancs}} \quad \text{et} \quad X_m = \frac{\text{pixels blancs}}{\text{pixels noirs} + \text{pixels blancs}}$$

avec  $X_f$  et  $X_m$  sont successivement les fractions du couscous fin et du couscous moyen.

Finalement, il est important de signaler que la stabilité des conditions lumineuses est indispensable, car une particule noire plus éclairée peut être perçue comme une particule blanche, et inversement.

## Taille d'échantillon

Sachant que la totalité du mélange convoyé par la bande transporteuse est filmé en continu avec des images consécutives, il est possible de déterminer la masse des particules contenues dans chaque image. Pour cela, il suffit de connaître le débit de sortie du mélangeur. Prenons par exemple le cas d'un débit total de  $40 \text{ kg.h}^{-1}$  (soit  $11,11 \text{ g.s}^{-1}$ ). Pendant une seconde, la caméra réalise 14 images représentant la totalité du mélange convoyé par la bande transporteuse, sous une forme mono-couche ; On en déduit donc que chaque image contient en moyenne  $794 \text{ mg}$ .

Nous précisons ici que chaque image représente le plus petit échantillon analysé en ligne. Dans le cas où nous cherchons à analyser un échantillon de taille plus grande, nous devons reconstruire une image plus grande à partir d'une succession d'un nombre déterminé d'images (voir figure 2.19).

Pour des raisons de limitation de mémoire du PC, les images ne sont pas stockées. Chaque image, une fois traitée, sera "écrasée" par l'image suivante. Uniquement le nombre des pixels noirs et blancs dans chaque image initiale est enregistré. La composition d'une image reconstruite (échantillon plus grand) est calculée à partir de la somme des pixels contenus dans les images initiales.

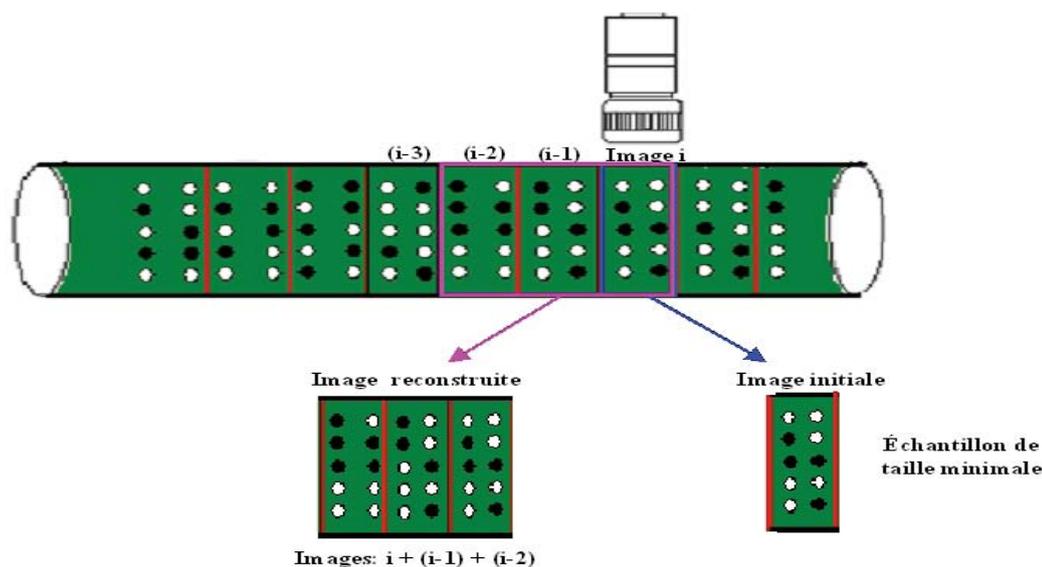


FIGURE 2.19 – Construction d'un échantillon à partir de plusieurs images

Afin d'étudier l'effet de l'échelle d'observation sur la qualité du mélange, nous avons choisi de comparer les résultats obtenus à partir de quatre tailles différentes d'échantillons.

Pour chaque taille désirée, l'échantillon correspondant est construit à partir de toutes les images successivement acquises pendant un temps bien déterminé que nous appelons ici  $t_e$ . Le tableau 2.4 montre les différentes tailles d'échantillons qui seront étudiées ultérieurement dans le cas d'un débit total de 40kg/h. A chaque pas d'échantillonnage  $t_e$ , un échantillon est construit à partir de toutes les images successives acquises pendant un certain temps appelé  $t_e$  : ( $t_e = (t(n) - t(n - 1))$ ). Le tableau suivant montre les tailles d'échantillons étudiées en fonction des temps choisis, ceci pour un débit total de 40kg/h.

TABLE 2.4 – Différentes tailles d'échantillonnages étudiées

Échantillonnage	$t_e$ (s)	Nombre d'image	Masse d'échantillon (g)
<b>Échantillon de Taille 1</b>	0.0714	1 image	0.794
<b>Échantillon de Taille 2</b>	0.5	7 images	5.5
<b>Échantillon de Taille 3</b>	1	14 images	11.11
<b>Échantillon de Taille 4</b>	1.5	21 images	17.776

Sur la figure 2.20, nous présentons un exemple de résultats obtenus pour ces quatre tailles d'échantillons .

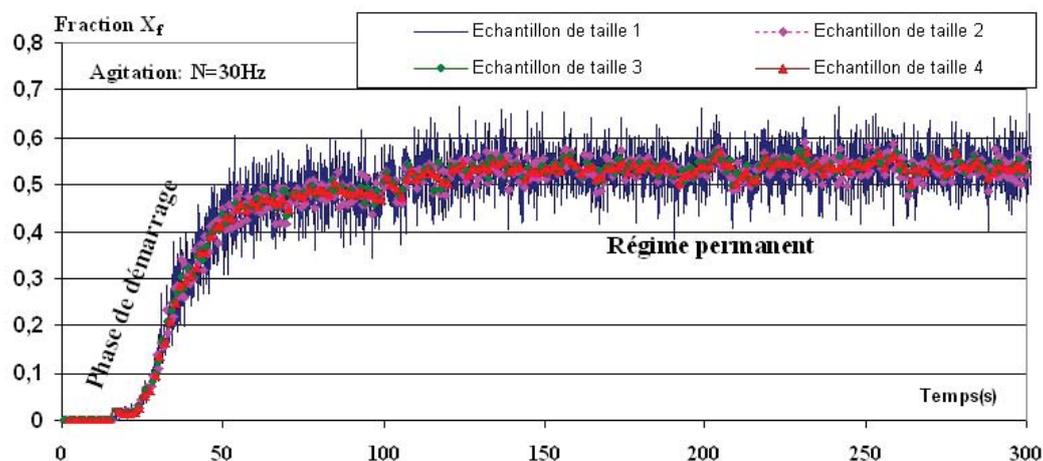


FIGURE 2.20 – Mesure en ligne de la teneur en couscous fin dans un mélange binaire pour plusieurs tailles d'échantillons ( $N = 30\text{Hz}$ ;  $Q = 40\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$  composition :50% de couscous fin)

D'après ces résultats, nous remarquons que plus la taille de l'échantillon choisie est grande, plus l'amplitude des fluctuations de concentration (en sortie du mélangeur) diminue, ce qui est bien sûr attendu.

## Fréquence d'échantillonnage

Une fois la taille de l'échantillon choisie, la fréquence minimale d'échantillonnage est fixée par la durée nécessaire pour filmer l'ensemble des images construisant cet échantillon. Si nous prenons par exemple le cas d'un échantillon de taille 3 (masse de 11,11 g pour un débit de  $40 \text{ kg.h}^{-1}$ ), il faut une seconde pour avoir les 14 images "initiales" nécessaires pour construire cet échantillon. Ainsi, la fraction massique correspondant à cette taille d'échantillon ne peut être calculée qu'une fois par seconde au lieu de 14 fois par seconde dans le cas d'un échantillon de taille 1 (794mg). Avec cette méthode, à chaque pas d'échantillonnage de 1s, la fenêtre d'observation est décalée de 14 images. Cependant, il est possible d'utiliser une deuxième méthode d'échantillonnage qui consiste à glisser la fenêtre d'observation avec uniquement une seule image. Ceci signifie qu'après l'acquisition de chaque image "initiale", un échantillon est construit à partir des  $nb$  dernières images acquises ( $nb$  est le nombre d'images formant un échantillon). Avec cette deuxième méthode, chaque image initiale est utilisée  $n$  fois. Pour faciliter la compréhension de ces deux méthodes d'échantillonnage, nous présentons sur la figure 2.21 un exemple des échantillons réalisés à partir de 4 images ( $nb = 4$ ). Dans la première méthode présentée sur cette figure, la fenêtre d'observation est glissée à chaque fois par 4 images. Dans ce cas, il faut attendre l'acquisition de 4 nouvelles images initiales avant de construire un échantillon. Tandis que dans la deuxième méthode, après chaque acquisition d'une seule image, un échantillon est construit à partir des 4 dernières images acquises. Ainsi, dans ce deuxième cas, chaque image est utilisée 4 fois.

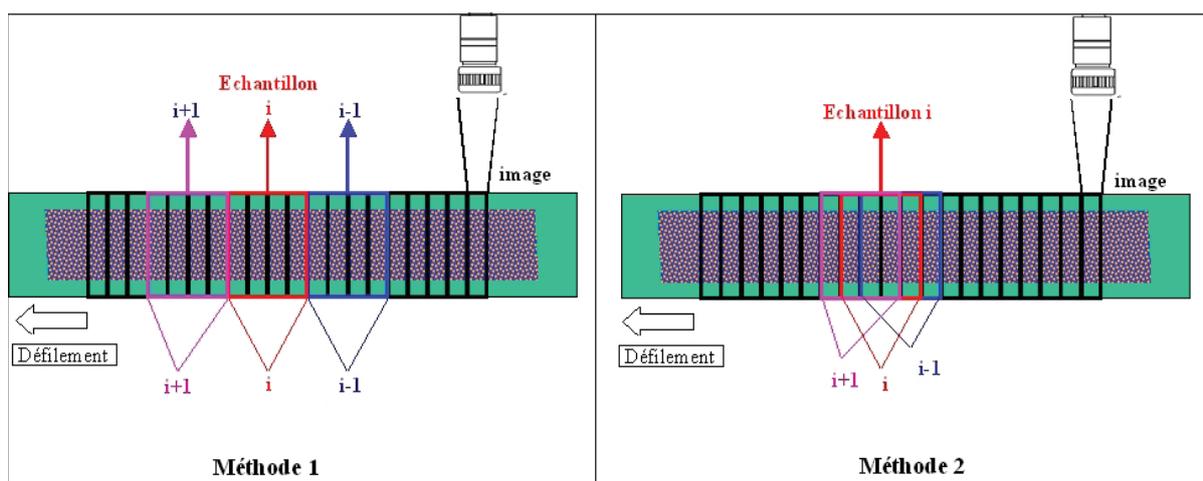


FIGURE 2.21 – Principe de construction d'un échantillon à partir de 4 images

Un exemple de comparaison entre les résultats expérimentaux obtenus par ces deux méthodes d'échantillonnage est proposé sur la figure 2.22. Dans cet exemple, chaque échantillon est construit avec 7 images ( $nb=7$  et  $t_e = 0,5s$ ).

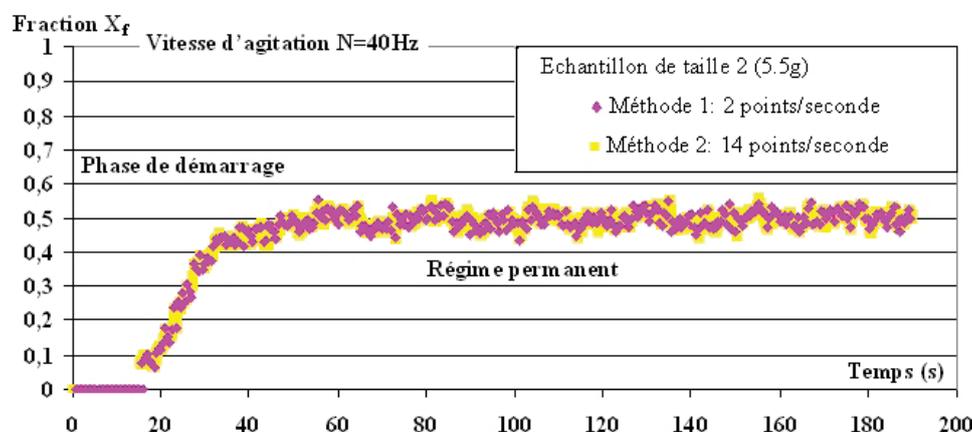


FIGURE 2.22 – Comparaison entre deux méthodes d'échantillonnage pour des échantillons de 5,5g

Le signal fourni par la deuxième méthode est un signal presque continu dans le temps, il permet d'explorer plus de données expérimentales. Pour cette raison, les résultats expérimentaux seront traités avec cette deuxième méthode qui consiste à construire un échantillon à partir de plusieurs images correspondant à la taille d'observation souhaitée, ceci en déplaçant à chaque fois la fenêtre d'observation d'uniquement une seule image.

#### 2.4.2 Calibrage et validation de la technique d'analyse d'image

La validation de la méthode d'analyse d'image a fait l'objet de plusieurs expériences consistant à colorer partiellement en noir des feuilles blanches (de surface connue). Comme le montre la figure 2.23, chaque image prise par la caméra est composée de trois couleurs différentes. Le noir et le blanc, qui sont les couleurs de la feuille, et le vert qui est celle de la bande transporteuse. L'analyse de toutes les images permet de déduire le nombre total de pixels de chaque couleur.

La comparaison des surfaces colorées (en%) avec celles obtenues par analyse d'image (figure 2.24), a permis d'assurer que la technique développée est assez représentative de la proportion surfacique occupée par chaque couleur.

Notons ici que la fraction surfacique est calculée à partir de la moyenne arithmétique sur toutes les images prises de la feuille colorée.

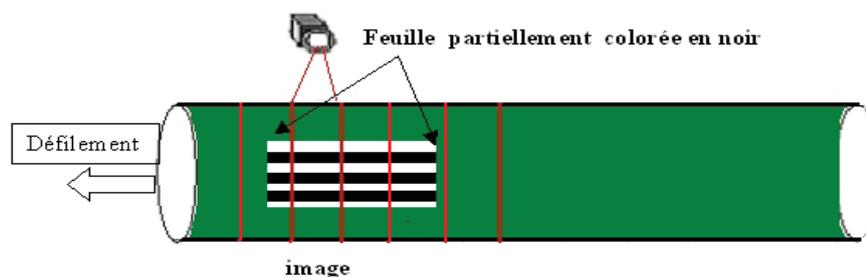


FIGURE 2.23 – Défilement d'une feuille blanche partiellement colorée devant la caméra

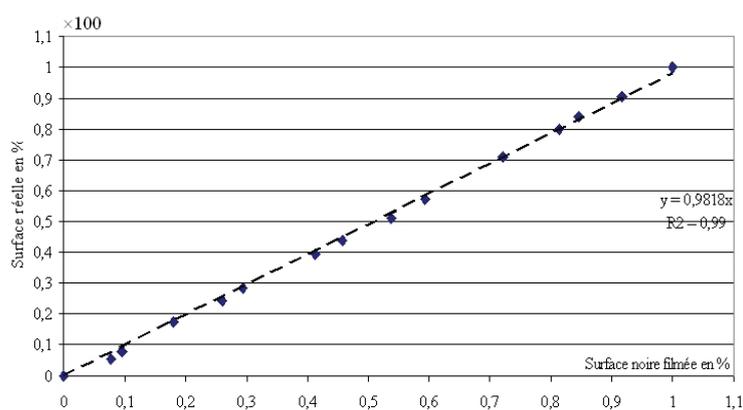


FIGURE 2.24 – Relation entre la surface colorée réelle et la surface filmée

Pour faire un lien entre la proportion surfacique et la proportion massique, nous avons réalisé un étalonnage à partir des mélanges étudiés de couscous fin «coloré en noir » et du couscous moyen « blanc ». Les résultats expérimentaux obtenus sont présentés sur le graphe 2.25.

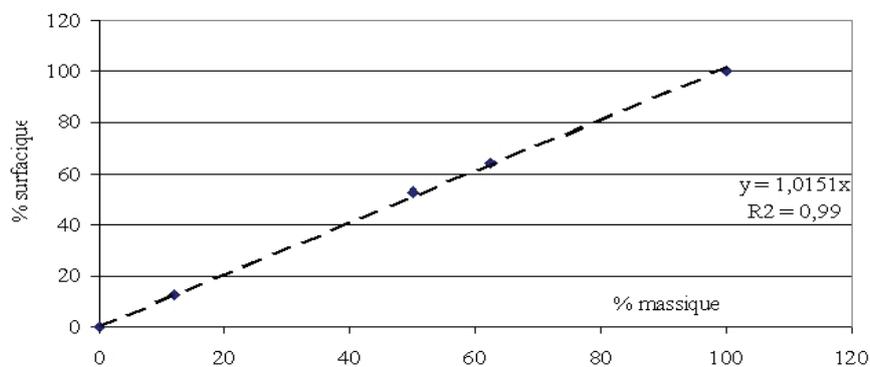


FIGURE 2.25 – Relation entre la composition surfacique filmée par la caméra et la composition massique réelle

Les résultats obtenus par cet étalonnage indiquent qu'il n'y a quasiment pas de différence entre la fraction surfacique mesurée et la fraction massique des produits.

Pour valider les résultats obtenus par analyse d'image, nous prélevons au cours de chaque expérience de mélange en continu quelques échantillons qui correspondent à différents temps. La fréquence d'échantillonnage de 30 secondes, et la masse moyenne de chaque échantillon est de l'ordre de 13g. La composition de chaque échantillon prélevé est ensuite déterminée par tamisage hors ligne.

Deux exemples de comparaison entre les résultats obtenus par analyse d'image et les résultats obtenus à partir des échantillons prélevés sont présentés sur les figures 2.26 et 2.27. Ces deux exemples sont réalisés pour d'un débit total de  $40\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$  et une vitesse du mobile d'agitation de  $40\text{Hz}$ . D'autres exemples de validation de cette technique d'analyse en ligne (par traitement d'images) sont présentés en annexe 3.

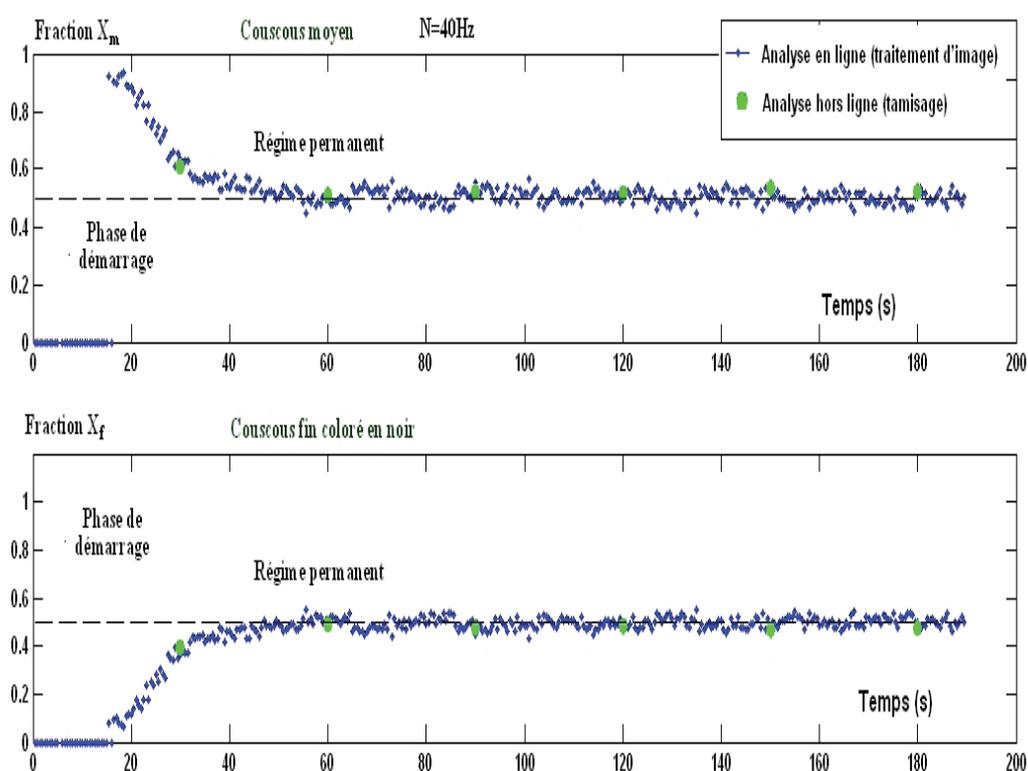


FIGURE 2.26 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ( $Q = 40\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$  ;  $N = 40\text{Hz}$  ; composition du mélange : 50%)

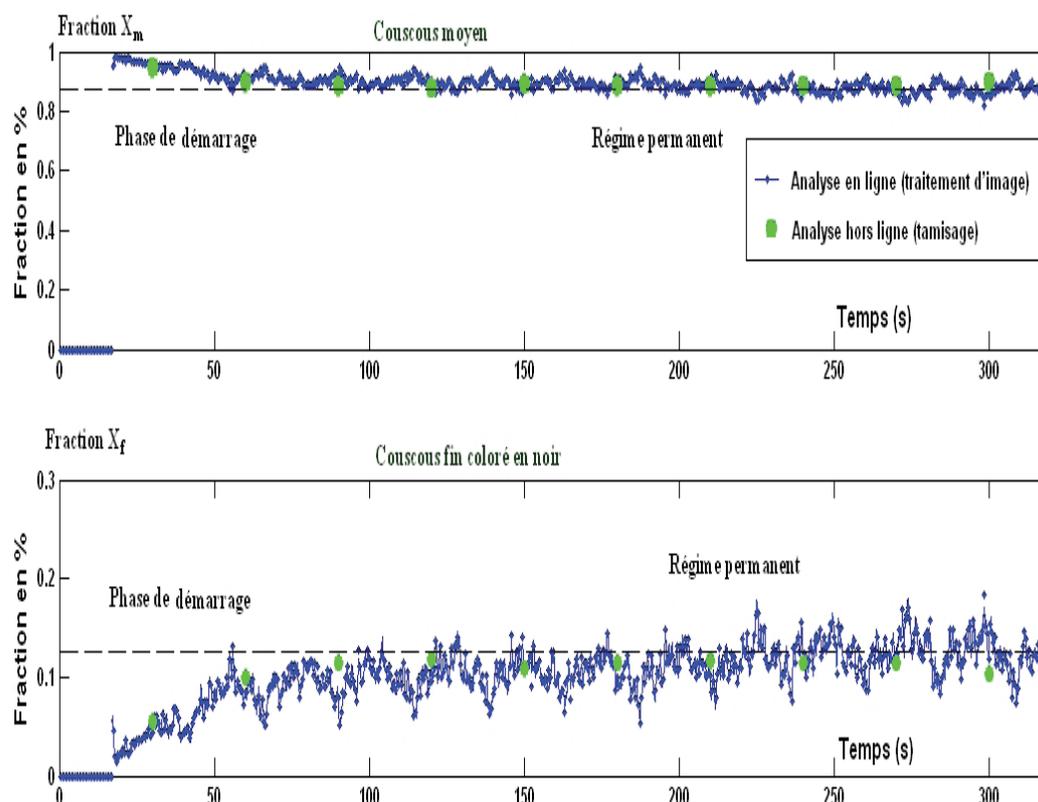


FIGURE 2.27 – Validation de la méthode d’analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ( $Q = 40 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  ;  $N = 40 \text{ Hz}$  ; composition du mélange : 12,5%)

Pour les deux cas de figure présentés, on remarque que la composition du mélange en régime permanent fluctue autour de la composition attendue. Les analyses réalisées hors ligne et plus particulièrement celles qui correspondent à la phase de démarrage vont dans le sens de la validation de la technique d’analyse d’image en ligne. En effet, le mélange obtenu pendant la phase de démarrage est composé majoritairement des particules blanches (couscous moyen), ce n’est qu’après un certain temps de régime transitoire que le mélange s’équilibre en terme de composition finale attendue des deux produits. Ce phénomène de ségrégation qui est observé grâce à l’analyse d’image (pendant la phase de démarrage) est confirmé par les analyses réalisées hors ligne.

Nous précisons également que ces expériences ont été réalisées 3 fois afin de s’assurer de la répétabilité des résultats.

### 2.4.3 Mesure en continu de la variance et du coefficient de variation

La qualité d’un mélange est le plus souvent caractérisée par la variance ou le coefficient de variation, qui représentent la dispersion de la concentration des constituants de ce mélange.

La détermination de ces paramètres fournit des renseignements précieux sur la capacité du mélangeur à atteindre un bon degré de mélange en atténuant les fluctuations des débits de dosage.

Dans le cadre de ce travail, ces deux paramètres ont été calculés en temps réel à partir de la mesure de la composition du mélange par analyse d'image. Plus particulièrement, à chaque pas d'échantillonnage, la variance est calculée sur les  $n$  derniers échantillons analysés. Ainsi à l'instant  $k * \Delta t$  la variance est calculée par l'équation suivante :

$$\sigma^2(k) = \frac{1}{m} \sum_{i=k-m}^k (X_f(i) - \bar{X}_f(i))^2 \quad (2.7)$$

$\Delta t$  est le pas d'échantillonnage;  $X_f(i)$  est la fraction du couscous fin à l'itération  $i$  (ou à l'instant  $i * \Delta t$ );  $\bar{X}_f(k)$  est la composition moyenne calculée sur les  $m$  dernières échantillons à partir de l'expression suivante :

$$\bar{X}_f(k) = \frac{1}{m} \sum_{i=k-m}^k (X_f(i)) \quad (2.8)$$

De même, le coefficient de variation à cet instant peut être calculé par l'équation 2.9

$$Cv(k) = \frac{\sigma(k)}{\bar{X}_f} \quad (2.9)$$

Dans le cas du mélangeur étudié, nous avons admis que le mélange est homogène lorsque le coefficient de variation de la teneur en couscous fin dans les différents échantillons analysés en ligne est inférieur à 6%. De plus, la composition de chaque échantillon doit être dans la fourchette de  $\pm 15\%$  de la composition désirée, et la composition moyenne ne doit pas sortir de la fourchette de  $\pm 7.5\%$ , comme indiqué dans la réglementation de la FDA (voir chapitre 1 partie 1.4).

# Étude de l'agitation en régime transitoire

---

## Introduction

Dans cette partie, nous nous penchons sur le fonctionnement dynamique d'un mélangeur continu pilote de type Gericke GCM 500 lors des phases transitoires que l'on peut rencontrer dans l'industrie, comme la vidange, le démarrage ou des variations brusques de la vitesse du mobile d'agitation. Avant de s'intéresser au mélange, on se focalise ici sur l'agitation d'un produit pur, qui est le couscous de taille moyenne. La démarche expérimentale consiste à étudier l'effet des variables opératoires principales sur l'évolution du débit de sortie, de la masse retenue et de sa répartition dans le mélangeur. L'objectif de ce premier diagnostic est de décrire, à partir d'une analyse empirique, l'écoulement des particules au sein du mélangeur quel que soit le régime.

### 3.1 Étude de l'agitation lors de la vidange

Industriellement, il n'est pas rare de devoir faire opérer un mélangeur selon un mode semi-continu pendant une durée limitée. Dans une récente étude [127], il a été démontré que le remplissage des trémies lors d'un procédé de mélange est une source importante de perturbation des doseurs et par conséquent de l'homogénéité de mélange. Il peut même être préférable d'arrêter les doseurs pendant leur remplissage, le mélangeur pouvant éventuellement continuer d'opérer.

Un autre exemple est celui de la vidange d'un mélangeur batch, en fin de cycle. C'est une

pratique courante dans l'industrie pharmaceutique où le principe de réconciliation doit être assuré. Pendant cette vidange, il existe un risque de ségrégation qui peut amener à une perte de l'homogénéité acquise par l'opération de mélange, d'où la nécessité de bien maîtriser la phase de vidange. Malgré cela, peu de recherche ont été menées sur ce type de fonctionnement particulier.

Dans la présente partie, nous étudions uniquement l'aspect dynamique de l'agitation d'un produit pur en vidange. Cette étude sera étendue, par la suite, au régime permanent.

### 3.1.1 Effet de la vitesse d'agitation et de la masse initiale

Le produit, constitué de particules de diamètre supérieur à  $1200 \mu m$ , est préalablement introduit directement dans la chambre de mélange par le doseur. Dans ce mode, le rôle des doseurs est limité au remplissage initial du mélangeur. Ils ne sont pas utilisés au cours de l'agitation.

Après avoir choisi une masse de remplissage initiale  $M_1(t=0)$  et une vitesse de rotation du mobile d'agitation  $N$ , nous mesurons la masse retenue et le débit de sortie, comme cela est illustré sur la figure 3.1. Nous cherchons à mettre en évidence l'effet de ces deux variables opératoires ( $N, M_1(t=0)$ ).

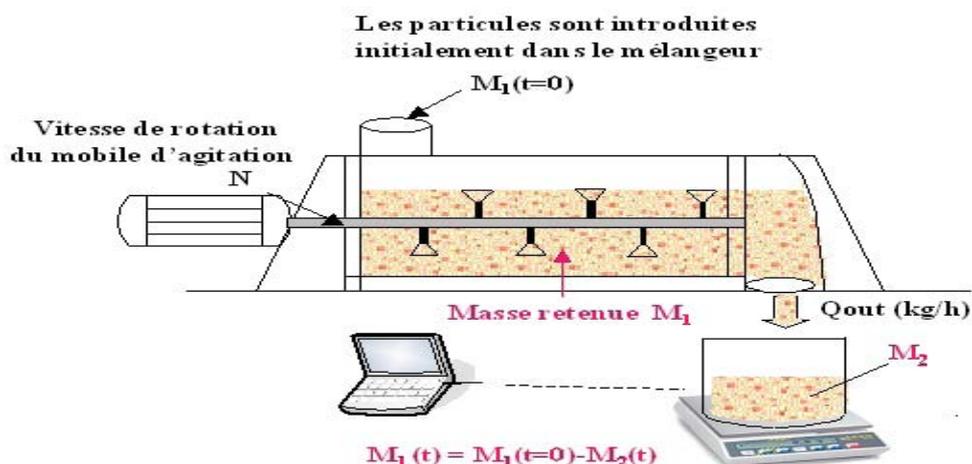


FIGURE 3.1 – Mesure de la masse retenue pendant la vidange

Les expériences ont été réalisées avec  $N$  égal à : 10, 20, 30, 40 et 50 Hz. Pour chaque vitesse  $N$ , trois masses initiales ont été choisies 4, 6 et 8 kg.

Le débit de sortie est calculé à partir de la variation de la masse sortante ( $M_2$ ) entre deux

instants successifs :

$$Q_{out}(t) = \frac{M_2(t + \Delta t) - M_2(t)}{\Delta t} = \frac{M_1(t) - M_1(t + \Delta t)}{\Delta t} \quad (3.1)$$

Sur la figure 3.2 nous présentons deux exemples de l'évolution expérimentale de la masse retenue ( $M_1$ ) et du débit de sortie ( $Q_{out}$ ) pendant la vidange à deux différentes vitesses d'agitation : 20 et 40Hz. Les autres résultats expérimentaux sont présentés en annexe 4.

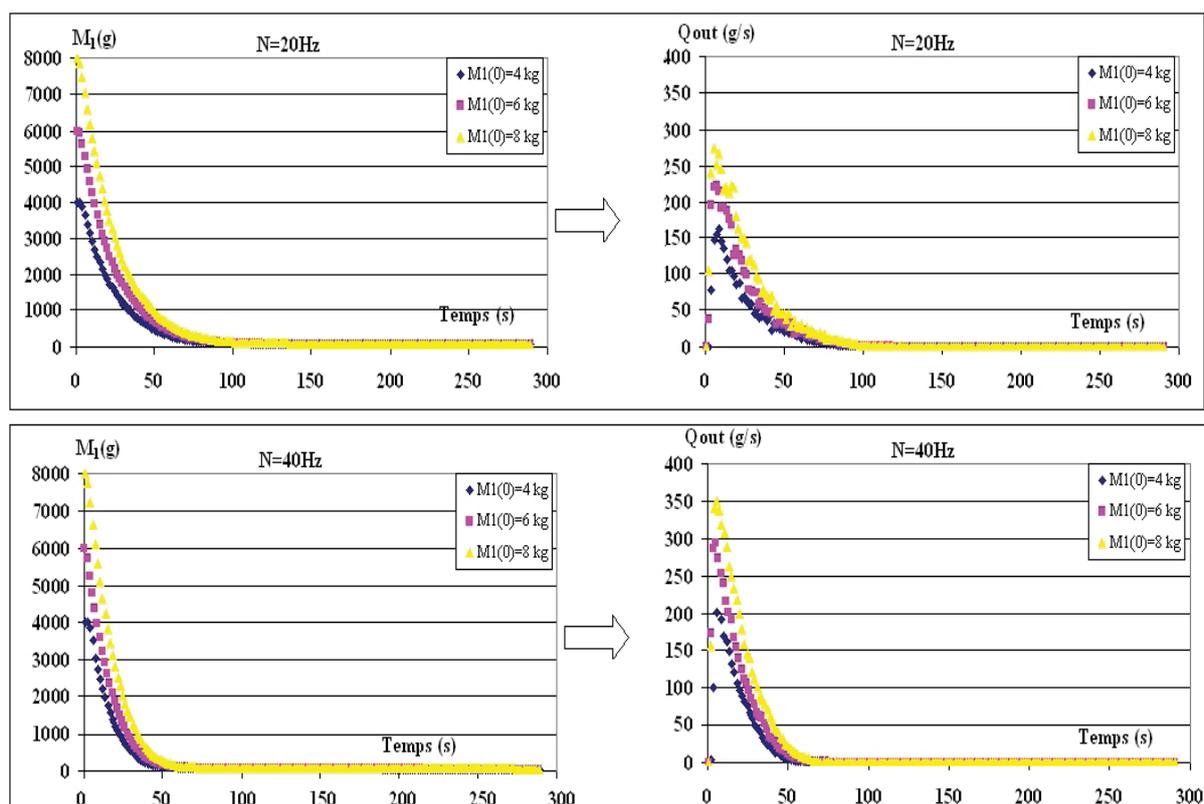


FIGURE 3.2 – Évolution de la masse retenue et du débit de sortie pendant la vidange ( $\Delta t = 1,6$  s)

Comme nous pouvons le constater, le temps nécessaire pour que le mélangeur soit vidé est de l'ordre de 50 secondes pour une vitesse d'agitation de 40Hz, et de 90 secondes pour une vitesse de 20Hz. Ces résultats montrent que la cinétique de vidange est accélérée quand la vitesse d'agitation est augmentée. En particulier, pour la même masse initiale  $M_1(t = 0)$  et à plus forte vitesse d'agitation, les particules sortent du mélangeur avec un débit plus élevé qu'à plus faible vitesse. Cet effet observé de l'agitation sur le débit de sortie sera quantifié ultérieurement.

Afin d'illustrer l'effet de la masse initiale ( $M_1(t = 0)$ ) sur la vidange, nous examinons

l'évolution du débit de sortie  $Q_{out}$  avec la masse retenue  $M_1$  pour différentes masses initiales. Deux exemples de résultats expérimentaux sont présentés sur la figure 3.3.

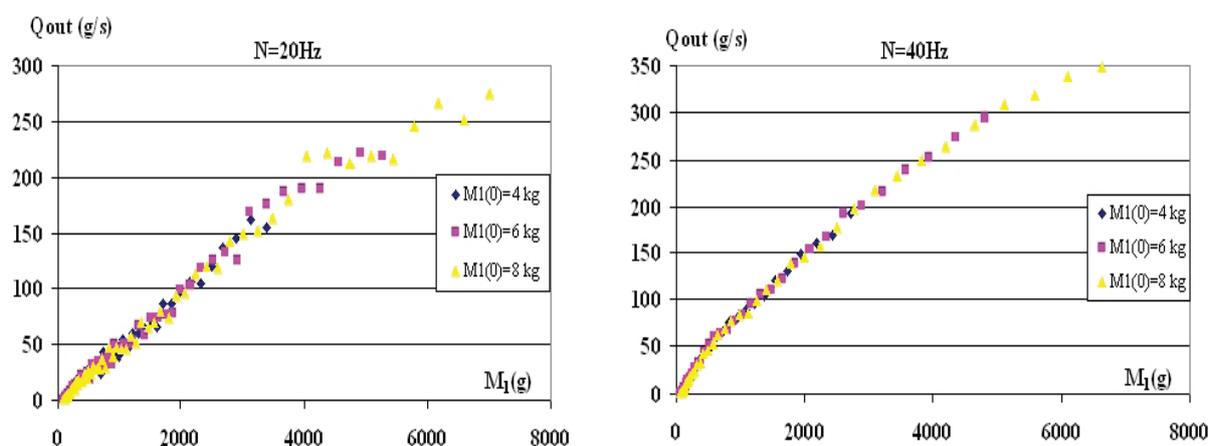


FIGURE 3.3 – Évolution de débit de sortie ( $Q_{out}$ ) avec la masse retenue ( $M_1$ )

D'après ces résultats, le débit de sortie à un instant donné  $t$ , ne dépend que de la vitesse d'agitation  $N$  et de la masse retenue dans le mélangeur à cet instant, la masse initiale n'a pas d'influence sur son évolution. Ainsi, la vidange est principalement régie par l'action d'agitation.

### 3.1.2 Différents régimes d'écoulement lors de la vidange

Pour faciliter la compréhension de l'effet des variables opératoires (débit et vitesse d'agitation) sur le démarrage et la vidange d'un mélangeur continu, nous définissons un paramètre  $r$  comme étant le rapport du débit de sortie à la somme de la masse retenue et de la masse entrante dans le mélangeur à un instant  $t$  :

$$r(t) = \frac{Q_{out}(t)}{M_1(t) + \Delta F(t)} = \frac{Q_{out}(t)}{M_1(t) + Q * \Delta t} \quad (3.2)$$

$\Delta F(t)$  est la masse des particules introduites dans le mélangeur entre deux instants successifs. Dans cette partie, consacrée à l'étude de la vidange du mélangeur, le terme représentant l'alimentation est nul :  $\Delta F = 0$ , Ainsi :

$$r(t) = \frac{Q_{out}(t)}{M_1(t)} \quad (3.3)$$

Deux exemples de l'évolution expérimentale de ce paramètre ( $r$ ) durant la vidange du mélangeur sont illustrés sur la figure 3.4. Le premier correspond à une vitesse d'agitation de 20Hz,

et le deuxième est réalisé avec  $N=40\text{Hz}$ . Dans ces deux exemples, le rapport  $r$  est représenté en fonction de la masse retenue dans le mélange  $M_1$ .

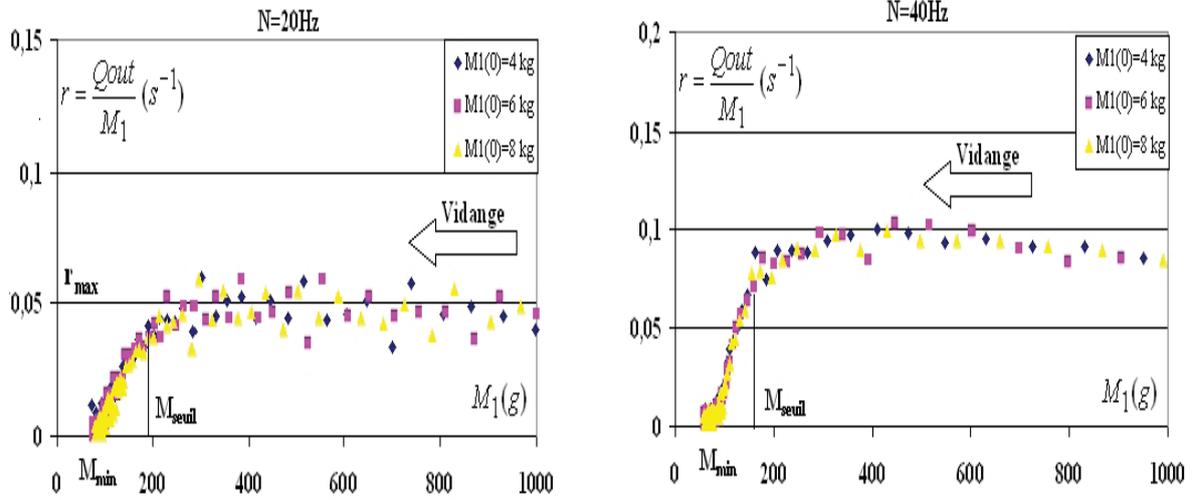


FIGURE 3.4 – Évolution du rapport  $r$  pendant la vidange

En examinant l'ensemble des résultats obtenus via l'évolution du rapport " $r$ " pour différentes vitesses d'agitation, nous pouvons définir trois régimes d'écoulement selon la masse retenue dans le mélangeur. En effet, nous remarquons qu'il existe une masse retenue "seuil"  $M_{seuil}$  au dessus de laquelle le rapport  $r$  reste constant pendant la vidange ( $r = r_{max}$ ), de même qu'une masse retenue minimale  $M_{min}$  en dessous de laquelle il n'y a plus d'écoulement en dehors du mélangeur. Entre ces deux masses limites le rapport  $r$  semble varier linéairement avec la masse retenue. Ainsi :

$$\text{pour } M_1 < M_{Mmin} : r = 0 \quad (3.4)$$

$$\text{pour } M_1 > M_{seuil} : r = r_{max} \quad (3.5)$$

$$\text{pour } M_{min} < M_1 < M_{seuil} : r(n) = a * M_1(n) + b \quad (3.6)$$

Pendant la vidange, tant que la masse retenue est supérieure à la masse seuil, le rapport  $r$  reste constant et le débit de sortie ( $Q_{out}$ ) varie linéairement avec la masse retenue ( $M_1$ ) selon l'équation 3.7.

$$\text{pour } M_1 > M_{seuil} : Q_{out} = r_{max} * M_1 \quad (3.7)$$

En revanche, lorsque la masse retenue  $M_1$  est comprise entre la masse seuil et la masse

minimale, le débit de sortie  $Q_{out}$  est décrit par un polynôme du seconde ordre :

$$\text{pour } M_{min} < M_1 < M_{seuil} : Q_{out}(t) = a * M_1^2(t) + b * M_1(t) \quad (3.8)$$

Dans ce régime, le débit à un instant  $t$  ( $Q_{out}(t)$ ) dépend de la masse retenue  $M_1(t)$  et des deux paramètres empiriques ( $a$  et  $b$ ). Si l'on trace l'évolution de ces paramètres en fonction de la vitesse d'agitation, on obtient les courbes 3.5 (a) et 3.5 (b). Le premier paramètre ( $a$ ) ne dépend que de la vitesse de rotation  $N$ . Les expériences réalisées montrent que ce paramètre est une fonction linéaire de  $N$  (voir figure 3.5 (a)) :

$$a = kv_1 * N \quad (3.9)$$

avec  $kv_1 (g^{-1}) = 2,17 * 10^{-5} \pm 0,6 * 10^{-5}$  (intervalle de confiance à 95%).

Quant au deuxième paramètre  $b$ , il est déterminé à partir de la masse minimale par l'équation :

$$b = -a * M_{min} \quad (3.10)$$

A son tour, la masse minimale peut être reliée directement à la vitesse de rotation  $N$  par une corrélation empirique comme le montre le graphe 3.5(b) :

$$M_{min} = kv_2 * N^\alpha \quad (3.11)$$

Intervalle de confiance à 95% :

$$kv_2 (g.s^{-0,5}) = 3,4 * 10^2 \pm 0,25 * 10^2 ; \quad \alpha = -0,51 \pm 0,04$$

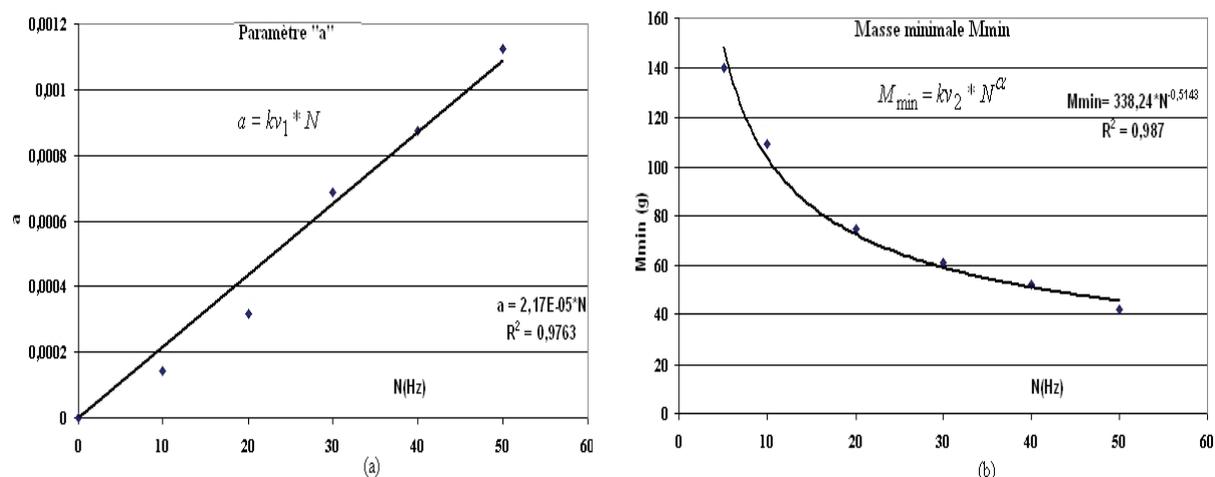


FIGURE 3.5 – Relations empiriques pour les paramètres  $a$  (a) et  $M_{min}$  (b)

Comme indiqué plus haut, tant que la masse retenue est supérieure à la masse seuil, le rapport  $r$  reste constant ( $r = r_{max}$ ), et dépend uniquement de la vitesse de rotation  $N$ . Son évolution expérimentale en fonction de la vitesse  $N$  est présentée sur la figure 3.6(a). D'après ces résultats nous pouvons écrire que :

$$\text{pour } M_1 > M_{seuil} : \quad r_{max} = kv_3 * N \quad (3.12)$$

avec  $kv_3 = 2,1 * 10^{-3} \pm 0,5 * 10^{-3}$  (intervalle de confiance à 95%).

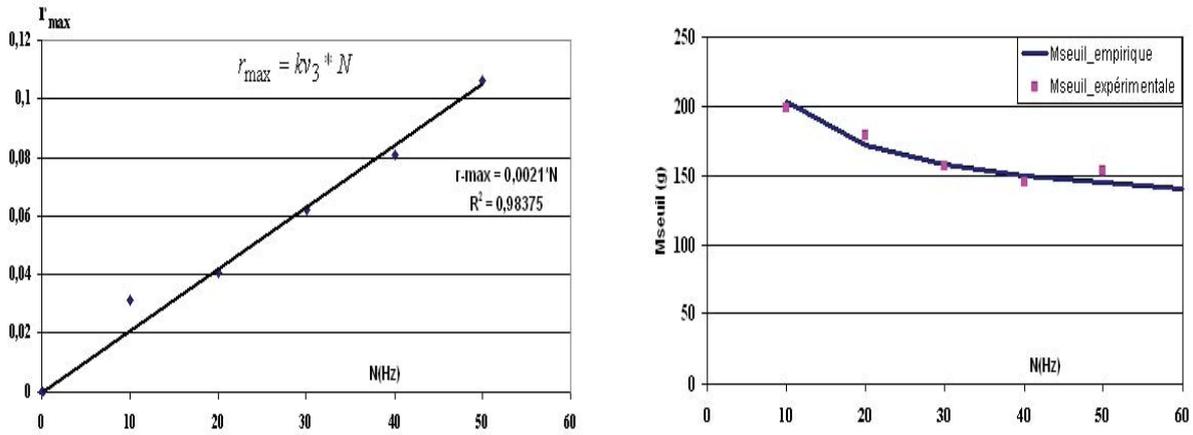


FIGURE 3.6 – (a)  $r_{max}$  en fonction de la vitesse  $N$ ; (b) Masse seuil en fonction de la vitesse  $N$ .

Lorsque la masse retenue devient inférieure à la masse seuil ( $M_{min} \leq M_1 \leq M_{seuil}$ ), la vitesse de vidange devient dépendante de la masse retenue et de la vitesse d'agitation  $N$ . Le débit des particules quittant le mélangeur à un instant  $t$  peut être ainsi décrit par l'expression suivante :

$$Q_{out}(t) = kv_1 * N * M_1(t) * (M_1(t) - \frac{kv_2}{\sqrt{N}}) \quad (3.13)$$

En utilisant les différentes relations empiriques proposées précédemment, il est possible de connaître la masse seuil pour toute vitesse de rotation  $N$ . En effet, si la masse retenue  $M_1$  est égale à la masse seuil, nous pouvons écrire que :

$$r = a * M_{seuil} + b = r_{max} \quad (3.14)$$

$$kv_1 * N * M_{seuil} + (-kv_1 * N * kv_2 * N^\alpha) = kv_3 * N \quad (3.15)$$

$$M_{seuil} = \frac{kv_3 + kv_1 * kv_2 * N^\alpha}{kv_1} \quad (3.16)$$

Une comparaison entre la masse seuil calculée par l'équation 3.16 et celle obtenue expérimentalement est proposée dans le graphe 3.6(b). Elle permet de confirmer la validité des relations proposées pour décrire la dynamique de vidange en termes de masse retenue et de débit de sortie.

Manifestement, toutes les corrélations proposées ici montrent que la vidange du mélangeur est complètement régie par la vitesse  $N$ . Les limites des différents régimes de vidange ( $M_{min}$  et  $M_{seuil}$ ) sont parfaitement déterminées à partir de la vitesse  $N$ .

Finalement, en utilisant les équations empiriques 3.4, 3.5 et 3.6, on peut prédire l'évolution du débit de sortie avec la masse retenue. Quelques exemples de comparaison entre les résultats expérimentaux du débit de sortie  $Q_{out\_exp}$  et ceux calculés par les équations empiriques sont présentés sur la figure 3.7.

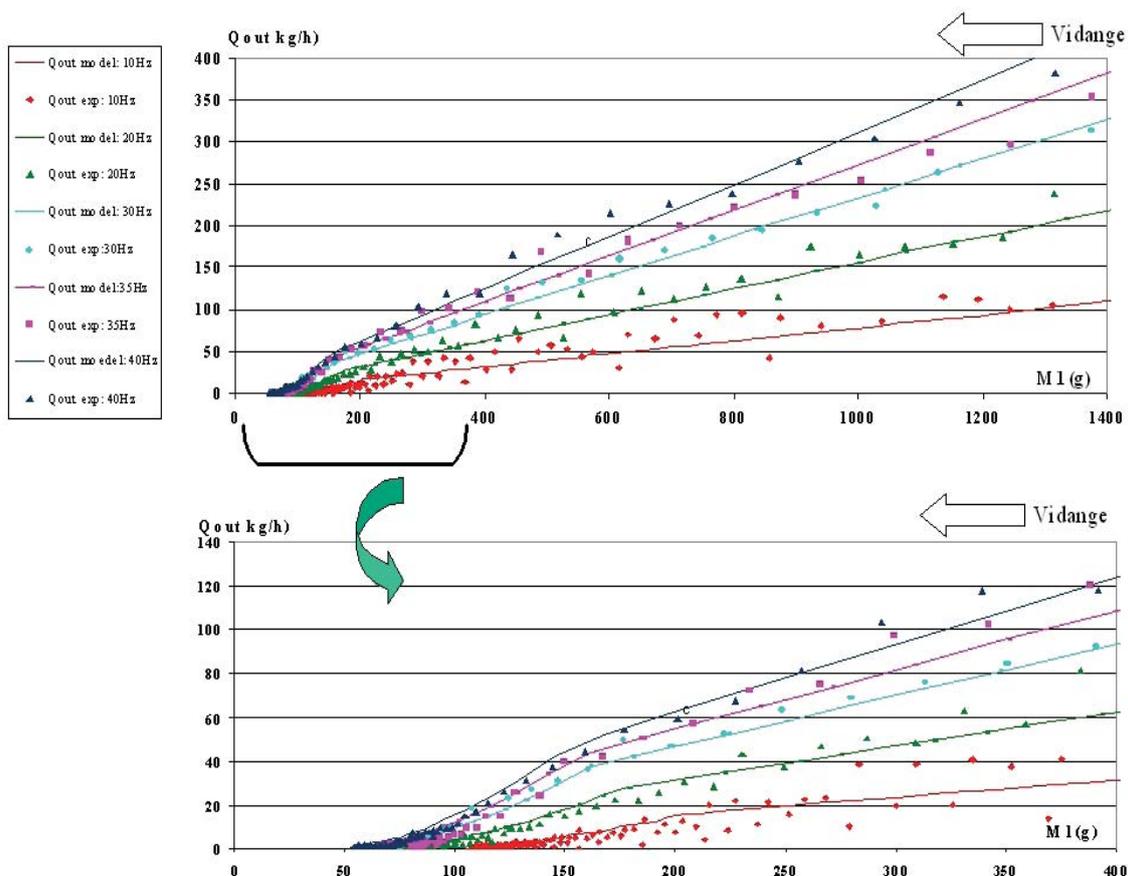


FIGURE 3.7 – Débit de vidange : comparaison entre expérience et relations empiriques

Étant donnée que la vitesse d'agitation est la variable principale du procédé de mélange,

l'opérateur peut être amené, à faire varier cette vitesse pour différentes raisons (accélérer ou ralentir la vitesse de vidange, améliorer la dispersion des particules et réguler la qualité du mélange durant la vidange...). Dans ce cas, la question qui se pose est de savoir si les relations développées précédemment restent valables. Pour répondre à cette question, deux exemples de résultats obtenus dans le cas d'un échelon appliqué sur la vitesse d'agitation  $N$  sont comparés aux modèles empiriques (voir figures 3.8 et 3.9).

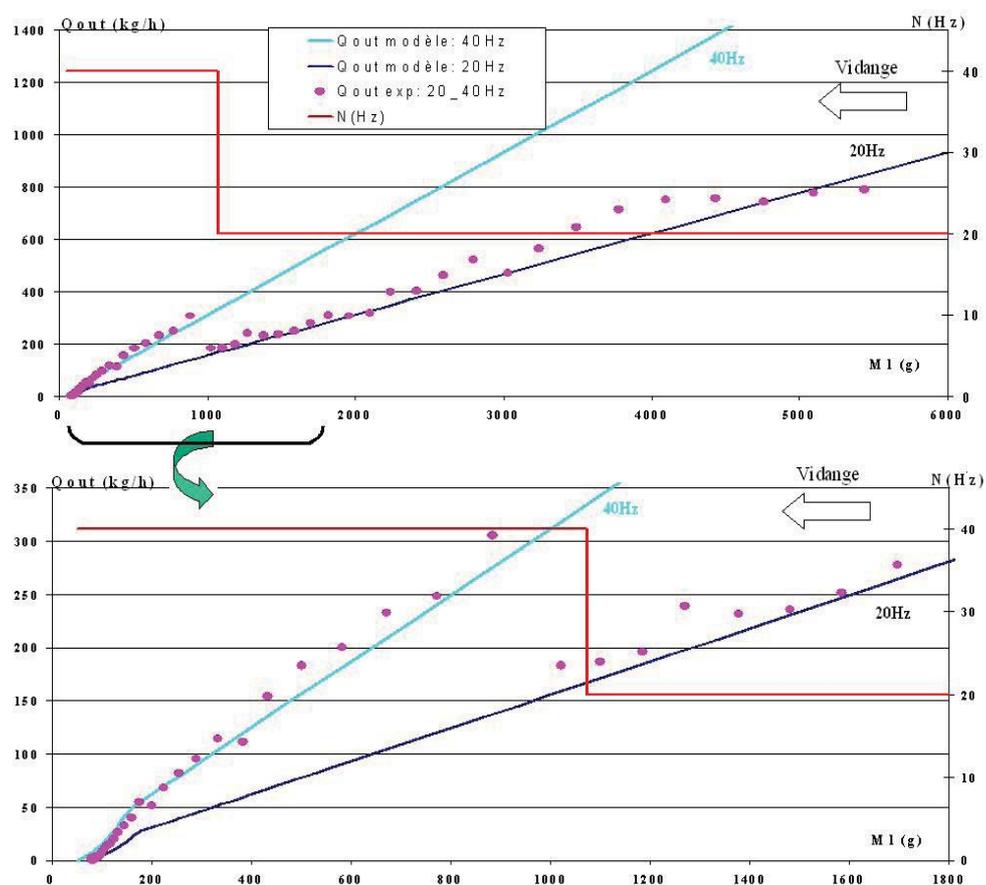


FIGURE 3.8 – Confrontation expérience- équations empiriques dans le cas d'un échelon positif sur  $N$  (de 20 à 40 Hz)

Dans le premier exemple, la vitesse d'agitation est changée de 20 à 40 Hz. Cet échelon est appliqué sur le système au moment où la masse retenue a atteint 1000 g. Comme nous pouvons le constater, que ce soit avant ou après l'échelon, la diminution du débit de sortie avec la masse retenue se fait selon les équations 3.5 et 3.6. La confrontation avec l'expérience montre la validité de ces équations.

Dans le deuxième exemple (figure 3.9), la vitesse d'agitation passe de 15 à 35 Hz instantanément. Cette fois-ci, l'échelon est appliqué à partir d'une masse retenue d'environ 450g. A son

tour, cet exemple confirme la capacité des équations développées à décrire empiriquement l'évolution du débit de vidange, même après une brusque variation de la vitesse d'agitation.

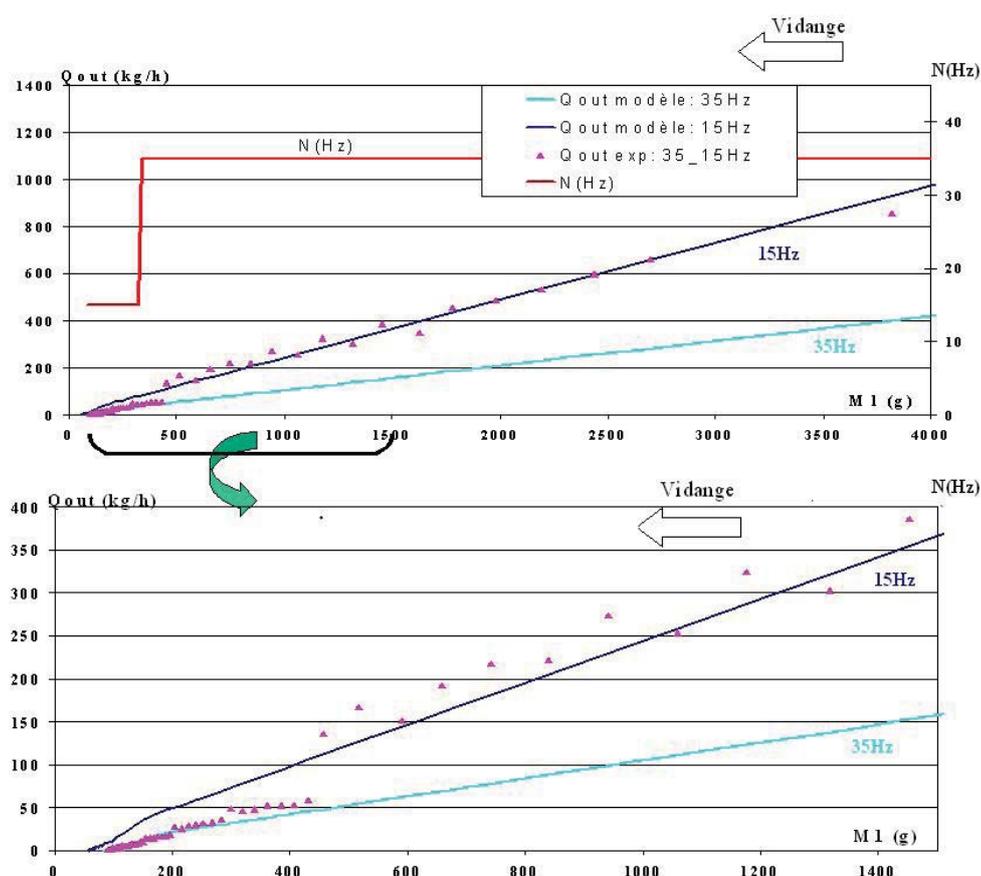


FIGURE 3.9 – Confrontation expérience- équations empiriques dans le cas d'un échelon négatif sur  $N$  (de 15 à 35 Hz)

La connaissance de la vitesse d'agitation et de la masse retenue à un instant donné permettent de prédire empiriquement le débit de sortie à cet instant. Il reste à trouver un cadre de modélisation pour prédire la dynamique du système. Il est aussi nécessaire d'étudier des phases transitoires de nature différente, comme le démarrage.

## 3.2 Étude de l'agitation lors du démarrage

### 3.2.1 Évolution de la masse retenue et du débit de sortie

En mesurant, à chaque instant  $t$ , la masse introduite dans le mélangeur ( $\Delta F_1(t)$ ) et celle sortante ( $M_2(t)$ ), nous pouvons déterminer la masse retenue dans le mélangeur  $M_1(t)$  et le

débit de sortie  $Q_{out}(t)$  (voir figure 3.10).

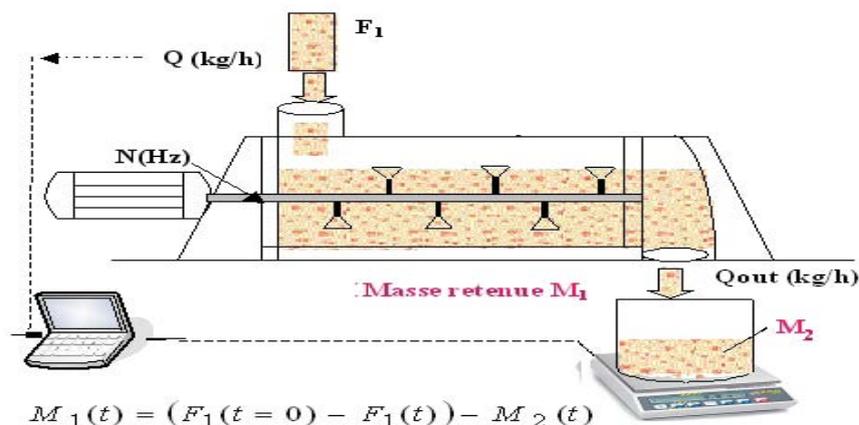


FIGURE 3.10 – Acquisition de la masse retenue et du débit de sortie

Un exemple de l'évolution de la masse retenue  $M_1$  et du débit de sortie  $Q_{out}$  en fonction du temps est présenté sur la figure 3.11, pour différentes vitesses d'agitation  $N$  et pour différents débits d'alimentation  $Q$ .

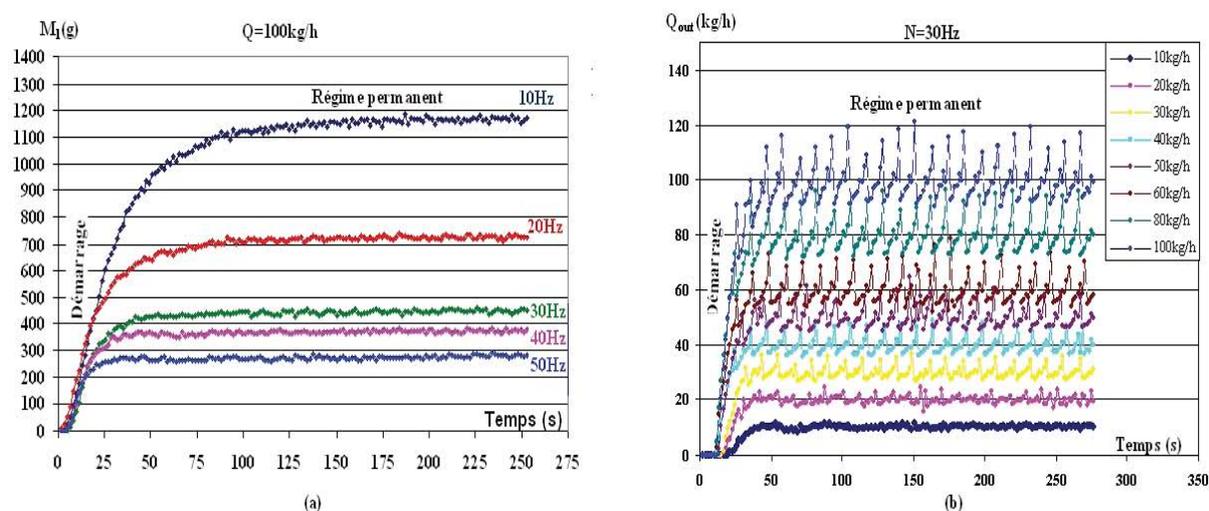


FIGURE 3.11 – Évolution de la masse retenue (a) et du débit de sortie (b)

Pendant la phase de démarrage, le doseur commence à remplir le mélangeur ce qui est traduit par une augmentation rapide de la masse retenue  $M_1$ , comme le montre la figure 3.11(a). Une fois que cette masse atteint une valeur minimale, les particules commencent à quitter le mélangeur, et le débit de sortie ( $Q_{out}$ ) augmente progressivement jusqu'à ce que le régime permanent soit établi (voir figure 3.11(a)). Pendant ce régime, la masse retenue a

atteint sa valeur seuil qui est appelée  $M_r$ . Cette masse retenue dépend principalement du débit d'alimentation  $Q$  et de la vitesse de rotation  $N$  utilisés.

Notons également que ces résultats expérimentaux sont caractérisés par quelques fluctuations, qui peuvent être expliquées par le faible pas d'échantillonnage et aussi par la nature aléatoire du système étudié.

Afin de rechercher un lien entre le débit de sortie  $Q_{out}$  et la masse retenue  $M_1$  nous présentons, sur la figure 3.12, leurs évolutions expérimentales pour différentes conditions opératoires, tout comme pour la partie 3.1.

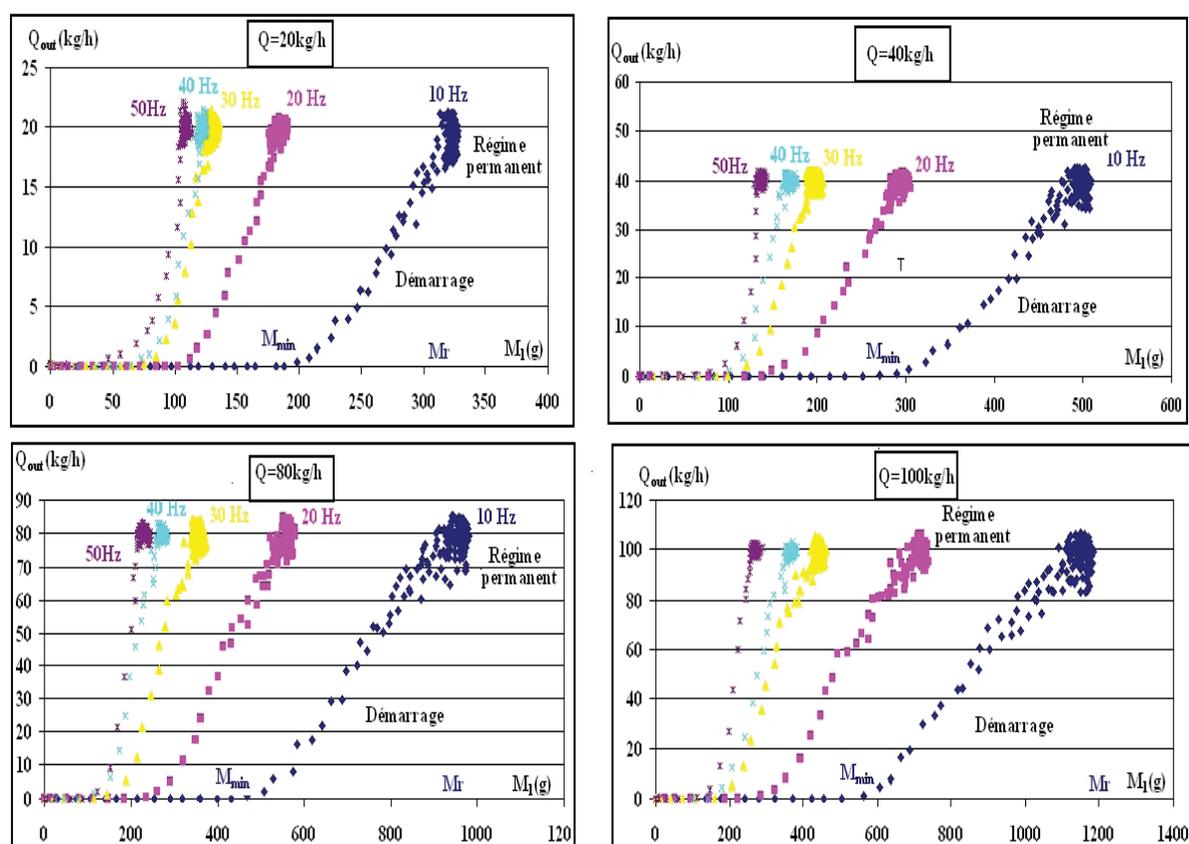


FIGURE 3.12 – Évolution du débit de sortie avec la masse retenue  $M_1$  lors du démarrage et en régime permanent pour différentes conditions

D'après ces résultats expérimentaux, nous remarquons qu'il existe une certaine ressemblance entre la phase de démarrage et celle de la vidange qui a été étudiée précédemment. En effet, lorsque la masse retenue est inférieure à une valeur minimale, notée  $M_{min}$ , il n'y a pas d'écoulement en dehors du mélangeur ( $Q_{out} = 0$ ). Ce n'est qu'une fois que la masse retenue atteint cette valeur  $M_{min}$  que les particules commencent à quitter la chambre de mélange.

Dans cette phase transitoire de démarrage du pilote, il existe encore une dépendance entre le débit de sortie à un instant  $t$   $Q_{out}(t)$  et la masse retenue  $M_1(t)$ . Plus cette masse retenue est élevée, plus le débit de sortie est important. Finalement, une fois que le débit de sortie a atteint sa valeur maximale et qu'il devient équivalent à celui de l'entrée, le régime permanent est établi et la masse retenue  $M_1$  atteint sa valeur maximale  $M_r$ . Celle-ci reste constante tant que le régime stationnaire n'est pas perturbé.

### 3.2.2 Détermination des masses retenues limites

#### Masse retenue en régime permanent :

A partir des résultats expérimentaux, nous cherchons maintenant une corrélation empirique reliant la masse retenue en régime permanent ( $M_r$ ) aux différents paramètres opératoires ( $N$  et  $Q$ ). Nous précisons ici que malgré les fluctuations mesurées de cette masse, nous supposons qu'elle reste constante en régime permanent.

Les résultats expérimentaux (figure 3.13) montrent que pour une vitesse d'agitation fixe, la masse retenue est une fonction linéaire du débit  $Q$  :

$$M_r(Q, N) = a_N * Q + b_1 \quad (3.17)$$

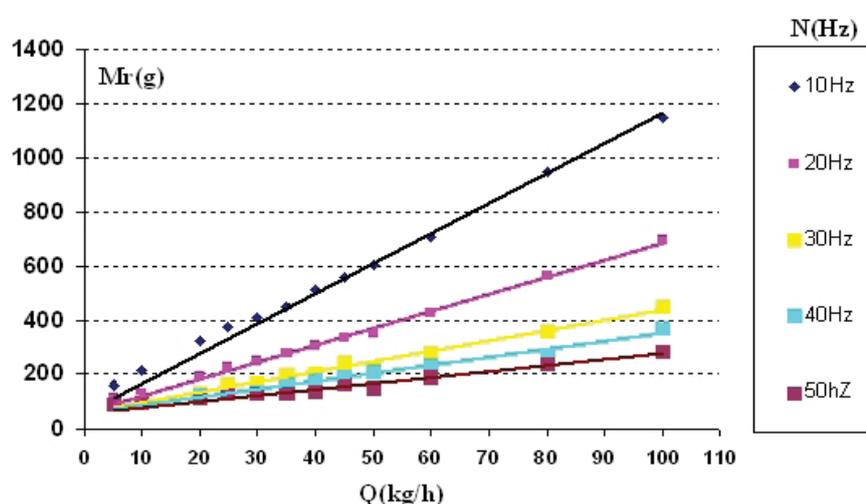
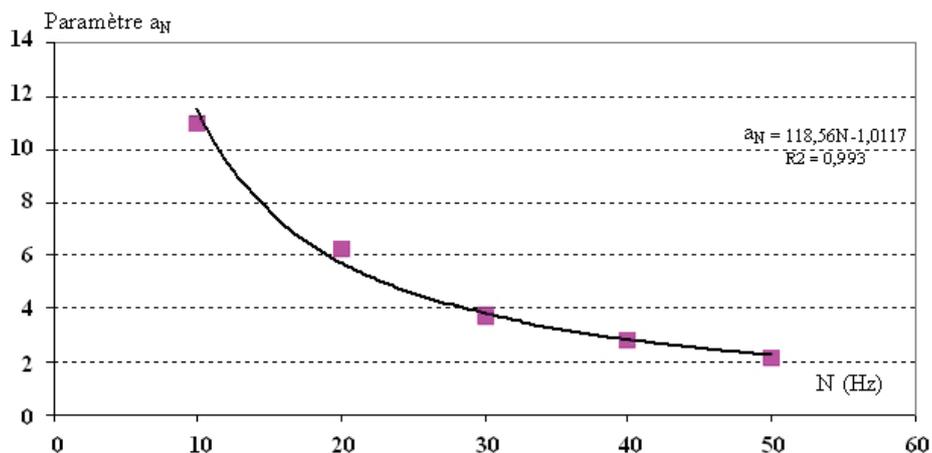


FIGURE 3.13 – Relation reliant la masse retenue en régime permanent et les variables  $Q$  et  $N$

Dans la corrélation 3.17, le paramètre  $b_1$  peut être considéré comme indépendant de la vitesse d'agitation  $N$ . Cependant le deuxième paramètre  $a_N$  est inversement proportionnel à cette vitesse  $N$ , comme illustré sur la figure 3.14.


 FIGURE 3.14 – Paramètre  $a_N$  en fonction de la vitesse N

Finalement, :  $a_N = a1 * N^{-1}$ . Ainsi la masse retenue en régime permanent est reliée empiriquement à la vitesse N et au débit Q par l'équation 3.18 :

$$Mr(Q, N) = a1 * \frac{Q}{N} + b1 \quad (3.18)$$

Si le débit Q est exprimé en (g/s) et la vitesse N en (Hz), les paramètres a1 et b1 sont :  $a1 = 425$  et  $b1 = 60$  g (intervalle de confiance à 95% : paramètre  $a1$  :  $\pm 70$  ; paramètre  $b1$  :  $\pm 14$ ).

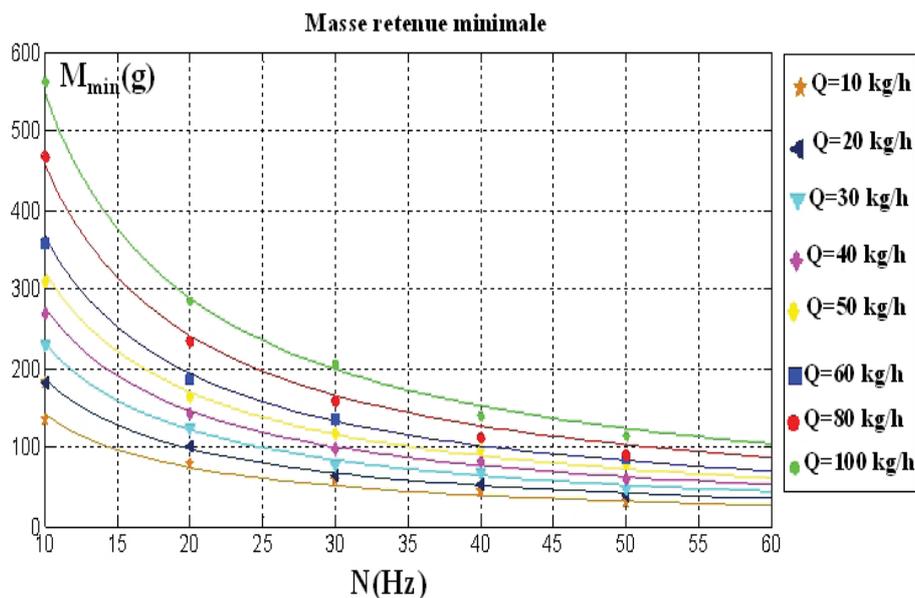
#### Masse retenue minimale :

La figure 3.15 représente l'évolution de la masse retenue minimale  $M_{min}$  en fonction de la vitesse d'agitation et pour différents débits d'alimentation Q. D'après ces résultats, nous remarquons que cette masse  $M_{min}$  diminue quand on augmente un des deux paramètres opératoires Q et N. En se basant sur ces données expérimentales, nous sommes parvenus à proposer une relation empirique simple reliant cette masse minimale à ces variables opératoires principales :

$$M_{min}(Q, N) = \frac{k1 * Q + k2}{N} \quad (3.19)$$

Les paramètres de cette corrélation empirique sont identifiés à partir d'un algorithme d'optimisation qui minimise l'écart entre ce modèle empirique (équation 3.19) et les résultats expérimentaux.

Ainsi, nous avons obtenu :  $k1 = 165$  et  $k2 = 978 \text{ g} \cdot \text{s}^{-1}$  avec Q en (g/s) et N en (Hz) (intervalle de confiance à 95% : paramètre  $k1$  :  $\pm 25$  ; paramètre  $k2$  :  $\pm 50$ ).


 FIGURE 3.15 – Masse retenue minimale en fonction de la vitesse  $N$  et du débit  $Q$ 

### 3.2.3 Différents régimes d'écoulement

Par analogie au cas de la vidange, nous définissons un paramètre  $r$  comme étant le rapport du débit de sortie à la somme de la masse retenue  $M_1$  et de la masse entrante  $\Delta F_1$  (durant le temps  $\Delta t$ ).

$$r(n) = \frac{Q_{out}(n)}{M_1(n) + \Delta F_1(n)} = \frac{\frac{M_2(n+1) - M_2(n)}{\Delta t}}{M_1(n) + \Delta F_1(n)} \quad (3.20)$$

L'évolution expérimentale de ce rapport  $r$  pour différentes conditions opératoires est présentée sur la figure 3.16. Le pas de discrétisation expérimental est  $\Delta t = 1.6$  s.

Nous remarquons que les résultats obtenus ici ressemblent à ceux obtenus dans le cas de la vidange. En particulier, selon la masse retenue dans le mélangeur ( $M_1$ ) nous pouvons définir trois régimes d'écoulement :

- pour  $M_1 \leq M_{min}$  :

$$r = 0 \Rightarrow Q_{out} = 0 \quad (3.21)$$

Dans ce premier régime, tant que la masse retenue est inférieure à la masse minimale  $M_{min}$  aucune particule ne peut quitter le mélangeur.

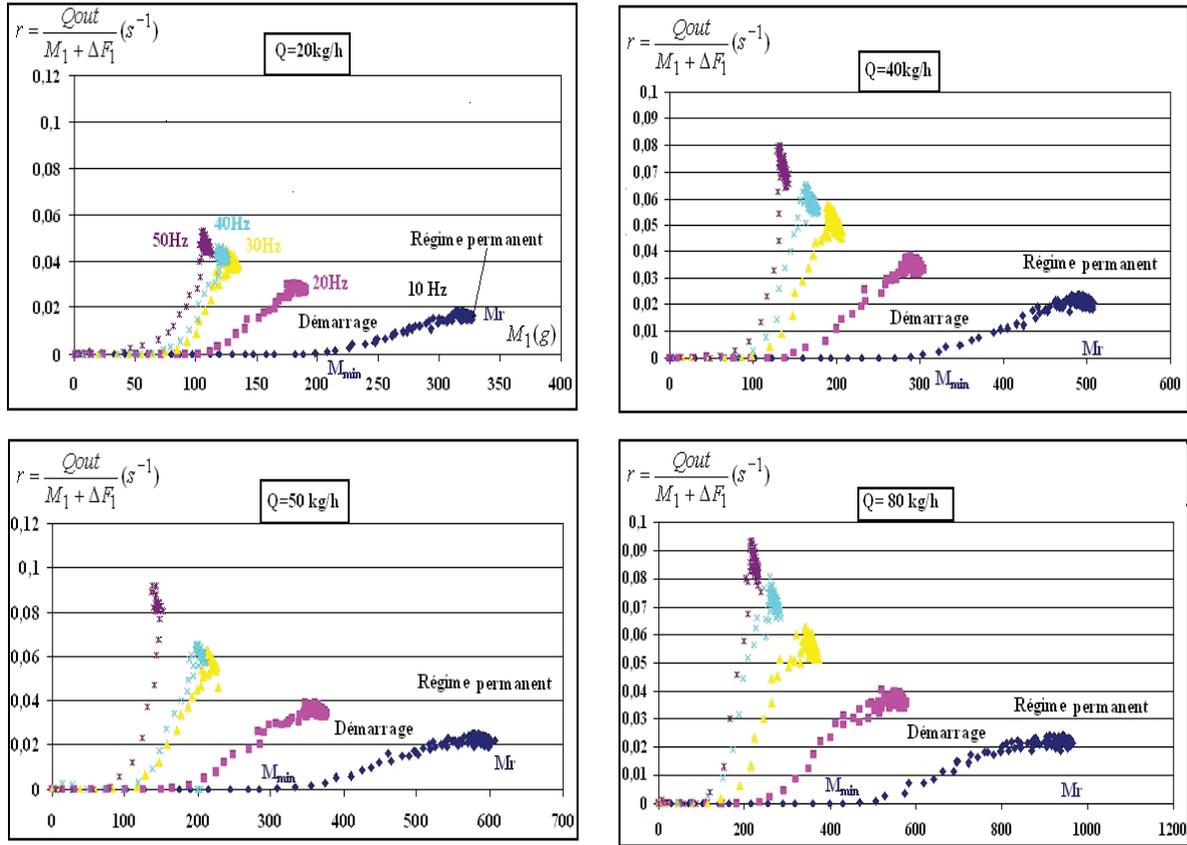


FIGURE 3.16 – Évolution expérimentale du rapport  $r$  pendant le démarrage et en régime permanent

- pour  $M_{min} \leq M_1 \leq M_{seuil}$  :

$$r(n) = a(M_1(n) - M_{min}) \Rightarrow Q_{out}(n) = a(M_1(n) - M_{min}) * (M_1(n) + \Delta F_1(n)) \quad (3.22)$$

Entre la masse minimale et la masse seuil correspondant au régime permanent ( $M_r$ ), l'évolution de  $r$  peut être considérée comme étant une droite passant par ces deux masses retenues limites ( $M_{min}$  et  $M_r$ ). Ainsi, le débit de sortie peut être exprimé en fonction de la masse retenue selon un polynôme du second ordre (équation 3.22).

- pour  $M_1 = M_r$  :

$$r = r_{max} = a * (M_r - M_{min}) \Rightarrow Q_{out}(n) = a(M_r - M_{min}) * (M_r + \Delta F_1(n)) \quad (3.23)$$

Une fois que la masse retenue  $M_1$  a atteint le seuil correspondant au régime permanent ( $M_r$ ), le débit de sortie devient équivalent à celui de l'entrée, sa valeur (qui est fluctuante) peut être calculée par l'équation 3.23.

Le seul paramètre inconnu dans ces équations empiriques qui permettent de déterminer le débit de sortie en fonction de la masse retenue, est la pente de la droite représentant la phase transitoire située entre  $M_{min}$  et  $M_r$ , et qui est appelée ici "a".

Pour déterminer ce paramètre, il suffit de connaître les masses retenues limites  $M_{min}$  et  $M_r$ .

$$a = \frac{r_{max}}{M_r - M_{min}} \quad (3.24)$$

Le rapport maximal  $r_{max}$  peut être déterminé théoriquement car en régime permanent le débit de sortie tend vers celui de l'entrée ( $Q_{out}=Q$ ). Ainsi, nous écrivons :

$$r_{max} = \frac{Q_{out}}{M_1 + \Delta F_1} = \frac{Q}{M_r + Q * \Delta t} \quad (3.25)$$

En calculant les masses retenues limites ( $M_{min}$  et  $M_r$ ) par les équations (3.18 et 3.19), il est possible de décrire l'évolution du débit de sortie en fonction de la masse retenue pendant le démarrage. Quelques exemples de comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats obtenus par les équations (3.21, 3.22 et 3.23) sont présentés sur la figure 3.17.

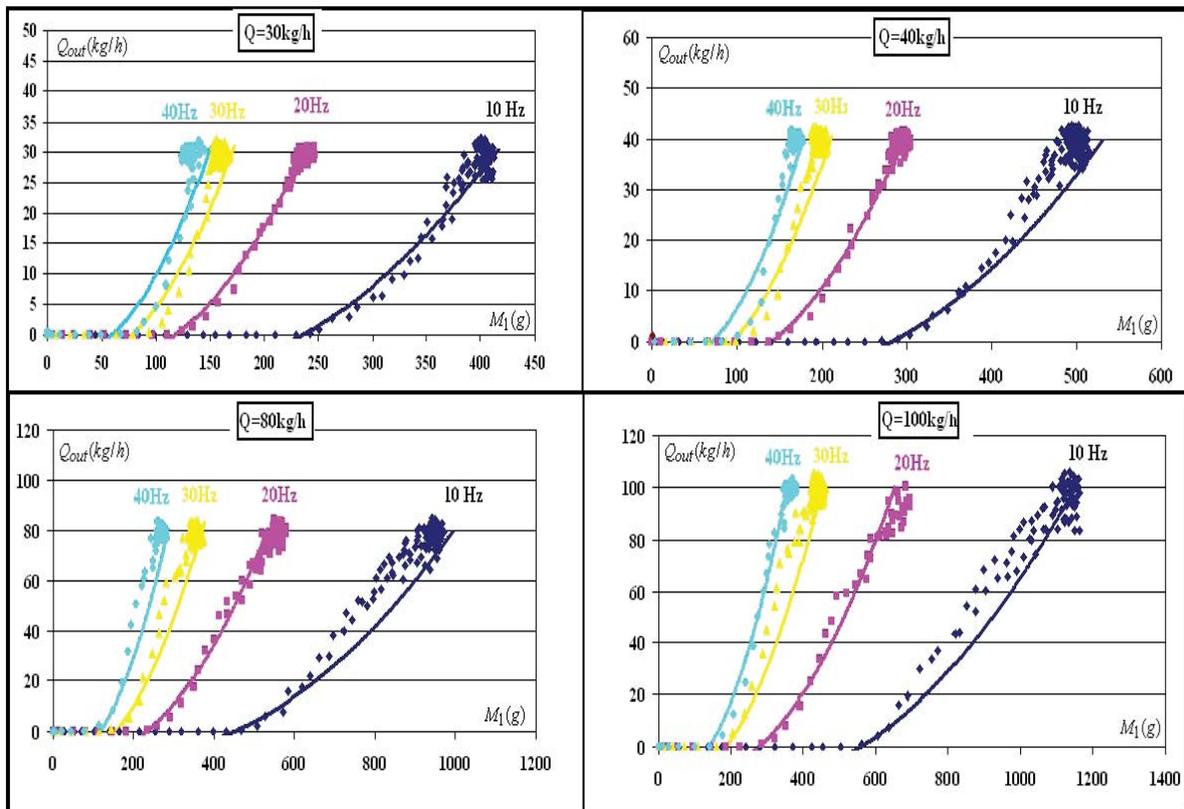


FIGURE 3.17 – évolution de  $Q_{out}$  en fonction de  $M_1$

On voit que globalement les relations empiriques développées dans cette partie permettent de relier le débit de sortie à la masse retenue quel que soit le régime considéré pendant la phase de démarrage du procédé, ceci pour différentes conditions opératoires ( $Q$ ,  $N$ ).

Il reste à savoir si l'on peut prédire l'évolution du système lors d'un changement des conditions opératoires, comme par exemple dans le cas d'une brusque variation de la vitesse d'agitation au cours du procédé. En effet, il est parfois nécessaire d'ajuster, en temps réel, les variables opératoires afin d'ajuster la qualité du mélange, ceci en améliorant par exemple la dispersion des particules ou leur temps de passage. Il est alors indispensable, dans ce cas, de pouvoir décrire cette phase transitoire.

Deux exemples montrant l'effet d'un échelon appliqué sur la vitesse d'agitation sont présentés sur la figure 3.18. Le premier concerne un changement de vitesse d'agitation  $N$  de 20 à 40 Hz (échelon positif) ; alors que dans le deuxième, la vitesse est inversement changée de 40 à 20 Hz.

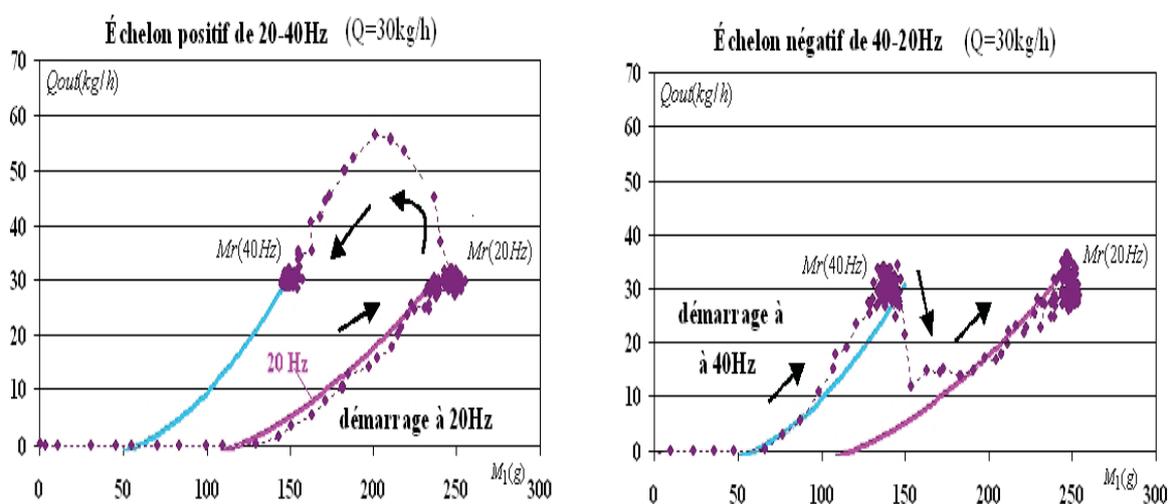


FIGURE 3.18 – Effet d'une brusque variation de  $N$

Dans le premier exemple, on voit que pendant le démarrage, le débit de sortie suit l'équation du modèle (3.22) jusqu'à ce que le régime permanent soit établi à une masse retenue correspondant à la vitesse de 20Hz. Une fois la vitesse d'agitation augmentée de 20 à 40Hz, le débit de sortie croît instantanément puis rejoint l'équation du modèle empirique correspondant à la deuxième vitesse d'agitation (40Hz).

Pour le deuxième exemple, le démarrage à 40 Hz se fait également selon le modèle de l'équa-

tion 3.22, l'application d'un échelon négatif (40 à 20 Hz) réduit brusquement le débit de sortie d'une manière à ce que ce dernier rejoint celui correspondant à la deuxième vitesse d'agitation (20Hz).

L'effet d'un changement des variables opératoires sur la dynamique du système sera étudié d'avantage dans la partie consacrée à la modélisation du mélange (chapitre 4 et 5).

### 3.2.4 Analyse du temps de passage lors du démarrage et en régime permanent

Étant donné que la qualité du mélange obtenu est souvent influencée par le temps de passage  $\tau$ , nous avons voulu quantifier l'effet des variables opératoires principales (Q,N) sur ce temps. Quelques exemples de l'évolution expérimentale de  $\tau$  pour différents débits à vitesse constante ( $N = 30 \text{ Hz}$ ) et pour différentes vitesses à débit constant ( $Q=30 \text{ kg/h}$ ), sont présentés sur la figure 3.19. Nous rappelons ici que ce temps de passage est calculé par l'équation 2.1.

$$\tau = \frac{M_1(Q, N)}{Q_{out}}$$

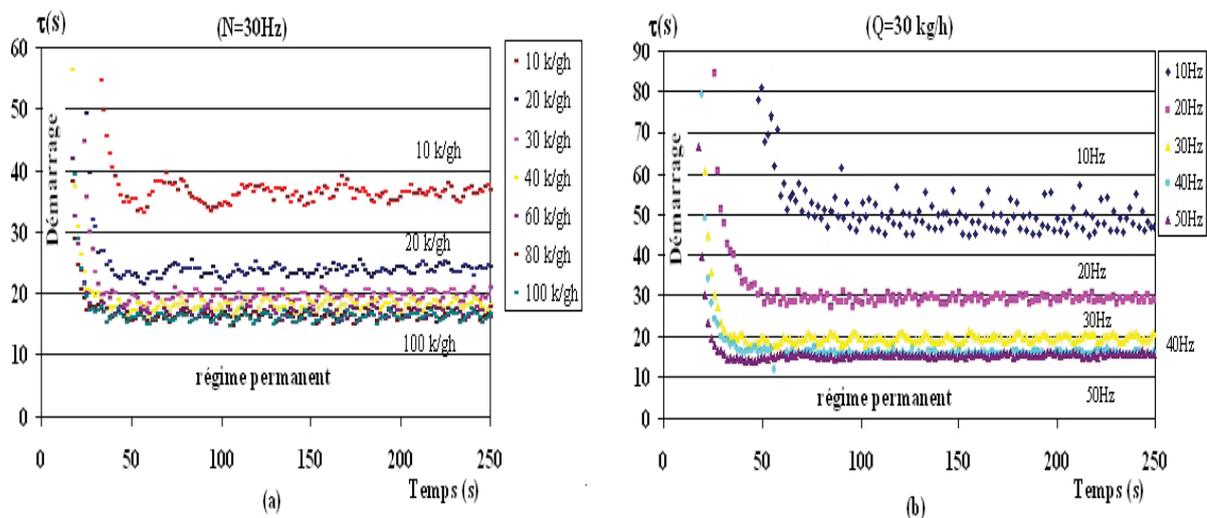


FIGURE 3.19 – Temps de passage pendant le démarrage et en régime permanent, (a) pour différents débits, (b) pour différentes vitesses

Pendant la phase de remplissage du mélangeur ( $M_1 < M_{min}$ ), les particules introduites s'accumulent à l'intérieur de l'appareil ce qui est traduit par un débit sortant nul et un temps de passage tendant vers  $+\infty$ . Une fois que la masse retenue a atteint sa valeur minimale  $M_{min}$ , le débit de sortie commence à augmenter, et par conséquent le temps de passage

diminue. Lorsque le régime permanent est atteint, le temps de passage devient constant si on néglige l'amplitude des fluctuations mesurées, dues principalement aux fluctuations du débit de sortie (mesuré à faible pas d'échantillonnage :  $\Delta t = 1,6s$ ).

D'après la comparaison entre les deux exemples proposés sur la figure 3.19, nous remarquons que le débit et la vitesse d'agitation ont quasiment le même effet sur le temps de passage en régime permanent. Plus particulièrement, on note que l'utilisation des faibles débits ou des faibles vitesses d'agitation assure un temps de passage élevé. Cependant, en augmentant une de ces deux variables, le temps de passage diminue avec une vitesse de variation décroissante. Puis, à partir d'une certaine valeur du débit ou de la vitesse d'agitation, l'effet de ces deux variables sur le temps de passage devient négligeable.

Ces résultats expérimentaux peuvent également être confirmés par une corrélation empirique. Si nous utilisons l'équation 3.18, le temps de passage peut être exprimé selon l'équation suivante :

$$\tau(s) = \frac{a1}{N} + \frac{b1}{Q} \quad (3.26)$$

L'évolution du temps de passage en fonction des variables Q et N est présentée sur le graphe de la figure 3.20 selon cette précédente équation.

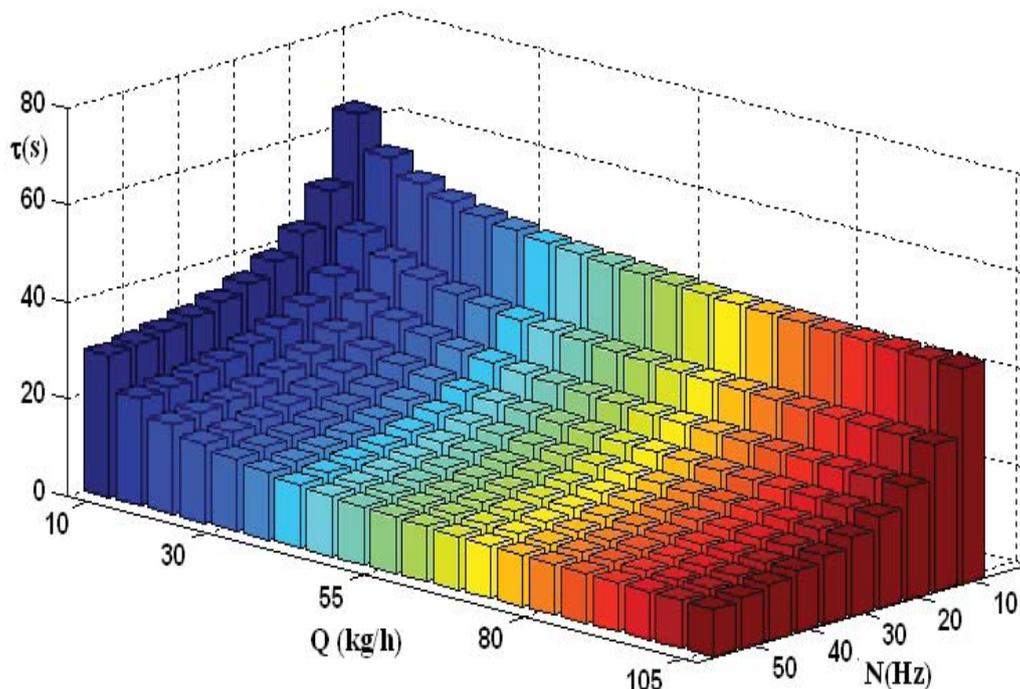


FIGURE 3.20 – Évolution du temps de passage en fonction de Q et de N

D'après cette représentation graphique, on peut facilement voir qu'à partir d'un certain débit ou d'une certaine vitesse d'agitation la variation du temps de passage devient très faible. Ceci peut être consolidé par le calcul des dérivées partielles du temps de passage par rapport aux deux paramètres Q et N :

$$\frac{\delta\tau}{\delta N} = \frac{-a1}{N^2} \quad \text{et} \quad \frac{\delta\tau}{\delta Q} = \frac{-b1}{Q^2} \quad (3.27)$$

La figure 3.21 montre l'évolution de ces deux dérivées partielles ; ces résultats permettent de conclure qu'à partir d'une vitesse d'environ 30 Hz, le temps de passage devient presque insensible à la variation de la vitesse d'agitation. La même conclusion peut être confirmée pour l'effet du débit : à partir d'environ 40 kg/h la temps de passage devient quasi constant. Cependant, même si cette variation du temps de passage est faible (à grande vitesse et à grand débit), une certaine précaution doit être prise, car le temps de passage ne doit pas diminuer en dessous du temps nécessaire pour que le mélange réalisé soit homogène.

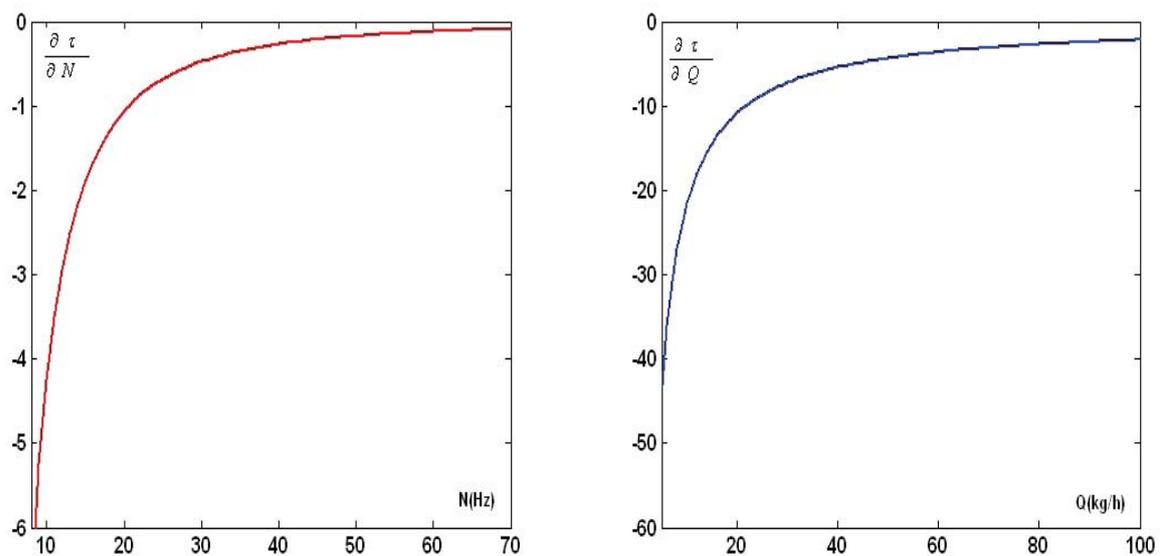


FIGURE 3.21 – Dérivées partielles du temps de passage par rapport aux variables Q et N

### 3.3 Analyse de l'écoulement à une échelle moindre

Après avoir étudié l'effet de l'agitation sur la dynamique de l'écoulement à une échelle macroscopique, nous nous intéressons dans cette partie à l'évolution du système à une échelle plus petite. Nous discrétisons, d'une manière arbitraire, le mélangeur en plusieurs

cellules en série. L'objectif est de mieux appréhender l'effet de l'agitation sur la dynamique du mouvement des poudres à l'intérieur du mélangeur, dans une perspective de développement d'un modèle basé sur la discrétisation de ce système.

### 3.3.1 Répartition internes des masses retenues

Dans cette partie nous nous intéressons à la répartition des particules à l'intérieur du mélangeur durant la phase de démarrage et en régime permanent. Pour cela, la chambre de mélange est représentée par 5 zones en série (voir figure 3.22). Toutes ces cellules sont de volumes égaux (voir partie 2.3.2) La masse retenue dans chaque cellule  $i$  ( $Mc_i(t)$ ) est mesurée à différents temps d'opération.

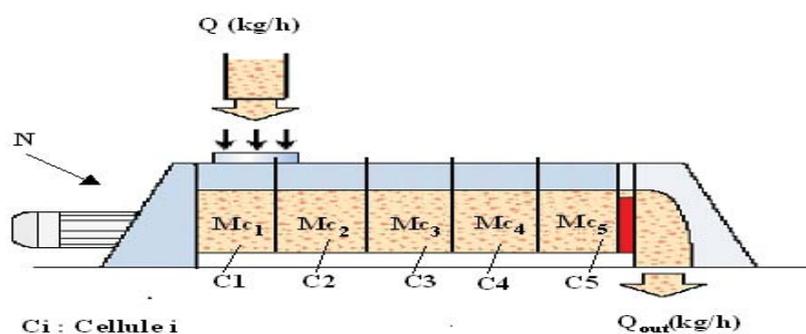


FIGURE 3.22 – Mélangeur divisé en 5 cellules de mêmes volumes

Les expériences ont été réalisées pour des particules de couscous moyen avec un débit d'alimentation de 40 kg/h, et pour différentes vitesses d'agitation. Sur la figure 3.23, nous présentons un exemple de résultat expérimental de l'évolution de la répartition interne des particules dans le mélangeur, ceci pendant la phase transitoire de démarrage et en régime permanent. Cet exemple montre que la distribution massique des particules dans le mélangeur n'est pas homogène. En particulier, nous remarquons que les quatre premières cellules se remplissent assez rapidement jusqu'à ce qu'elles atteignent un niveau stable qui est quasiment le même pour les trois premières, et légèrement supérieur dans la quatrième. La cinquième cellule n'arrive à un niveau de remplissage stable qu'une fois le régime permanent atteint ( $Q = Q_{out}$ ), soit après environ 60 secondes de démarrage, dans les conditions de cet exemple ( $Q = 40 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  et  $N = 30 \text{ Hz}$ ). Pendant ce temps, les particules s'accumulent dans cette dernière cellule ; et par conséquent, son niveau de remplissage devient très supérieur à celui des quatre précédentes. Ces résultats sont confirmés par d'autres expériences réalisées à différentes vitesses d'agitation (voir figure 3.24).

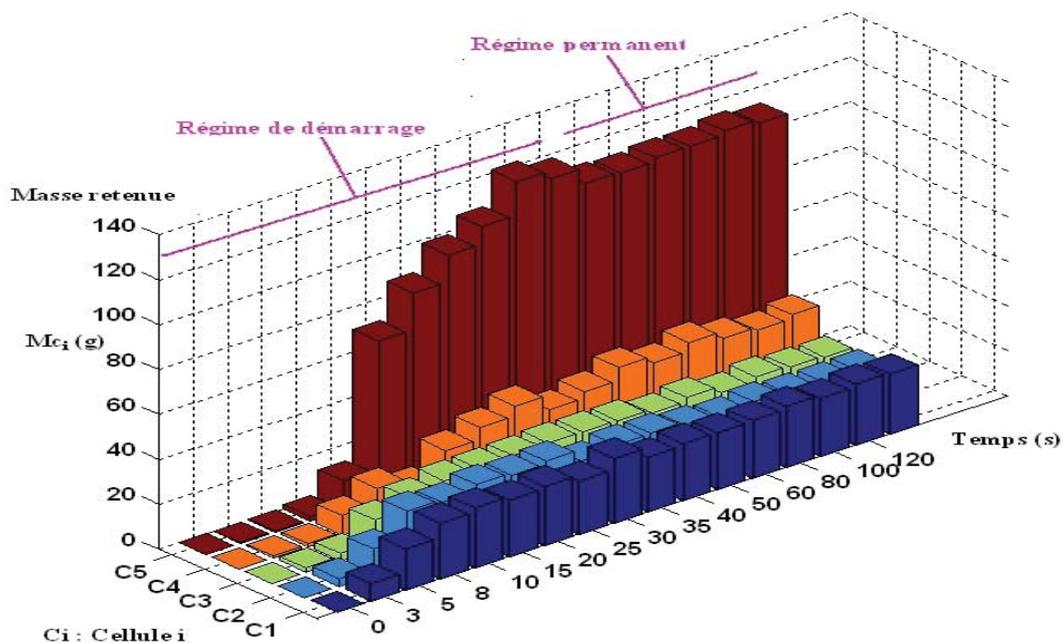


FIGURE 3.23 – Répartition des particules dans le mélangeur ( $Q = 40\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ ;  $N = 30\text{Hz}$ ; Incertitude :  $\pm 50\text{mg}$ )

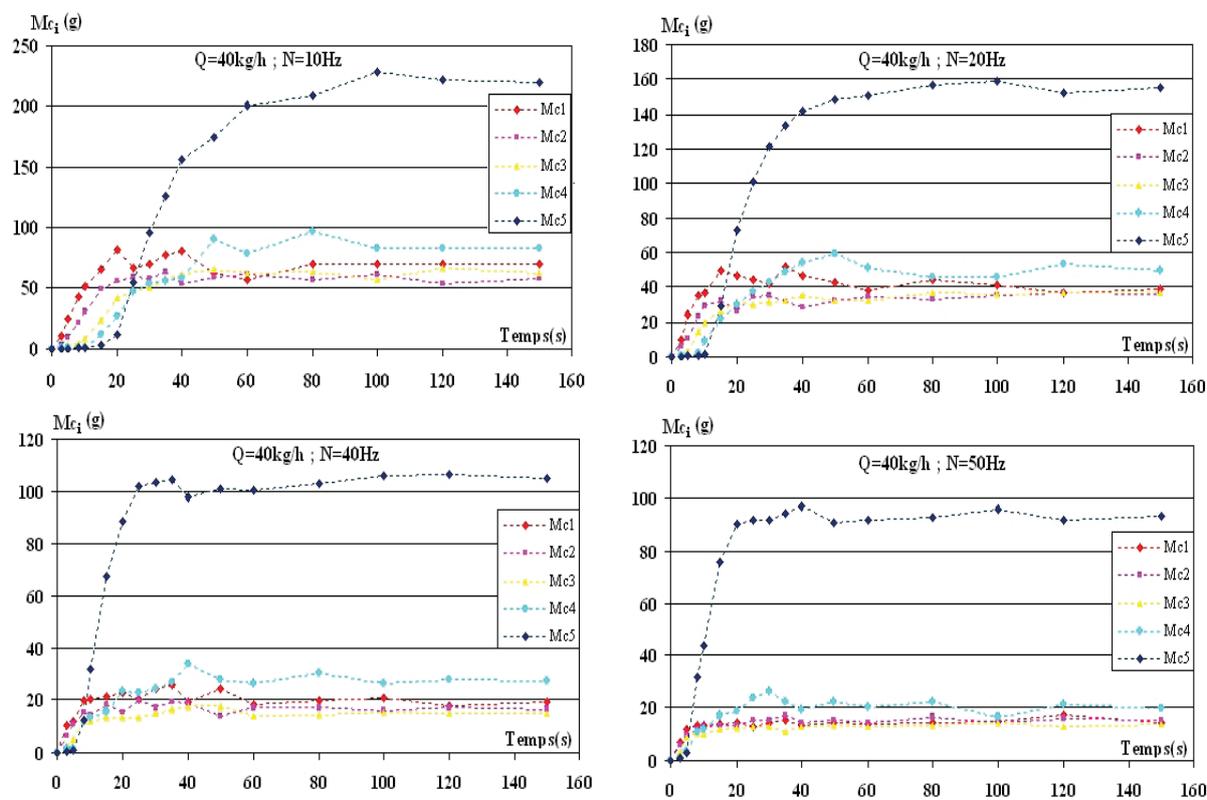


FIGURE 3.24 – Distribution des particules dans le mélangeur pour différentes vitesses  $N$  ( $Q = 40\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ ; Incertitude :  $\pm 50\text{mg}$ )

### 3.3.2 Nouvelles corrélations et cohérence des mesures

Dans cette partie nous cherchons à proposer une relation empirique permettant de déterminer les masses retenues en régime permanent dans les 5 cellules du mélangeur. Pour cela, nous présentons sur la figure 3.25, l'évolution expérimentale de ces masses retenues pour différentes vitesses d'agitation et pour un débit d'alimentation de 40 kg/h. La masse retenue en régime permanent dans une cellule  $i$  est appelé  $Mr_i$ .

Comme il est indiqué sur la figure 3.25, les résultats expérimentaux sont corrélés avec une équation empirique similaire à celle qui a été utilisée précédemment pour déterminer la masse retenue totale dans le mélangeur entier ( $Mr$ ) (équation 3.18).

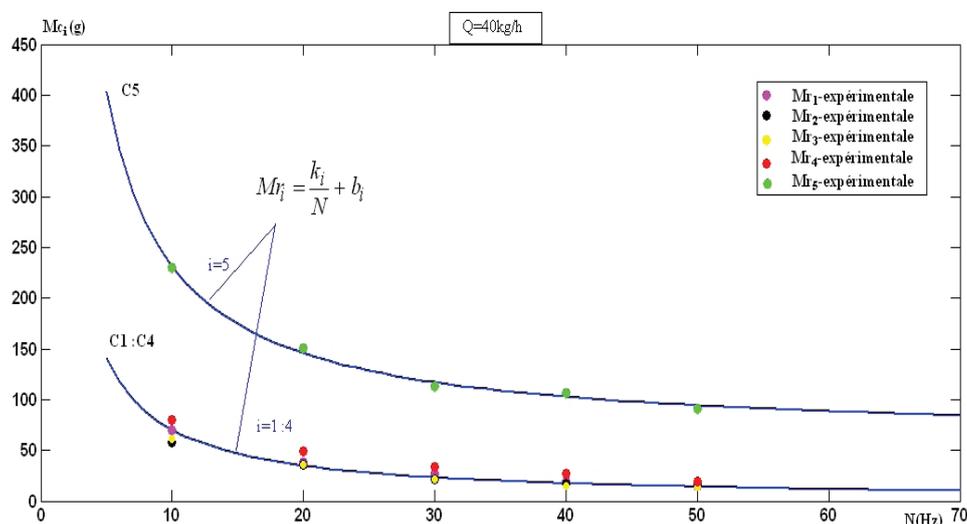


FIGURE 3.25 – Masses retenues dans les différentes cellules en régime permanent

Si nous négligeons la petite différence observée entre les masses retenues des quatre premières cellules, nous pouvons proposer une seule équation empirique (avec les mêmes coefficients  $k_i$  et  $b_i$ ) permettant de déterminer les masses retenues dans ces quatre cellules. Ainsi, nous obtenons par identification paramétrique pour les cellules de 1 à 4 :

$$i = 1 : 4 \quad Mr_i = \frac{k_i}{N} \quad (3.28)$$

avec  $k_i(\text{g/s}) = 703 \pm 40$  (intervalle de confiance à 95%) et  $b_i = 0$  (pour  $Q=40\text{kg/h}$ ).

Pour la cellule 5, nous considérons :

$$Mr_5 = \frac{k_5}{N} + b_5 \quad (3.29)$$

Les paramètres de cette équation sont identifiés à partir des résultats expérimentaux :

$$k_5(g/s) = 1714 \pm 130 ; b_5(g) = 60 \pm 4 ; (\text{pour } Q=40\text{kg/h})$$

Par ailleurs, l'utilisation de ces deux équations (3.28 et 3.29) permet d'exprimer la masse retenue totale dans le mélangeur  $M_r$  qui est la somme des masses retenues dans les cinq cellules :

$$M_r = \sum_{i=1}^5 (M_{c_i}) = \frac{4 * k_1 + k_5}{N} + b_5 \quad (3.30)$$

La comparaison entre cette équation (3.30) et celle proposée précédemment (3.18) pour décrire la masse retenue totale dans le mélangeur permet de confirmer la validité de la démarche.

$$M_r = \frac{a_1 * Q}{N} + b_1 = \sum_{i=1}^5 (M_{c_i}) = \frac{4 * k_1 + k_5}{N} + b_5$$

Sachant que  $b_5 = b_1 = 60\text{g}$ , il suffit alors de comparer les deux membres de l'équation 3.31, comme illustré sur la figure 3.26.

$$a_1 * \frac{Q}{N} = \frac{4 * k_1 + k_5}{N} \quad (3.31)$$

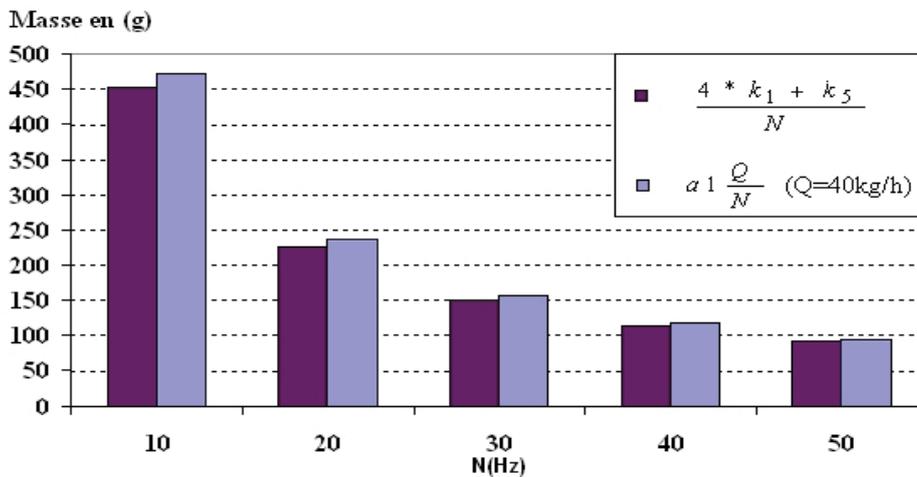


FIGURE 3.26 – Comparaison entre équations : 3.18 et 3.30

### 3.3.3 Détermination des débits internes

A l'issue de l'étude expérimentale précédente concernant la distribution massique des particules dans le mélangeur, on peut aisément déterminer l'évolution des débits internes  $Q_{out_i}$  des particules allant d'une cellule  $i$  à la cellule suivante, ceci en utilisant l'équation 2.5 :

$$Q_{out_i}(t) * \Delta t = \sum_{j=i+1}^6 M_{c_j}(t + \Delta t) - \sum_{j=i+1}^6 M_{c_j}(t)$$

Sur la figure 3.27, nous présentons quelques exemples de l'évolution expérimentale de ces débits pour différentes vitesses d'agitation, soit pendant le régime de démarrage du procédé, soit en régime permanent.

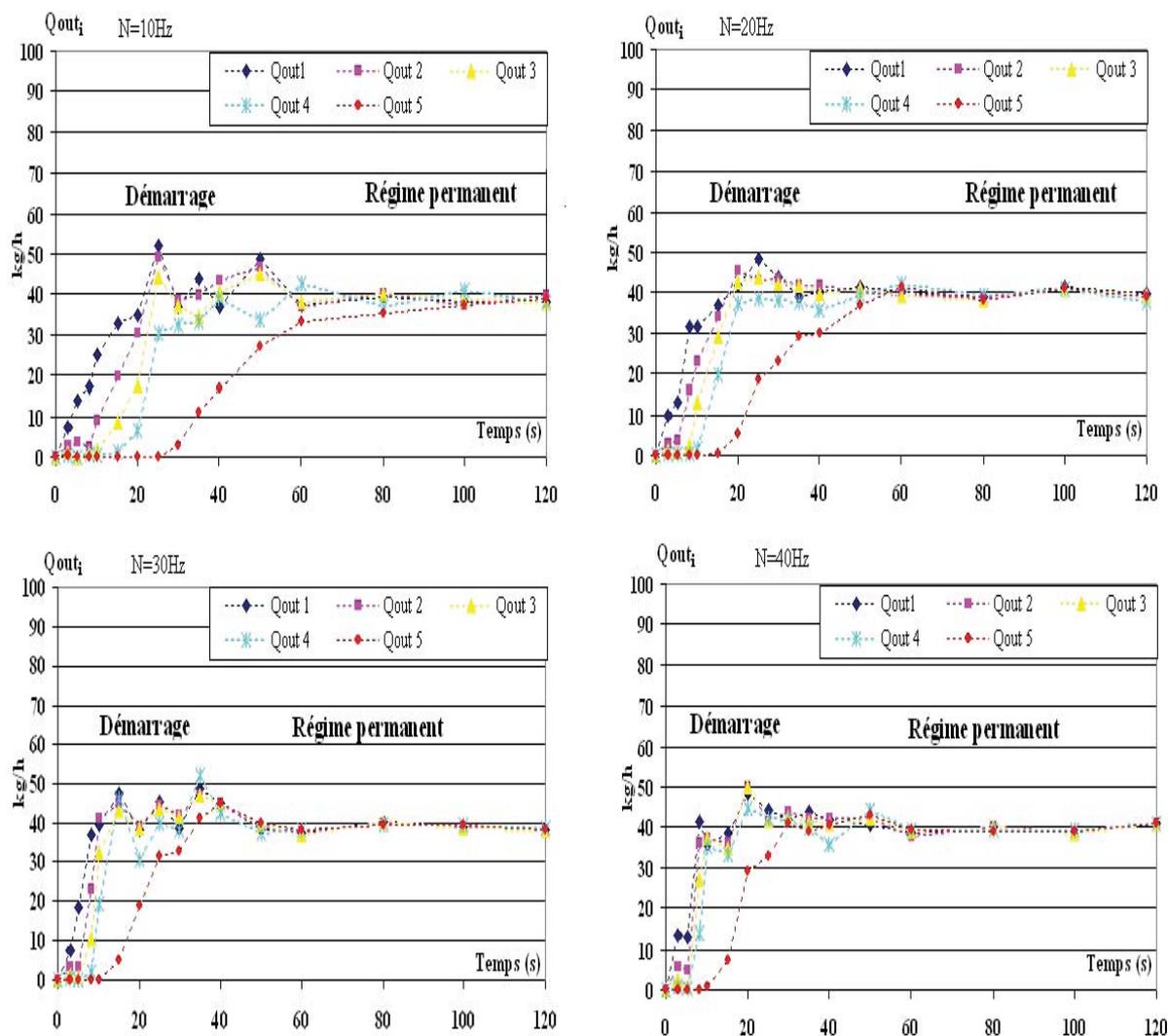


FIGURE 3.27 – Débits internes  $Q_{out_i}$  ( $i = 1 : 5$ )

D'après ces résultats, on constate que ces débits intermédiaires augmentent progressivement l'un après l'autre jusqu'à ce qu'ils atteignent en régime permanent un débit équivalent à celui de l'alimentation ( $Q_{out}=Q=40\text{kg/h}$ ). On note également que, par opposition aux quatre premières cellules, le débit sortant de la 5ème, et qui représente aussi le débit sortant du mélangeur, ne croît qu'une fois que la masse retenue dans cette cellule est supérieure à une certaine masse minimale.

Ce constat peut être consolidé par une représentation graphique de l'évolution de ces débits ( $Q_{out_i}$ ) en fonction des masses retenues ( $Mc_i$ ), comme illustré sur la figure 3.28. Sachant que les quatre premières cellules ont une phase de démarrage similaire, nous présentons dans ce graphe uniquement la cellule 1 et la cellule 5, les autres cellules sont présentées en annexe 5.

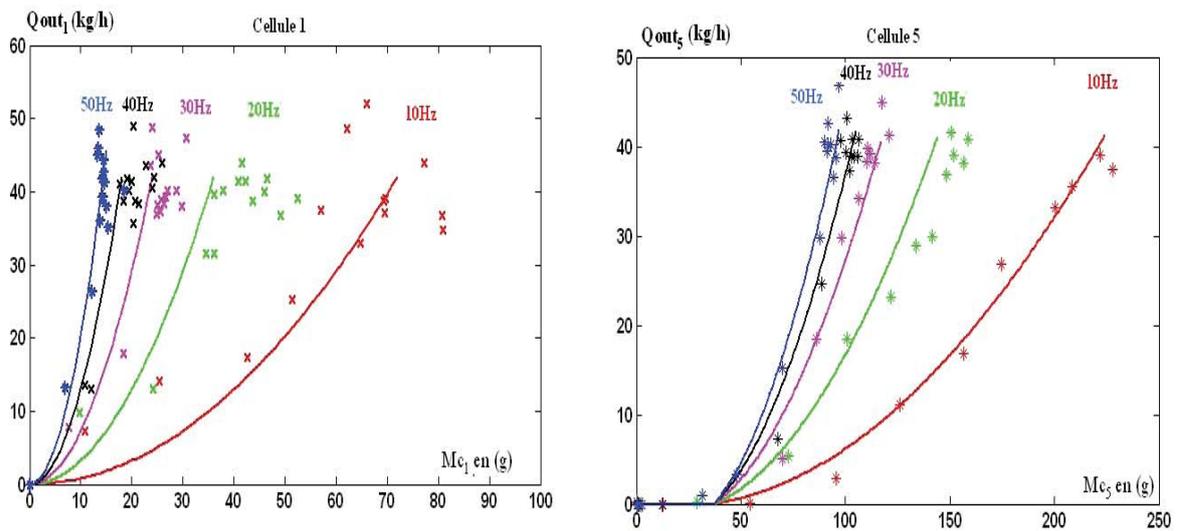


FIGURE 3.28 – Débits internes  $Q_{out_i}$  en fonction des masses retenues  $Mc_i$

D'après l'ensemble des résultats obtenus, nous remarquons que pour les quatre premières cellules il n'existe pas de masse minimale nécessaire pour que les particules avancent à la cellule suivante. Seule la dernière cellule (5ème) nécessite une masse minimale d'environ 40g pour qu'elle commence à débiter à  $Q_{out_5}$ .

On note également que pendant la phase de démarrage le débit interne sortant d'une cellule  $i$  peut être représenté par un polynôme du second ordre (équation 3.32) similaire à celui obtenu auparavant pour relier le débit sortant du mélangeur à la masse retenue totale (équation 3.22) :

$$Q_{out}(n) = a * Mc_i^2 + b * Mc_i + c \quad (3.32)$$

(a, b et c sont des constantes).

Cette expression proposée pour corréliser les débits internes sera développée d'avantage dans la partie (3.5.2).

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats expérimentaux portant sur la dynamique du système poudre-mélangeur continu lorsque celui-ci opère en régimes permanent et transitoire, comme la vidange, le démarrage ou la variation (brusque) de la vitesse du mobile d'agitation.

Notre analyse est présentée sous la forme de relations empiriques entre le débit de sortie et la masse retenue dans l'appareil durant ces différentes phases. En particulier, nous avons constaté l'existence de deux masses retenues limites (masse seuil et masse minimale) qui permettent de définir trois régimes d'écoulement.

En vidange de mélangeur, tant que la masse retenue est supérieure à une valeur seuil, le débit de sortie diminue avec la masse retenue selon une fonction linéaire. Si cette masse est inférieure à une valeur minimale, il n'y a pas d'écoulement en dehors du mélangeur. Entre ces deux comportements limites, le débit de sortie dépend de la masse retenue selon un polynôme de seconde ordre.

Le même type de résultat est obtenu en démarrage de l'installation. Lorsque la masse retenue atteint une valeur seuil  $M_r$ , l'écoulement est établi en régime permanent. Cependant, si la masse retenue est inférieure à la valeur seuil  $M_r$ , l'écoulement se fait en régime transitoire, correspondant à un démarrage du pilote ou un changement de variable opératoire. Dans ce cas, le débit de sortie est décrit en fonction de la masse retenue par un polynôme de seconde ordre. En dessous d'une masse minimale, les mouvements des particules sont limités à l'intérieur du mélangeur, et aucune particule ne parvient à quitter l'appareil ( $Q_{out}=0$ ).

Pour le produit étudié, toutes les grandeurs introduites sont reliées à la vitesse de rotation du mobile d'agitation et au débit d'alimentation par des corrélations simples permettant de prédire les limites des régimes de vidange et de démarrage, comme illustré sur le tableau 3.1.

TABLE 3.1 – Limites des régimes de vidange et de démarrage pour le produit étudié (couscous moyen)

Masse limite	Vidange	Démarrage
$M_{min} \text{ en (g)}$	$M_{min} = kv_2 * N^\alpha$	$M_{min} = \frac{k1*Q+k2}{N}$
$M_{seuil} \text{ en (g)}$	$M_{seuil} = \frac{kv_3+kv_1*kv_2*N^\alpha}{kv_1}$	$Mr = a1 * \frac{Q}{N} + b1$
Constantes	$kv_1 = 2,17 * 10^{-5} g^{-1}$ $kv_2 = 338,24 * 10^{-5} g.s^{-0,5}$ $kv_3 = 2,1 * 10^{-3}$ $\alpha = -0,5$	$k1 = 165$ $k2 = 978 g.s^{-1}$ $a1 = 425$ $b1 = 60 g$

Lors de ce chapitre, et en parallèle de cette étude macroscopique, une étude à une échelle plus petite a été menée, ceci en s'intéressant à la distribution des particules à l'intérieur du mélangeur et aux débits internes. Les résultats obtenus ont servi à décrire l'écoulement interne des particules, et à démontrer la cohérence des mesures réalisées par les deux méthodes, macroscopique et "mésoscopique".

Finalement, ayant acquis des informations expérimentales sur l'agitation, il reste à développer un modèle capable de représenter cette dynamique en prenant en compte toutes les connaissances acquises dans ce chapitre. C'est cet aspect que nous développerons dans le chapitre 4.

Lire  
la seconde partie  
de la thèse