



**HAL**  
open science

# Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes particulières en mélangeur Turbula® : application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites

Claire Mayer-Laigle

► **To cite this version:**

Claire Mayer-Laigle. Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes particulières en mélangeur Turbula® : application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2012. Français. NNT : 2012INPT0051 . tel-04243164

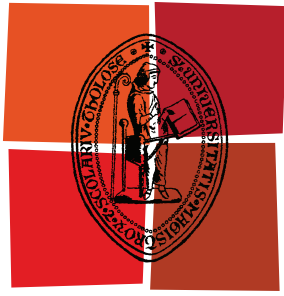
**HAL Id: tel-04243164**

**<https://theses.hal.science/tel-04243164>**

Submitted on 16 Oct 2023

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

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



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 :**

Claire Mayer-Laigle

**le :** lundi 2 juillet 2012

**Titre :**

Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes  
particulaires en mélangeur Turbula® :  
application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites

---

**Ecole doctorale :**

Mécanique, Énergétique, Génie civil et Procédés (MEGeP)

**Unité de recherche :**

RAPSODEE

**Directeur(s) de Thèse :**

Henri Berthiaux

**Rapporteurs :**

Guillaume Delaplace

Gérard Thomas

**Membre(s) du jury :**

Henri Berthiaux, professeur, EMAC ; Guillaume Delaplace, chargé de recherche, INRA  
Cendrine Gatamel, maître assistant, EMAC ; Alain Liné, professeur, INSA de Toulouse  
Thierry Ruiz, maître de conférence, Université de Montpellier 2  
Gérard Thomas, professeur émérite, LPMG ; Philippe Toneguzzo, Docteur, CEA



# Remerciements

Étrange... les remerciements sont bien souvent la dernière partie de la thèse que l'on écrit, alors que dès que j'ouvrais une thèse pour en tirer quelques précieuses informations c'était la première choses que je lisais ! J'avais ainsi l'impression de connaître un peu mieux le doctorant qui avait écrit ces lignes. Voici donc venu pour moi le moment de clore cette thèse en écrivant mes remerciements et de vous partager ce qu'ont été pour moi ces belles années passées au laboratoire RAPSODEE.

Réaliser une thèse était un projet qui me tenait à cœur depuis plusieurs années afin d'orienter ma carrière vers la recherche, mais j'ai mis bien du temps avant de décider enfin à me lancer. Je voudrais donc commencer par remercier Henri et Cendrine pour m'avoir fait confiance en m'offrant cette opportunité après un cursus peu ordinaire. Merci pour vos conseils qui se sont avérés bien souvent judicieux. Je garderai bien en mémoire nos nombreuses discussions lors de nos longues heures de voyages pour aller aux différentes réunions ANR aux quatre coins de la France. Merci aussi à Cendrine pour les heures passées à brasser ensemble du graphite ... et pour le ménage qui s'en suivait. Le laboratoire mélange gardera longtemps la trace de mon passage !

Merci également à l'ensemble des membres du Jury, à Mr Thomas, Mr Delaplace pour avoir accepté de rapporter ce travail, à Mr Liné pour la présidence de ce Jury, à Mr Toneguzzo et à Mr Ruiz. L'ensemble des discussions que nous avons pu avoir ont ouvert de nouvelles pistes de réflexion qui permettront de poursuivre ces travaux avec j'espère plusieurs d'entre vous.

Cette thèse n'aurait jamais pu voir le jour sans l'apport de l'ensemble des techniciens du laboratoire. Merci à vous pour votre disponibilité, votre patience et votre efficacité. Un merci plus particulier à toi, Laurent pour les réponses et solutions pratiques apportées à mes innombrables questions. Merci également à Séverine, Sylvie, Philippe, Bruno, Céline, Denis, Jean-Marie, Jean-Claude vous avez tous apporté une touche à ce travail. Merci

---

aussi pour tous les moments conviviaux passés ensemble à la salle café! Je ne pourrais également oublier les stagiaires qui sont venu me prêter main forte... Merci à vous Adrien, Ester, Mohammed (que je n'ai jamais connu, puisque tu as travaillé pendant mon congé maternité!), chacun de vous, à sa manière, à contribué, à ce travail.

Je souhaite également remercier l'ensemble des enseignants-chercheurs et professeurs du Laboratoire. Merci pour votre aide à la résolution de problèmes ponctuels rencontrés au cours de ma thèse, merci également de m'avoir fait découvrir le métier d'enseignant au travers des différents TD et TD que j'ai eu l'occasion d'encadrer. Merci pour vos conseils et pour tous les moments passés à discuter sur des sujets scientifiques ou non.

Une dédicace toute particulière pour mes collègues du Bureau OC03. J'ai nommé Audrey et Suenia. Que de bons moments passés ensemble, à faire avancer la science à coups de théorie plus ou moins douteuses, à partager des leçons de français et de portugais. Je n'oublie pas bien sûr, Claire (enfin l'autre Claire M.), Michelle, Marie, Jacqueline, Nayane qui savait si bien nous rejoindre pour partager ces moments avec nous, faire une pause café et refaire le monde! Merci pour votre présence et pour votre amitié et gardons en souvenirs les nombreuses soirées passées ensembles autour d'une raclette ou d'un barbecue. À bientôt sur Montpellier pour profiter de la mer et du soleil.

Je pense également aux doctorants arrivés plus récemment avec qui j'ai également partager de bons moments : William, Zoé, Anaïs, Graciella, Nibal, Tassadit... Une pensée toute spéciale pour les badistes (pour les non initiés comprendre joueurs de badminton) du lundi et jeudi midi : Audrey, Michelle, Marie, Renaud, Anaïs.

Enfin je ne peux conclure ce chapitre sans remercier ma famille. Merci à mes parents pour m'avoir accompagné dans mon parcours et encouragée dans mes études. Merci à mon mari pour sa présence et son soutien pendant ces 3 années, et un merci à mes filles, Lucie et Agathe d'avoir accepter (bon, pas toujours avec le sourire) que leur maman soit moins disponible ces 6 derniers mois. Et enfin merci à mes beaux-parents de m'avoir gardé mes deux "adorables" poupées pendant que je déballais les derniers cartons, corrigeais cette thèse et écrivais ces remerciements!

# Table des matières

<b>Préambule</b>	<b>1</b>
<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Synthèse bibliographique</b>	<b>11</b>
1.1 La caractérisation des poudres en vue de leur mélange . . . . .	12
1.1.1 Facteurs de premier ordre influençant l'écoulement : les propriétés intrinsèques aux poudres . . . . .	13
1.1.2 Facteurs de second ordre . . . . .	14
1.2 Les mécanismes responsables du mélange des poudres . . . . .	19
1.2.1 L'état de mélange . . . . .	19
1.2.2 Les mécanismes de mélange . . . . .	21
1.2.3 les mécanismes de ségrégation . . . . .	21
1.2.4 Éviter ou limiter la ségrégation . . . . .	23
1.3 Caractériser l'état d'un mélange . . . . .	25
1.3.1 Échelle d'observation . . . . .	26
1.3.2 Concepts et outils mathématiques pour l'étude de l'homogénéité des mélanges . . . . .	26
1.3.2.1 L'intensité de ségrégation . . . . .	27
1.3.2.2 Échelle de ségrégation . . . . .	28
1.3.3 La mise en place d'une procédure d'échantillonnage . . . . .	35
1.3.3.1 Nombre d'échantillons à analyser . . . . .	35
1.3.3.2 Méthode de prélèvement des échantillons . . . . .	38
1.3.4 Méthode d'analyse de la composition des échantillons . . . . .	41
1.3.4.1 Les méthodes spectroscopiques : . . . . .	42
1.3.4.2 Les méthodes par analyse d'images . . . . .	46
1.3.4.3 Les méthodes capacitives . . . . .	49
1.3.4.4 Les méthodes thermiques . . . . .	50

1.3.5	Critère d'acceptation de l'homogénéité d'un mélange . . . . .	53
1.4	L'étude de la dynamique de mélange . . . . .	54
1.4.1	Cinétique de mélange . . . . .	54
1.4.1.1	Modèle cinétique avec et sans ségrégation . . . . .	54
1.4.1.2	Exemples d'étude de cinétique de mélange pour des mélanges de poudre . . . . .	56
1.4.2	L'utilisation de l'échelle de ségrégation pour l'étude de la dynamique des mélanges . . . . .	62
1.4.3	La dynamique de mélange au sein d'un mélangeur à tambour rotatif . . . . .	63
1.4.3.1	Description qualitative des différents régimes d'écoulement . . . . .	63
1.4.3.2	Critères de transition entre les différents régimes . . . . .	66
1.5	L'analyse dimensionnelle . . . . .	68
1.5.1	Exemple d'application de l'analyse dimensionnelle pour des mélangeurs à tambour rotatif . . . . .	69
1.5.2	Exemple d'application pour un mélangeur convectif orbital à vis . . . . .	71
1.6	Changement d'échelle et similitudes . . . . .	71
1.6.1	Le principe des similitudes . . . . .	71
1.6.1.1	Similitude géométrique . . . . .	72
1.6.1.2	Similitude cinématique . . . . .	72
1.6.1.3	Similitude dynamique . . . . .	73
1.6.2	Exemple d'application . . . . .	74
1.6.3	Le changement d'échelle pour un mélangeur à tambour horizontal . . . . .	74
1.6.4	L'apport des simulations par la méthode des éléments discrets . . . . .	75
1.7	Conclusion . . . . .	79
<b>2</b>	<b>Matériels et méthodes . . . . .</b>	<b>81</b>
2.1	Systèmes particuliers . . . . .	81
2.1.1	Description des systèmes particuliers . . . . .	82
2.1.2	Distributions granulométriques . . . . .	82
2.1.3	Masses volumiques . . . . .	84
2.1.4	Morphologie . . . . .	85
2.1.5	Aptitude à l'écoulement . . . . .	89
2.1.6	Résumé des principales propriétés des systèmes particuliers . . . . .	92
2.2	Préparation et réalisation des mélanges . . . . .	93
2.2.1	Présentation du dispositif de mélange : le Turbula® . . . . .	93

2.2.2	Variables opératoires des mélangeurs Turbula® . . . . .	94
2.2.3	Préparation des produits et réalisation des mélanges . . . . .	95
2.3	Méthode d'analyse de la composition des mélanges . . . . .	97
2.3.1	Mélanges modèles . . . . .	98
2.3.2	Mélange composite . . . . .	104
2.3.2.1	Cahier des charges pour les plaques bipolaires composites	105
2.3.2.2	Transcription du cahier des charges en terme d'homogénéité de mélange . . . . .	105
2.3.2.3	Méthode d'analyse de la qualité du mélange composite . .	110
2.3.2.4	Procédure de prélèvement des échantillons . . . . .	112
2.3.3	Conclusion . . . . .	116
<b>3</b>	<b>Dynamique de mélange au sein du Turbula®</b>	<b>117</b>
3.1	Modélisation du mélangeur Turbula® . . . . .	118
3.1.1	Décomposition du mouvement du Turbula® . . . . .	118
3.1.2	Profils des vitesses et accélérations . . . . .	120
3.1.3	Tableaux récapitulatifs des vitesses et accélérations . . . . .	123
3.1.4	Forces responsables de l'état du mélange . . . . .	125
3.1.4.1	Mélange axial et mélange radial au sein de la cuve . . . . .	125
3.1.4.2	Définition de régimes d'écoulement au sein du Turbula® .	128
3.2	Dynamique de mélange pour les mélanges modèles . . . . .	130
3.2.1	Cinétique de mélange . . . . .	130
3.2.1.1	Reproductibilité des essais . . . . .	130
3.2.1.2	Cinétique en Turbula® T 2F . . . . .	133
3.2.1.3	Cinétique en Turbula® T 10B . . . . .	137
3.2.2	Utilisation de la fonction d'autocorrélation . . . . .	139
3.2.2.1	Étude des fonctions d'autocorrélation en T 2F . . . . .	139
3.2.3	Étude des fonctions d'autocorrélation en T 10B . . . . .	143
3.3	Dynamique de mélange pour les mélanges composites . . . . .	145
3.3.1	Cinétique en Turbula® T 2F . . . . .	145
3.3.2	Cinétique en Turbula® T 10 B . . . . .	149
3.3.3	La qualité des mélanges face aux critères industriels . . . . .	150
3.3.4	Conclusion . . . . .	152



<b>4</b>	<b>À la recherche de critères pour le changement d'échelle</b>	<b>155</b>
4.1	Similitudes géométriques . . . . .	155
4.2	Similitudes cinématiques et dynamiques . . . . .	158
4.2.1	Définition des critères cinématique et dynamique . . . . .	158
4.2.2	Comparaison des vitesses des mélangeurs selon les critères cinématique et dynamique . . . . .	161
4.2.2.1	Critère cinématique . . . . .	161
4.2.2.2	Critère dynamique . . . . .	162
4.2.3	Définition de points de fonctionnement cinématiques et dynamiques	164
4.3	Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs . . .	166
4.3.1	Mélange modèle 1 . . . . .	167
4.3.2	Mélange modèle 2 . . . . .	170
4.3.3	Mélange composite . . . . .	171
4.4	Conclusion . . . . .	176
<b>5</b>	<b>Détection de défauts au sein les plaques composites</b>	<b>179</b>
5.1	Rappel du contexte . . . . .	179
5.2	Principe de simulation d'objets 2D contenant des défauts . . . . .	180
5.2.1	Génération de plaques bipolaires composites . . . . .	180
5.2.2	Échantillonnage . . . . .	182
5.2.3	Détermination de l'intensité et de l'échelle de ségrégation . . . . .	183
5.3	Exemples de simulations . . . . .	186
5.3.1	Influence de la taille des échantillons . . . . .	186
5.3.2	Influence de la taille des défauts . . . . .	189
5.3.3	Influence du nombre de défauts . . . . .	190
5.4	Quelques pistes pour l'application à un cas réel . . . . .	191
5.5	Conclusion . . . . .	192
<b>Conclusion générale</b>		<b>195</b>
<b>Annexes</b>		<b>199</b>
<b>A</b>	<b>Introduction au fonctionnement des piles à combustible</b>	<b>199</b>
A.1	Les différents types de pile à combustibles . . . . .	199
A.2	Réactions d'oxydoréduction . . . . .	200
A.3	Production du dihydrogène . . . . .	202

## TABLE DES MATIÈRES

---

A.4 Les plaques bipolaires au sein d'une pile à combustible . . . . .	203
B Aide à la décision pour le choix d'un mélangeur	205
C Distributions granulométriques des constituants des systèmes particuliers	209
D Caractéristiques de la caméra linéaire utilisée	211
E Résultats DSC obtenus lors de la polymérisation de la matrice époxy	213
F Dimensions des éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs	215
Bibliographie	217
Liste des figures	225
Liste des tableaux	227
Liste des symboles	229
Résumé	233
Abstract	235



# Préambule

L'élévation des coûts du pétrole et la volonté d'adopter un modèle de développement durable nous conduisent aujourd'hui à repenser notre approvisionnement énergétique. De nombreux efforts ont été réalisés dans ce sens pour développer des énergies alternatives et des moyens de les stocker. Les piles à combustible en sont un exemple.

Le principe d'une pile à combustible (PAC) repose sur la transformation de l'énergie chimique en énergie électrique par le biais de réactions d'oxydo-réduction comme illustré sur le document didactique de la figure 1 à destination des jeunes réalisé par le CEA.

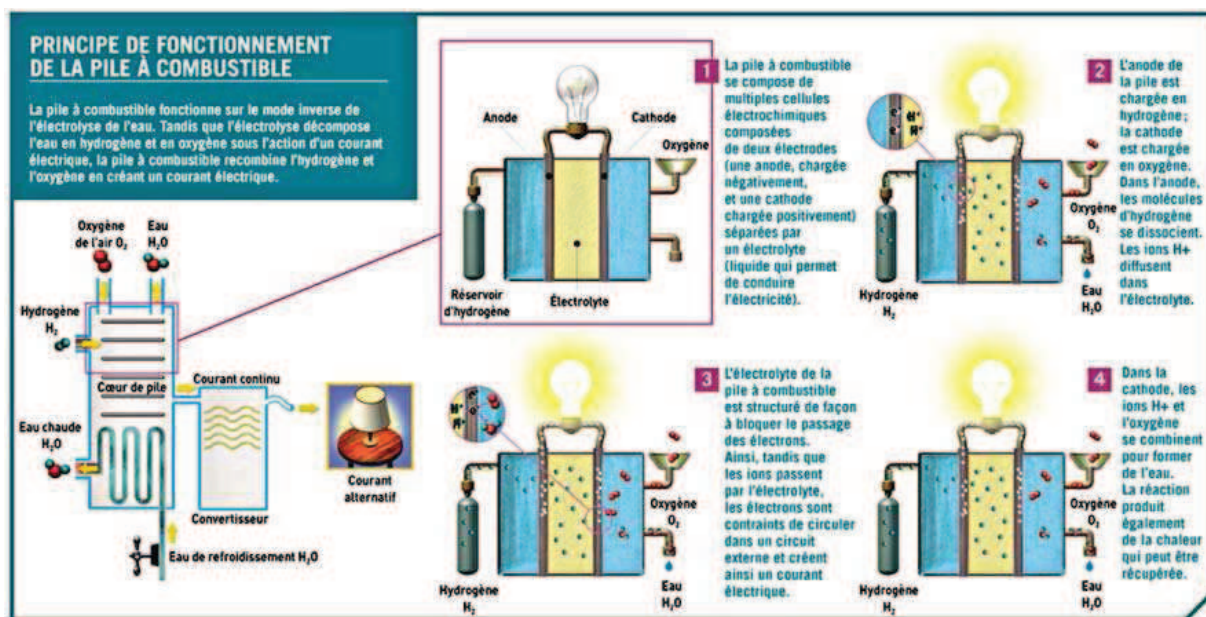


FIGURE 1 – Document didactique du CEA, à l'attention des jeunes pour expliquer le fonctionnement d'une pile à combustible.

Le cœur d'une pile à combustible est constitué d'un empilement de cellules électrochimiques élémentaires (figure 2). L'interface et la jonction entre chacune de ces cellules et

le système sont réalisés par des plaques bipolaires. D'une épaisseur variant entre 3 mm et 10 mm suivant les puissances fournies, les plaques bipolaires ont pour rôle de garantir une bonne tenue mécanique, la séparation des réactions, l'arrivée et la répartition des gaz entrants et les liaisons électriques avec le circuit extérieur. Elles doivent également permettre l'évacuation de l'eau, des gaz non consommés et de la chaleur produite lors de la réaction. Ces plaques doivent donc répondre à un cahier des charges très précis en termes de résistance mécanique, de conductivité électrique et thermique.

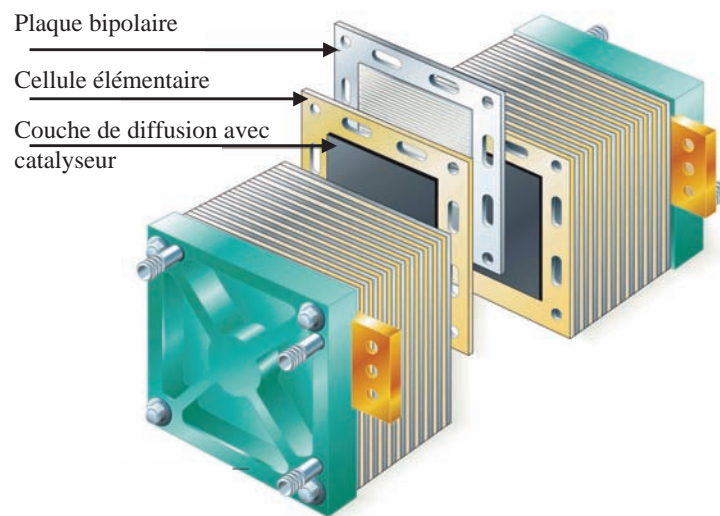


FIGURE 2 – Représentation schématique du cœur d'une pile à combustible d'après Ticona (2010).

Les piles à combustible permettent le stockage d'énergie via le vecteur hydrogène. Associées à une production d'énergie propre (énergie solaire ou éolienne), elles pourraient engendrer d'importantes améliorations en matière d'efficacité électrique, d'émissions de gaz à effet de serre, de pollution urbaine et de qualité de vie. Pour plus d'information sur le fonctionnement d'une pile à combustible, le lecteur pourra se référer à l'annexe A (page 199).

Pour que les PAC puissent concurrencer les technologies actuelles, il est encore nécessaire aujourd'hui d'améliorer la qualité des composants qui les constituent, ainsi que leurs coûts de production. Ceci exige le développement de procédés spécifiques permettant la fabrication de nouveaux matériaux. Parmi l'ensemble des constituants d'une PAC, les plaques bipolaires, dont le coût peut représenter jusqu'à 60% du coût global des prototypes existants, constituent l'une des principales sources d'optimisation potentielles.

C'est dans ce contexte que le projet MaSCoTe (Matériau Solide Conducteur Thermodurcissable, application aux plaques bipolaires pour pile à combustible) subventionné par l'ANR (Agence Nationale de la Recherche) a vu le jour. Son objectif est de concevoir et de caractériser de nouvelles plaques bipolaires composites, à base d'un liant polymère thermodurcissable (matrice) et de charges de graphite.

Le projet, coordonné par le CEA-le Ripault repose essentiellement sur le développement d'un procédé industriel innovant de fabrication de plaques bipolaires composites. Son originalité réside à la fois dans la formulation du matériau composite et dans le procédé lui-même, basé sur un mélange des poudres de la matrice avec les charges réalisé à sec, c'est à dire sans fusion préalable du polymère, suivi d'une étape d'injection/moulage.

La figure 3 présente le procédé tel qu'il était envisagé au début du projet. Les étapes de broyage et de tamisage de la résine permettent d'obtenir une granulométrie reproductible. Celle-ci est ensuite mélangée à sec avec un durcisseur, un catalyseur et des charges de graphite. Le mélange obtenu est ensuite injecté et moulé pour obtenir les plaques bipolaires. La polymérisation a lieu durant l'étape de moulage.

Le procédé de fabrication et la nature du matériau composite formé devraient permettre une réduction importantes des coûts de production et une amélioration des performances des plaques bipolaires produites.

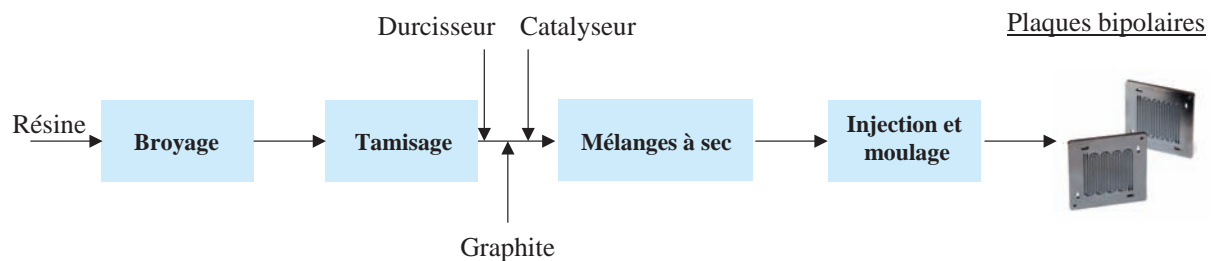


FIGURE 3 – Procédé de fabrication des plaques bipolaires envisagé dans le cadre du projet MaSCoTe.

Le projet MaSCoTe regroupe 7 partenaires d'horizons différents et associe ainsi les compétences de la recherche et de l'industrie (CEA le Ripault, INSA de Lyon-CNRS, RAPSODEE-CNRS, RAIGI, BILLION, HELION et TIMCAL Ltd.). Ce partenariat a

été choisi de manière à couvrir, par la diversité et la complémentarité des compétences mises en jeu, toute la chaîne de développement depuis la connaissance détaillée du cahier des charges industriel, le choix des matériaux, la conception et l'étude des différentes étapes du procédé en passant par la fabrication et la qualification des plaques jusqu'à leur validation sur bancs dans des conditions représentatives des conditions réelles.

Les conditions optimales pour le mélange à sec des différents constituants et la transposition des résultats obtenus de l'échelle laboratoire à l'échelle industrielle ont été étudiés, au sein du laboratoire RAPSODEE, dans le cadre de cette thèse et sont présentés dans ce manuscrit.

# Introduction générale

Les industries des secteurs agroalimentaire, pharmaceutique ou cosmétique utilisent des matières premières sous forme granulaires ou pulvérulentes dans leurs procédés de fabrication. Ces procédés incluent très souvent d'ailleurs une étape de mélange ou de prémélange de poudre. Il s'agit d'une opération clé au sein du procédé car la qualité du produit final est intimement liée à celle du mélange obtenu.

Pour répondre aux besoins de ces industries, le génie des procédés se doit aujourd'hui :

- de proposer des critères et des moyens permettant de définir et mesurer l'homogénéité des mélanges obtenus,
- de développer de nouvelles technologies, de modéliser, simuler et caractériser les différents équipements de mélange existants afin d'orienter les industriels vers la technologie la plus adaptée à leurs besoins,
- de définir des lois d'extrapolation permettant de passer de la "paillasse" à l'échelle industrielle en conservant une qualité de produit identique et en minimisant les coûts associés.

Dans les temps anciens, le mélange de solides divisés était réalisé de manière intuitive par l'homme, en utilisant ses mains comme premiers outils, puis des cuillères dans des creusets. L'augmentation des volumes à traiter nécessita le développement de dispositifs spécifiques. Ceux-ci ont d'abord été conçus sans réelle considération physique si ce ne sont les calculs géométriques pour donner le volume spécifique à la cuve et l'énergie nécessaire au système. Les premières observations ont alors mis en évidence que pour recréer une efficacité similaire à celle du mélange manuel, il était essentiel d'avoir un dispositif favorisant des mouvements aléatoires de particules, comme lorsque les mains plongeaient dans la farine pour la mélanger.

Aujourd'hui, les avancées technologiques ont permis le design de nombreux dispositifs pour la réalisation des mélanges de poudre. Parmi les plus répandus dans l'industrie, nous



pouvons citer :

- **Les mélangeurs à cuve tournante** dans lesquels une cuve est mise en rotation par un système d'entraînement. La figure 4 présente quelques équipements industriels.

Les mélangeurs à tambour rotatif consistent en un simple cylindre tournant autour de son axe (figure 4-a). Ils permettent de traiter des volumes de poudres importants pour des temps d'opération relativement courts (3 à 5 min). Leur défaut principal est la lenteur du mélange longitudinal (Lan, 1983). Toutefois, il est toujours possible d'ajouter des chicanes ou d'incliner l'axe de rotation pour favoriser le mélange dans cette direction.

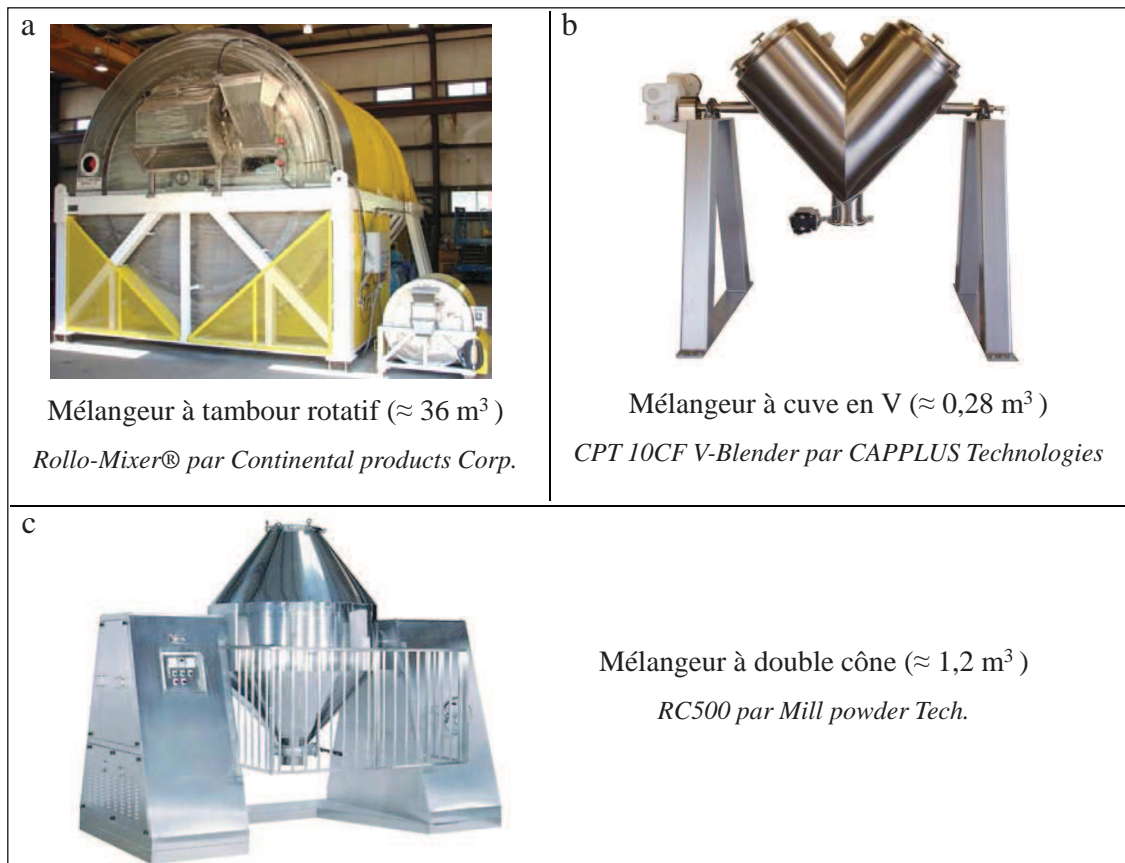


FIGURE 4 – Mélangeurs à cuve tournante de type industriel : mélangeur à tambour rotatif (a), mélangeur à cuve en V (b), mélangeur à double cône (c).

Lorsque les volumes de poudre à traiter ne sont pas trop importants, on pourra également s'orienter vers des mélangeurs à double cône (figure 4-c). Dans cet équipement la cuve est constituée de deux cônes reliés à leurs bases par une zone cylindrique. Lors de

l'opération de mélange, les poudres rencontrent des sections de passage variable ce qui conduit à une meilleure répartition axiale que dans le mélangeur à tambour rotatif.

Les mélangeurs à cuve en V sont eux sont plutôt réservés pour le mélange de produits friables. En effet la possibilité d'utiliser des vitesses de rotation plus faibles permet d'homogénéiser les poudres en limitant l'attrition (figure 4-b).

• **Les mélangeurs convectifs** sont constitués d'une cuve fixe, au sein de laquelle un mobile assure le mouvement de groupes de particules d'un point à l'autre de la cuve de mélange. Il existe un grand nombre de mélangeurs convectifs. Ils sont souvent distingués en fonction de la forme du mobile d'agitation, qui conduit à des mécanismes de mélange parfois très différents.

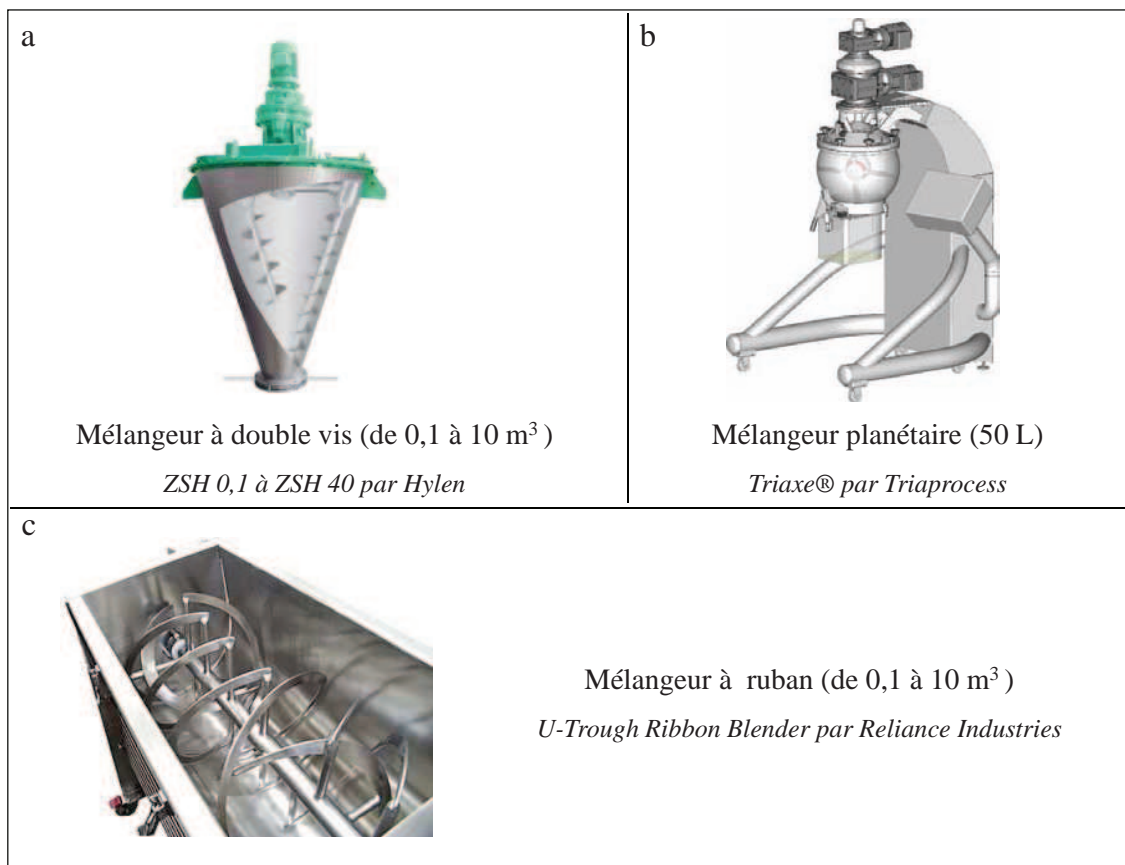


FIGURE 5 – Mélangeurs convectifs : mélangeur orbital à double vis (a), mélangeur planétaire Triaxe® (b), mélangeur à rubans hélicoïdaux (c).

Dans les mélangeurs à pales ou à rubans, un système d'agitation constitué d'éléments fixes sur un arbre moteur assure à la fois un mouvement de poussée axiale et une disper-

sion radiale des produits (figure 5-c).

Au sein des mélangeurs à vis verticale ou inclinée, une vis sans fin plonge dans la partie supérieure de la cuve du mélange de forme conique ou cylindrique. Le mouvement des particules s'effectue du bas vers le haut mais de manière plus ou moins complexe, selon la position de la vis (figure 5-a).

Les mélangeurs planétaires sont des dispositifs susceptibles de conduire à une très bonne homogénéité, de par la forme de la cuve et le mouvement du mobile qui permettent le déplacement des produits situés en tout point de la cuve. La figure 5-b présente un mélangeur planétaire utilisé notamment pour les mélanges de poudres : le Triaxe<sup>®</sup>. La cuve du mélangeur est sphérique et le mouvement des pales est piloté par deux moteurs d'agitation, l'un commandant la rotation et l'autre la giration.

Il existe également d'autres dispositifs, nous pouvons citer les mélangeurs à haut cisaillement, mélangeurs convectifs dont les vitesses de rotation particulièrement élevées permettent de briser les amas présent dans des poudres fortement cohésives, ou encore les mélangeurs statiques dont le principe repose sur l'utilisation de l'écoulement des solides à travers un dispositif fixe pour effectuer le mélange des flux (voir annexe B page 205).

L'efficacité de ces différents mélangeurs est très variable et liée à la forme de la cuve, à la nature du système d'entraînement mais surtout aux caractéristiques des poudres et à leur coulabilité. Certaines poudres nécessiteront l'apport d'une énergie importante pour être mise en mouvement, pour d'autres il faudra plutôt chercher à limiter au maximum les effets cycliques, pour éviter les phénomènes de dé mélange.

Une bonne connaissance du mouvement des poudres au sein des dispositifs de mélange apporte des éléments de réponse à la question cruciale du choix du mélangeur et de l'optimisation des paramètres du procédé. Du fait de la diversité et de la complexité des milieux granulaires, ce choix et cette optimisation ne peuvent être déconnectés d'un travail expérimental souvent réalisé à l'échelle du laboratoire pour des raisons de coût et de consommation de matières premières.

L'enjeu principal réside alors dans la transposition des résultats expérimentaux à ceux pouvant être obtenus aux échelles pilotes et industrielles. Aujourd'hui, cette extrapolation, propre à un équipement particulier, reste encore très empirique. En effet au contraire de l'agitation des fluides, il est difficile d'identifier les grandeurs qui permettent de caractériser une poudre et d'en prédire le comportement au sein d'un mélange. La définition

de critères fiables pour extrapoler les mélangeurs reste donc un défi pour les années futures.

Le mélangeur Turbula<sup>®</sup>, faisant l'objet de cette thèse, peut être considéré comme un mélangeur à tambour. Cependant, l'originalité de son système d'entraînement engendre un mouvement tridimensionnel qui se rapproche d'un mouvement chaotique, recréant ainsi des conditions de mélange proches de celles d'un mélange manuel. Bien que largement utilisé à l'échelle laboratoire et à l'échelle industrielle, son mécanisme reste encore très peu étudié.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet ANR MaSCoTe décrit en préambule et dans la continuité des travaux réalisés par l'équipe mélange au sein du laboratoire, plus particulièrement ceux portant sur l'étude de différents type de mélangeurs (mélangeur Triaxe<sup>®</sup>, mélangeur continu Gericke<sup>®</sup>).

Dans un premier chapitre, nous résumerons les principales notions présentes dans la littérature concernant le mélange des poudres, en particulier les propriétés des poudres influençant les mécanismes de mélange, les outils mathématiques et les techniques d'analyse permettant de quantifier l'état d'un mélange et les connaissances actuelles pour l'extrapolation des mélangeurs de poudres.

Le second chapitre aura pour but de caractériser les systèmes particuliers utilisés et de décrire brièvement le mélangeur Turbula<sup>®</sup>. La démarche expérimentale pour évaluer la qualité des mélanges sera également présentée dans ce chapitre.

Les chapitre 3 et 4 seront consacrés à une étude détaillée de la dynamique de mélange au sein du Turbula<sup>®</sup> et aux effets du changement d'échelle sur la qualité de mélange en s'appuyant à la fois sur une modélisation Solidworks<sup>®</sup> des mélangeurs Turbula<sup>®</sup> et sur les résultats expérimentaux.

Enfin dans le chapitre 5, nous développerons une méthodologie pour détecter des défauts au sein d'un mélange ou d'un produit manufacturé en s'appuyant sur des outils statistiques utilisés pour évaluer la qualité d'un mélange de poudre. Notre objectif étant ensuite d'appliquer cette méthodologie aux plaques bipolaire composites fabriquées dans le cadre du projet MaSCoTE.



# Chapitre 1

## Synthèse bibliographique

### Description du contenu

---

1.1	La caractérisation des poudres en vue de leur mélange . . . . .	12
1.2	Les mécanismes responsables du mélange des poudres . . . . .	19
1.3	Caractériser l'état d'un mélange . . . . .	25
1.4	L'étude de la dynamique de mélange . . . . .	54
1.5	L'analyse dimensionnelle . . . . .	68
1.6	Changement d'échelle et similitudes . . . . .	71
1.7	Conclusion . . . . .	79

---

Une poudre est constituée d'un ensemble de particules, c'est à dire de fragments de matière solide dont les tailles sont généralement inférieures à 1 mm. Cette première définition restitue une image macroscopique de la poudre. Pour être plus exact, il faudrait également considérer l'air entre les particules et éventuellement les liquides qui s'y trouvent (par exemple : de l'eau adsorbée à la surface des particules). De ce fait, comme le soulignent Melcion and Ilari (2003), toute poudre est avant tout hétérogène puisqu'elle est constituée d'un mélange de particules solides, de liquide et de gaz.

Industriellement, lors de nombreuses étapes de procédé, les solides divisés sont manipulés, transportés ou stockés. La coulabilité des poudres a alors une influence directe sur les performances du procédé et joue un rôle dans la qualité du produit final.

La coulabilité d'une poudre se définit par son aptitude à s'écouler librement de manière régulière et constante sous forme de particules individuelles (Saleh and Guigon, 2009).

Ceci est particulièrement vrai lors d'une opération de mélange où l'homogénéité obtenue est fonction aussi bien de l'impulsion mécanique conférée par le mélangeur à la poudre que de ses propriétés d'écoulement, elles-même dépendantes de nombreuses caractéristiques intrinsèques aux poudres (taille ou forme des particules...) et de facteurs ambiants (humidité, température...).

La caractérisation de ces propriétés des poudres est donc un préalable essentiel pour une correcte appréhension les phénomènes régissant le mélange.

## 1.1 La caractérisation des poudres en vue de leur mélange

D'une manière générale, les poudres sont classées en deux grandes catégories en fonction de leur mobilité. En première approche cette mobilité est reliée à la taille des particules. Ainsi on distingue :

**Les poudres à écoulement libre** : Il s'agit de poudres ayant une forte mobilité et donc une grande tendance à s'écouler, le diamètre moyen des particules est usuellement pris supérieur à  $100 \mu\text{m}$ . Elles n'ont généralement pas tendance au mottage. Par contre, du fait de leur forte mobilité, elle vont avoir une forte tendance à ségréger.

**Les poudres cohésives** : On parle de poudre cohésive lorsque les forces de cohésion ne sont plus négligeables devant le poids de la particule. Les poudres cohésives sont des poudres de très faible diamètre particulaire (généralement en dessous de  $50 \mu\text{m}$ ).

La figure 1.1 présente à gauche un sucre fin et à droite un sucre glace dont le diamètre des grains est inférieur à  $50 \mu\text{m}$ . L'aspect cohésif du sucre glace est clairement mis en évidence.

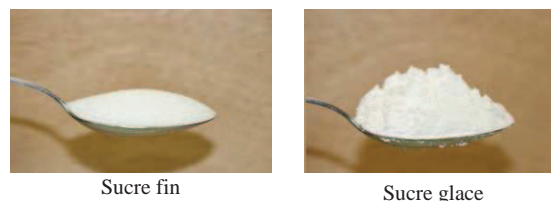


FIGURE 1.1 – Poudre à écoulement libre (gauche) et poudre cohésive (droite).

## 1.1 La caractérisation des poudres en vue de leur mélange

---

Cependant, cette première définition reste assez restrictive. En effet, d'une part certaines particules de faibles dimensions s'écoulent très bien et d'autre part la taille n'est pas le seul facteur responsable de la cohésion du système. D'autres caractéristiques propres au grains, ou des facteurs ambiants peuvent également influencer de manière significative la coulabilité. Les propriétés intrinsèques aux poudres peuvent être qualifiées de facteur de premier ordre car elles agissent directement sur la cohésion. Les facteurs ambiants sont plutôt des facteurs de second ordre car ce ne sont que combinés aux caractéristiques des poudres qu'ils engendrent des forces interparticulaires.

### 1.1.1 Facteurs de premier ordre influençant l'écoulement : les propriétés intrinsèques aux poudres

- **Distribution granulométrique et masse volumique vraie** : le système sera d'autant plus cohésif que le rapport des forces interparticulaires (cf. 1.1.2 page 14) aux forces de gravité sera important. La taille et la masse volumique vraie, responsables de la masse des particules, jouent donc un rôle primordial dans l'écoulement des systèmes granulaires.

Ainsi, pour une particule de très faible diamètre et de faible densité, les forces de cohésion seront beaucoup plus importantes que pour une particule dense, ou dont le diamètre serait plus grand. Lors de la réalisation d'un mélange, une différence significative de taille de particules ou de masse volumique vraie entre les constituants engendre des vitesses d'écoulement différentes entre les particules, entraînant un phénomène de ségrégation (Williams, 1976).

- **Coefficient de frottement interne, morphologie et propriétés de surface** : le coefficient de frottement interne est fonction de la nature de la poudre et de son état de surface. Il est responsable des forces de Coulomb normales et tangentielles<sup>1</sup> et conditionne l'aptitude de la poudre à rouler ou à glisser.

La rugosité exprime le rapport entre la surface spécifique externe mesurée de la particule et l'aire que la particule aurait si elle était sphérique.

---

1. Forces de Coulomb : En mécanique, la loi de Coulomb exprime la force de frottement s'exerçant entre deux solides. Elle est constituée d'une composante normale, traduisant la réaction entre les deux solides en contact et d'une composante tangentielle s'opposant au mouvement. Son intensité, lors du glissement de deux solides est fonction du coefficient de frottement interne et de la cohésion des grains.



Une particule dont la forme est aléatoire ou rugueuse possède de nombreux points de contact comme des angles, des bords ou des aspérités. De tels sites peuvent avoir des forces de surface effectives très importantes. Ainsi une particule rugueuse sera plus difficile à mettre en mouvement qu'une particule quasi sphérique et lisse. Massol-Chaudeur et al. (2002) rapportent que si la taille est -de loin- le facteur influençant le plus le mélange et l'écoulement, la forme des particules est un facteur d'une influence significative lorsque les distributions granulométriques sont relativement proches.

- **Dureté, déformabilité, friabilité** : des particules dures ne peuvent quasiment pas se déformer. Les surfaces de contact interparticulaires seront donc assez faibles, les forces associées seront elles aussi peu importantes (Carr, 1970). Par contre lorsqu'une poudre est friable, elle va avoir tendance à former des poussières. Ces poussières peuvent influencer fortement le système particulaire, soit en ayant un rôle lubrifiant, soit au contraire en renforçant la cohésion.

### 1.1.2 Facteurs de second ordre

Deux paramètres ambiants sont généralement responsables de la cohésion d'un système particulaire : l'humidité et la température. Ils n'agissent pas spontanément sur les poudres mais, combinés aux facteurs de premier ordre précédemment cités, ils peuvent renforcer les forces de cohésion.

- **Les forces électrostatiques** : lors de contacts-séparations et de frottements successifs, deux solides peuvent se charger électrostatiquement. En effet, lorsque deux matériaux différents et électriquement neutres sont mis en contact, un transfert de charges a lieu d'une surface à l'autre. Si les surfaces sont séparées suffisamment rapidement et que les matériaux restent isolés de la terre, ils conserveront ces charges. Le phénomène se produit quelle que soit la nature (isolant ou conducteur) du matériau. Cependant, certains matériaux isolants, ne peuvent restituer dans un temps suffisamment court les charges à la terre. Ils ont ainsi tendance à piéger les charges à leur surface (Revel, 2003). Ce phénomène sera d'autant plus important que l'humidité relative de l'air ambiant sera faible.

Le phénomène électrostatique est ainsi un phénomène se produisant à la surface d'un solide. Une poudre, du fait du nombre élevé de ses particules possède une très grande

## 1.1 La caractérisation des poudres en vue de leur mélange

---

surface. De plus, lors d'une opération industrielle, elle subit de nombreux frottements, susceptibles de la charger. Ainsi la somme des charges pouvant s'accumuler à la surface des particules peut devenir suffisamment importante pour engendrer des forces d'interaction et pour compenser l'effet de la gravité, en particulier pour les particules dont la taille est faible. Cette assertion est cependant à moduler car les particules les plus fines peuvent avoir tendance à se charger moins que des particules plus grossières du fait de leurs mouvements plus limités (Revel et al., 2003).

En fonction de la nature des charges (positives ou négatives), les particules vont avoir tendance à coller aux parois du mélangeur ou à se disséminer au travers des autres particules créant ainsi un mouvement préférentiel et de la ségrégation. Ainsi un mélange de deux poudres chargées de manière opposée aura moins tendance à ségréger et sera à priori plus stable que si les poudres ont des charges de même signe.

- **Les Forces de Van der Waals** : en fonction de la nature chimique des molécules constituant les particules, il arrive que des dipôles permanents et induits se forment lorsque le barycentre des charges négatives ne coïncide plus avec le barycentre des charges positives. Du fait de la nouvelle polarisation des molécules, des forces de type électrostatique, appelées forces de Van der Waals, apparaissent (Aufroy, 2005).

Elles sont attractives et proportionnelles à l'inverse de la distance entre les particules. Leur intensité est faible mais peut devenir significative devant le poids lorsque les particules sont très fines. La figure 1.2 (Rumpf, 1962) met ainsi en évidence que pour des particules dont la taille est inférieure à  $1 \mu\text{m}$  ces forces ne sont pas négligeables.

L'intensité des forces de Van der Waals est également dépendante de la distance entre les particules. La structure et la compacité du lit de poudre qui influencent donc directement les distances interparticulaires conduisent à des forces de Van der Waals plus importantes (Harnby, 1985).

La figure 1.3 illustre le phénomène d'agglomération due aux forces électrostatiques ou de Van der Waals.

- **Les Forces capillaires** : les forces capillaires sont fonction de la taille de la particule, de sa nature et de l'humidité ambiante. En dessous d'une valeur critique d'humidité relative  $H_c$ , elles sont engendrées par une couche de vapeur adsorbée. Au dessus de cette

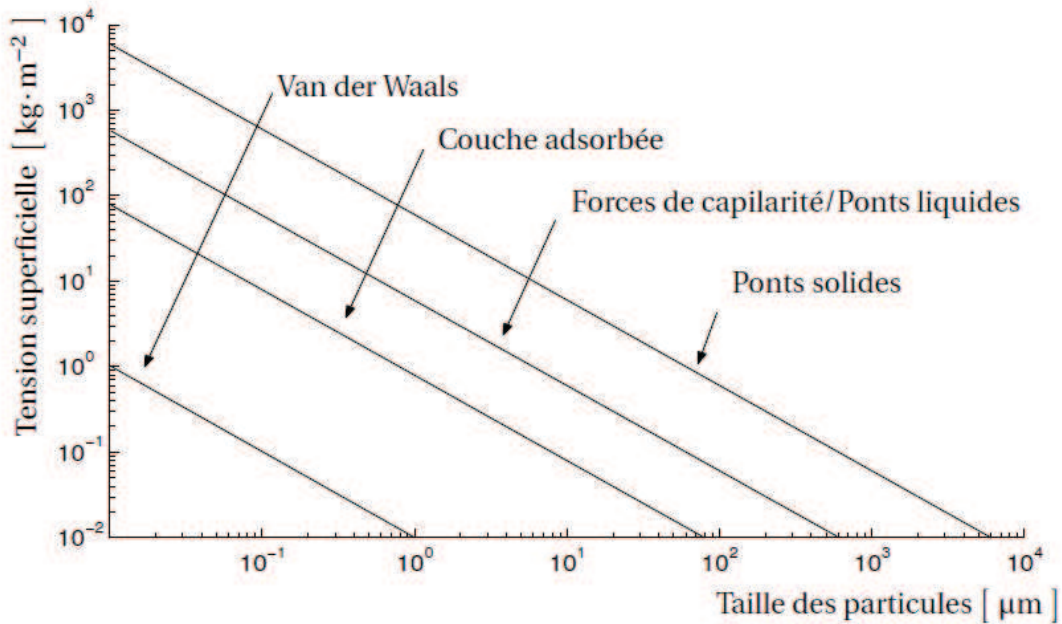


FIGURE 1.2 – Relation entre la tension superficielle théorique des agglomérats en fonction de la taille des particules d’après Rumpf (1962).

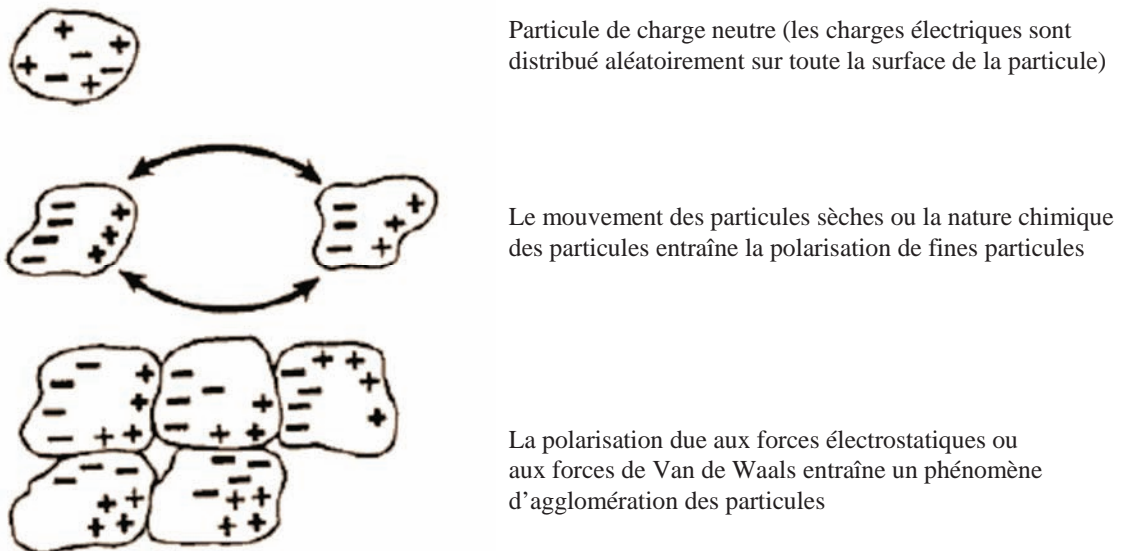


FIGURE 1.3 – Effet des forces interparticulaires dans le cas de poudres fines : charges électrostatiques et forces de Van der Waals (Rumpf, 1990).

## 1.1 La caractérisation des poudres en vue de leur mélange

---

valeur, des ponts liquides peuvent se former. Les forces d'interaction agissant alors sont différentes selon les cas (Harnby, 1985) :

Couche de vapeur adsorbée à la surface : la cohésion est assurée par le chevauchement des couches de vapeur adsorbée de deux particules voisines. Il s'agit d'une force d'adhésion qui requiert un contact entre les particules. Sa norme est proportionnelle à la tension de la couche adsorbée et à l'aire de contact. Son intensité est donc influencée par la forme et la taille des particules, la compacité du lit ainsi que la rugosité des particules. En effet lorsqu'une particule n'est pas entièrement lisse, l'aire de contact est réduite et la force de cohésion diminue.

L'humidité atmosphérique influence l'épaisseur de la couche adsorbée, et donc l'aire de contact, mais elle détermine surtout le point de transition entre la couche de vapeur adsorbée et la formation de pont liquide.

Ponts liquides : lorsque l'humidité dépasse la valeur critique  $H_c$ , des ponts liquides se forment entre les particules. Cette interaction est caractérisée par la présence d'un ménisque qui lie les particules entre elles. Ces ponts accroissent considérablement la cohésion de la poudre.

Contrairement aux liaisons dues à une couche de vapeur adsorbée, une fois que le pont liquide est formé, il exerce une force attractive entre les particules et ne requiert plus de contact entre la surface de deux particules solides (cf figure 1.4). Les forces issues de la création d'un pont liquide sont suffisamment importantes pour créer une restructuration dans une poudre à l'état statique. Elles peuvent être à l'origine de la formation d'agglomérats et de croûtes au sein de la poudre. Un pont liquide sera stable si la tendance de l'eau à s'évaporer est égale à la tendance de la vapeur à se condenser.

Effet de l'humidité sur les autres forces interparticulaires :

Emery et al. (2009) rapportent que les forces de Van der Waals sont renforcées par la couche d'humidité adsorbée. En effet cette couche additionnelle peut être considérée comme une partie de la particule. La distance interparticulaire diminue donc. Par contre, une augmentation de l'humidité aura tendance à réduire le phénomène électrostatique à cause des propriétés conductrices de l'eau (Coelho and Harnby, 1978).

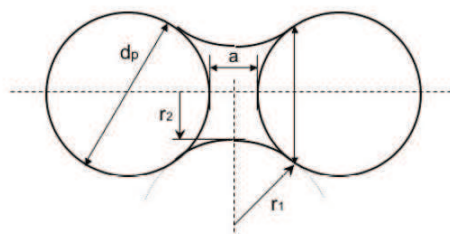


FIGURE 1.4 – Pont liquide reliant deux particules sphériques de même diamètre (Condotta, 2005).

• **Ponts solides** : les ponts solides sont créés par transfert de matière. Prenons l'exemple d'un polymère : lorsque celui-ci est chauffé jusqu'à une température approchant sa température de transition vitreuse, il peut y avoir des transferts de matière de la surface du grain vers le point de contact, créant ainsi un pont solide entre les particules. Les ponts solides peuvent également être créés lors de processus de fusion-recristallisation ou sublimation-recristallisation. Ils peuvent également apparaître lors de déformations plastiques sous contraintes mécaniques (Bika et al., 2005). La nature des ponts solides pouvant se former au sein d'une poudre est donc fonction des propriétés chimiques de cette dernière. La figure 1.5 résume les différentes transformations responsables de la formation de ponts solides.

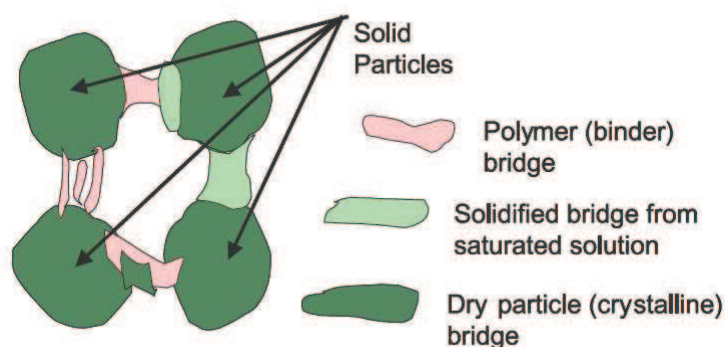


FIGURE 1.5 – Différentes interactions à l'origine de ponts solides au sein d'un mélange de poudres d'après Bika et al. (2005).

Parmi l'ensemble des facteurs existants, les ponts solides sont à l'origine des interactions les plus fortes pouvant exister au sein d'une poudre.

## 1.2 Les mécanismes responsables du mélange des poudres

La figure 1.6 résume l'ensemble des facteurs présentés précédemment et pouvant influencer la cohésion et l'écoulement d'une poudre.

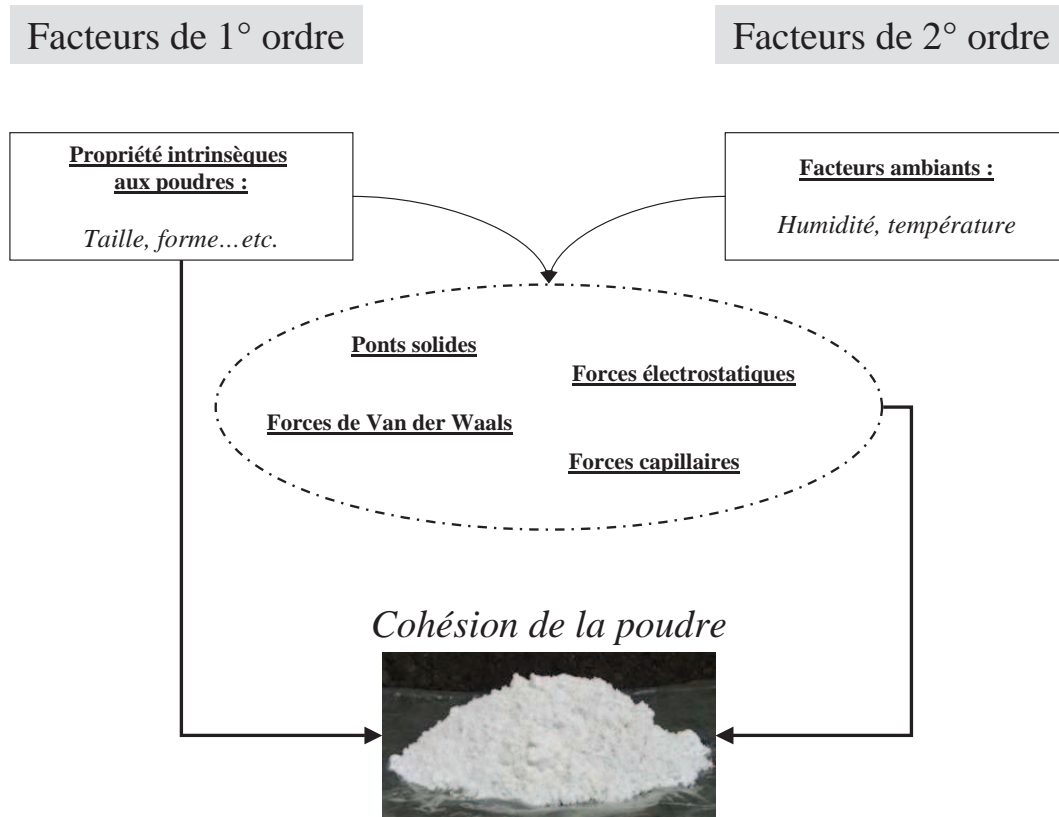


FIGURE 1.6 – Facteurs influençant la cohésion du système.

## 1.2 Les mécanismes responsables du mélange des poudres

Lors de la réalisation d'un mélange de poudres, les particules peuvent s'arranger de différentes manières selon leurs propriétés d'écoulement et engendrer un état de mélange plus ou moins "parfait".

### 1.2.1 L'état de mélange

Considérons un mélange binaire en proportions égales d'une poudre de particules noires et d'une poudre de particules blanches. Différentes configurations "extrêmes" peuvent être imaginées (1.7) :

**Le mélange parfait :** il s'agit d'une distribution dans laquelle chaque particule noire est adjacente à une particule blanche (Demeyre, 2007), une configuration impossible à obtenir à l'échelle industrielle. L'objectif de tout mélangeur n'est donc pas d'atteindre le mélange parfait, mais de tendre vers l'un des mélanges décrit ci-après.

**Le mélange aléatoire :** un mélange aléatoire est obtenu dans la configuration où chaque particule a la même probabilité de se trouver en un point donné du mélangeur.

**Le mélange interactif (ou ordonné) :** on parle de mélange interactif lorsque des interactions interparticulaires apparaissent, entraînant une certaine organisation au sein du mélange. Du fait de cette organisation, le mélange obtenu est particulièrement stable.

Lors de la réalisation d'un mélange aléatoire ou d'un mélange interactif, les forces interparticulaires et les forces de gravité sont présentes. Cependant, au sein du premier, les forces de gravité dominent, alors que pour le second ce sont les forces interparticulaires. Ainsi, Fan et al. (1990) notent qu'une configuration aléatoire est plutôt obtenue lors du mélange de poudres à libre écoulement, et une configuration ordonnée lorsqu'au moins une poudre est cohésive.

A l'opposé des mélanges précédemment décrits, il existe des configurations où, au contraire d'être intimement mélangés, les constituants sont regroupés ou séparés. On qualifie respectivement ces mélanges de "totalement ségrégué" ou "partiellement ségrégué".

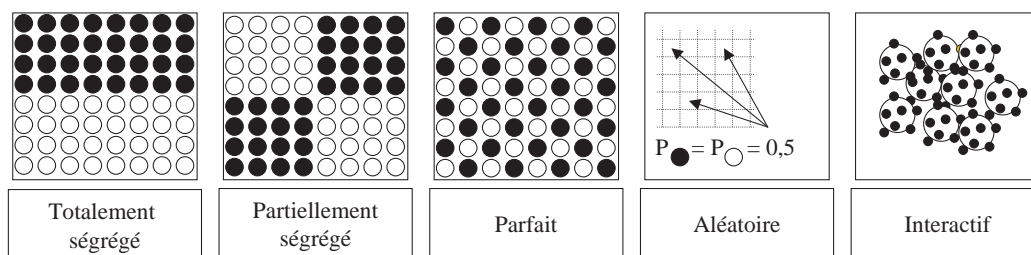


FIGURE 1.7 – Les différents types de mélanges.

L'état de mélange résulte à la fois d'un processus d'homogénéisation (mécanisme de mélange) et d'un processus de démixage (mécanisme de ségrégation).

### 1.2.2 Les mécanismes de mélange

Lacey (1954) mentionne trois principaux mécanismes de mélange :

**Le mélange par diffusion** : les particules se déplacent individuellement. Leurs mouvements sont initiés par des chocs particules/particules ou particules/paroi, ou par un état non stable du système. Il s'agit d'un mécanisme lent, qui aboutit à une redistribution individuelle des particules. Ce réarrangement, qui intervient à petite échelle (quelques particules), est assez lent. Le terme "diffusion" fait référence à la diffusion moléculaire au sein d'un liquide. Son utilisation ici est cependant impropre car un apport d'énergie extérieure reste nécessaire.

**Le mélange par convection** : les particules sont mises en mouvement par blocs ce qui conduit donc à des réarrangements à l'échelle du mélangeur. Ce type de mécanisme implique un fort apport d'énergie à la poudre, souvent obtenu par l'intervention d'une force extérieure, telle une pale d'agitation.

**Le mélange par cisaillement** : des plans de glissement entre des couches de particules peuvent apparaître sous une action mécanique. Le mouvement relatif de ces plans implique un brassage des particules avec une efficacité intermédiaire entre les deux mécanismes précédents. Il est souvent difficile de dissocier les mécanismes de cisaillement de ceux de convection car ces deux types de mécanisme sont générés par des forces de même origine et conduisent à des états de mélanges similaires (Venables and Wells, 2001).

Afin d'illustrer ces différents mécanismes nous pouvons nous référer aux travaux de Schofield (1970) qui illustrent par une représentation schématique l'obtention d'un mélange par les deux mécanismes principaux, la convection et la diffusion (voir figure 1.8), le mélange le plus efficace (en bas à droite) étant obtenu pour une combinaison des deux.

### 1.2.3 les mécanismes de ségrégation

La ségrégation, est le processus inverse du mélange. Du fait de leurs particularités physico-chimiques, certaines particules ont un mouvement préférentiel, engendrant une



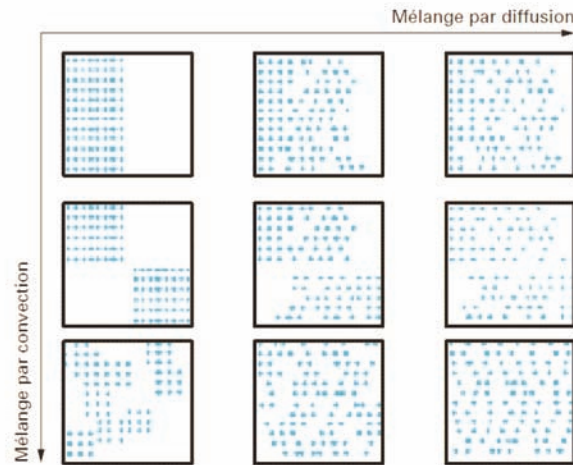


FIGURE 1.8 – Simulation du mélange d’un lot de particules par convection et/ou diffusion d’après Schofield (1970).

réorganisation qui perturbe l’homogénéité du mélange.

De nombreux mécanismes de ségrégation existent. McCarthy (2009) en a identifié treize. Cependant, l’importance de beaucoup d’entre eux reste très relative et nous nous concentrerons uniquement sur les trois principaux mécanismes généralement observés selon la description de Williams (1976) :

**Ségrégation due aux trajectoires :** une particule de diamètre  $D$  et de densité  $\rho_s$  est projetée horizontalement, à une vitesse  $v_0$  dans un fluide (l’air par exemple) de viscosité  $\eta$ . La distance horizontale que cette particule peut parcourir avant de "tomber" est égale à :

$$\frac{v_0 * \rho_s * D^2}{18 * \eta} \tag{1.1}$$

Ainsi une particule de diamètre  $2D$  pourra aller 4 fois plus loin (Voir figure 1.9-a). Ce type de ségrégation peut apparaître au sein d’un mélangeur à cuve rotative (où les forces de gravités prédominent), dans un mélangeur à pale d’agitation qui confère une vitesse aux particules afin de les disperser, ou lors de la vidange du mélangeur et du transport des poudres.

**Ségrégation par percolation des fines :** le mouvement de particules implique l’apparition d’espaces vides entre elles. Lorsque le mélange comporte des particules fines et des particules plus grossières, les particules fines vont avoir tendance à s’écouler

## 1.2 Les mécanismes responsables du mélange des poudres

---

entre les particules dont la taille est plus importante, entraînant une ségrégation par la taille. Ce phénomène s'accroît en présence de vibrations : les plus grosses particules se retrouvent alors à la surface. Leur pression sur les plus fines a pour conséquence de consolider l'arrangement des fines et de bloquer le système dans cette configuration. La figure 1.9-c illustre ce processus. Ce type de ségrégation intervient par exemple lors du déversement en tas d'un mélange.

Lorsque la fraction volumique de fines est plus importante, on parle improprement de flottation. Les particules les plus grosses semblent flotter à la surface du lit, les fines pénètrent dans les espaces laissés vides.

**Ségrégation par élutriation :** Si le mélange est constitué de populations présentant une forte différence de taille de particules, la chute des fines est freinée par l'air chassé par les plus grosses. Ce déplacement d'air peut également entraîner des poussières et provoquer une ségrégation par la taille.

Lors du déversement sur une pente, ou au sein d'un mélangeur, un autre type de ségrégation peut être observée : la ségrégation par roulement. Les particules les plus grosses s'écoulent sur le lit de particules et atteignent le bas de la pente sans rencontrer de difficulté. Par contre les particules les plus fines sont "bloquées" lorsqu'elles rencontrent des particules plus grosses, celles-ci formant alors des obstacles qu'elles ne peuvent franchir.

Les phénomènes de ségrégation peuvent apparaître sur l'ensemble de la chaîne de fabrication :

- Soit en amont, au sein du stockage (par exemple, un récipient de poudre ayant subi des déplacements et de nombreuses manipulations).
- Soit durant l'opération de mélange.
- Soit en aval, lors de manipulations ultérieures de la poudre, (transport et autres étapes du procédé).

Il est donc important de pouvoir identifier la source de la ségrégation afin de la limiter à toutes les étapes du procédé.

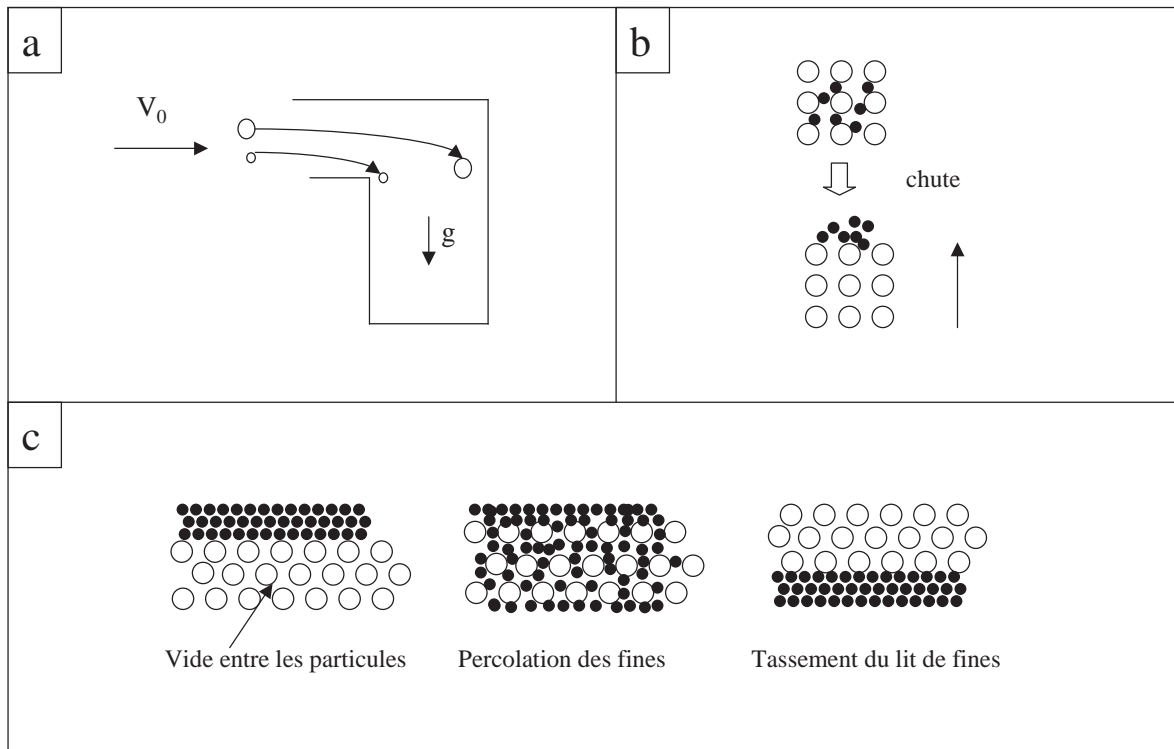


FIGURE 1.9 – Ségrégation due aux trajectoires (a), par élutriation (b) et par percolation des fines (c).

### 1.2.4 Éviter ou limiter la ségrégation

Les poudres à écoulement libre présentent de nombreux avantages que ce soit d'un point de vue technique ou commercial. En effet, leur taille plus grossière facilite leur écoulement et leur manutention (décharge dans des lots d'emballage, conditionnement). Cependant le fait que ces particules puissent se déplacer librement et indépendamment les unes des autres entraîne également de la ségrégation. Pour minimiser ces phénomènes, il est possible de jouer sur :

- la formulation du produit,
- sa mise en forme dans le procédé,
- certaines opérations unitaires du procédé.

Pour réduire les fortes disparités entre les caractéristiques des particules responsables de la ségrégation, on peut par exemple envisager de resserrer une distribution granulométrique, changer la forme des particules en privilégiant des formes moins mobiles ou de réduire la taille des poudres par des procédés de broyage pour les rendre plus cohésives.

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

Toutefois, cette dernière solution est risquée, car elle peut bloquer toute mobilité de la poudre.

Plusieurs chercheurs ont tenté de réduire la ségrégabilité d'un système en augmentant l'humidité. Williams (1976) a ainsi montré qu'une addition de 2% d'eau peut réduire le coefficient de ségrégation d'un sable à écoulement libre de 70 % à moins de 10 %. Il rapporte également que l'addition de 1% en masse d'eau réduit la variance de la composition des échantillons de 30 % à moins de 5 %. McCarthy (2009) confirme ces résultats en mettant en évidence que la cinétique de ségrégation est fortement influencée par l'humidité. Cependant, il met également en relief le danger d'une trop forte augmentation de la cohésion qui diminue l'efficacité du mélange. C'est là tout le paradoxe du mélange des poudres : une augmentation de la mobilité favorise l'opération de mélange, mais une mobilité trop importante des produits entraîne un démélange.

Pour certains procédés, changer les propriétés de la poudre ou les conditions n'est pas souhaitable car cela affecte directement les caractéristiques du produit formé. Il faut donc limiter la ségrégation en jouant sur les équipements de la chaîne de production. Ainsi le mélangeur choisi doit privilégier le déplacement de groupes de particules et limiter le mouvement individuel (exemple : mélangeurs convectifs). D'autre part, le mouvement des particules doit être limité sur l'ensemble du procédé en rapprochant le plus possible le conditionnement du produit final de la sortie du mélangeur afin d'éviter le stockage et le transport en vrac. C'est le cas pour l'industrie pharmaceutique où le mélange a souvent lieu directement dans la cuve de stockage.

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

Afin de savoir si le mélange obtenu possède la qualité souhaitée, on cherche à quantifier l'état du mélange en s'intéressant non seulement aux concentrations de chacun des composants mais aussi à la structure du mélange obtenu. Il s'agit en réalité de pouvoir répondre à la question bien simple : "Le mélange est-il bon?".

Harnby (1985) souligne qu'un mélange peut être considéré comme homogène si son état est suffisant pour l'utilisation à laquelle il est destiné, reliant ainsi la qualité du mélange à son utilisation future. Il devient alors indispensable de définir l'échelle à laquelle l'homogénéité du mélange doit être garantie. Cette échelle peut être qualifiée d'échelle

d'observation et représente l'échelle à laquelle il est pertinent de regarder le mélange afin de garantir que le produit obtenu respecte le cahier des charges fixé par le client.

### 1.3.1 Échelle d'observation

Afin d'illustrer la notion d'échelle d'observation, Harnby (1985) cite un exemple assez parlant : "Un pigment est bien mélangé à un ensemble de poudre si l'oeil ne peut plus distinguer de variation de couleur". Cela ne signifie pas que le mélange ne peut être amélioré, cela signifie seulement que le mélange a passé un test arbitraire de qualité. L'utilisation d'une loupe pourrait révéler des défauts non visibles à "l'oeil nu".

Développons un peu plus cet exemple. Lorsque nous observons un mélange à base de pigments, l'évaluation de la qualité du mélange dépend de la distance à laquelle on se place. Une observation microscopique du mélange révélerait certainement un manque d'homogénéité dans la couleur, non visible au premier abord. Dans le cas extrême où le mélange est observé à l'échelle de la particule, le mélange obtenu ne sera jamais satisfaisant. Il y a donc un seuil en-deça duquel le mélange sera toujours considéré comme hétérogène.

Pour une application donnée, il n'est pas forcément utile de réaliser un mélange à une micro-échelle, de manière industrielle cela semble même impossible. Il faut plutôt s'attacher à réaliser le mélange à l'échelle qui confère au produit les propriétés d'usage attendues. Cette taille définit l'échelle d'observation du mélange (Berthiaux, 2002). En première approche, cette échelle peut correspondre à la quantité de matière présente dans le volume du conditionnement élémentaire de celui-ci (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.

### 1.3.2 Concepts et outils mathématiques pour l'étude de l'homogénéité des mélanges

L'homogénéité d'un mélange est intimement liée à la dispersion de la composition des échantillons qui le constituent. Danckwerts (1952) proposa dès 1952 une méthodologie pour appréhender la connaissance globale d'un mélange (de liquides, poudres ou pâtes)

## 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

basée sur l'utilisation de deux concepts : l'intensité de ségrégation pour quantifier les différences de composition du mélange et l'échelle de ségrégation pour décrire la structure du mélange.

### 1.3.2.1 L'intensité de ségrégation

L'intensité de ségrégation permet de caractériser l'amplitude des fluctuations de la composition au sein du mélange. Elle est reliée à la variance de la composition  $\sigma^2$  des échantillons qui s'exprime par :

$$\sigma^2 = 1/Z * \sum_{i=1}^Z (x_i - \mu)^2 \quad (1.2)$$

avec :

- $Z$  : nombre total d'échantillons au sein du mélange
- $x_i$  : composition de l'échantillon  $i$  en constituant clé
- $\mu$  : teneur moyenne du mélange en constituant clé

Plus la composition de chaque échantillon est proche de la composition moyenne du mélange, plus l'intensité de ségrégation diminue. La figure 1.10 illustre cette notion, pour un mélange réparti en deux zones de taille égale.

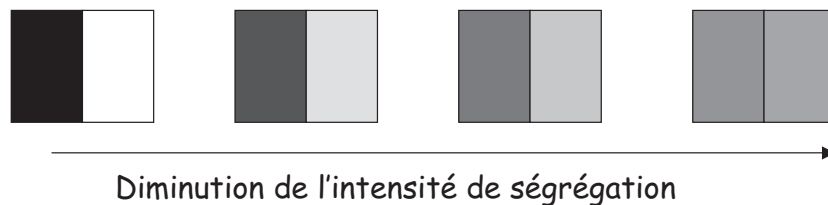


FIGURE 1.10 – Notion d'intensité de ségrégation d'après Danckwerts (1952).

L'intensité de ségrégation est souvent assimilée à un indice de mélange, dont de nombreuses définitions existent. La diversité des indices que l'on retrouve à travers la littérature montre combien il est difficile de quantifier l'état de mélange (Fan and Wang, 1975). Chaque auteur possède souvent son propre indice, qu'il utilise pour quantifier la qualité d'un mélange particulier.

Nous nous contenterons ici de rappeler la définition proposée par Danckwerts pour un mélange binaire constitué de particules d'espèces 1 et 2 :

$$I = \frac{\sigma_1^2}{\mu_1 * \mu_2} = \frac{\sigma_2^2}{\mu_1 * \mu_2}$$

avec

- $\sigma_1, \sigma_2$  : variance respective de l'espèce 1 et 2
- $\mu_1, \mu_2$  : concentration moyenne respectivement de 1 et de 2

Ces indices sont essentiellement utilisés lors de simulations où il peuvent se révéler judicieux pour mettre en exergue certaines différences entre les états de mélange. Pour des études expérimentales, leur utilisation est souvent lourde ou peu adaptée car ils prennent généralement en compte un nombre de particules fixe au sein des échantillons et des considérations géométriques sur la forme des particules. L'utilisation du coefficient de variation (CV) se révèle alors être une alternative simple et fiable car rapportant les écarts de la composition à l'espérance de celle-ci :

$$CV = \frac{\sigma}{\mu} \tag{1.3}$$

L'intensité de ségrégation retranscrit une vision macroscopique de la qualité du mélange. Cependant deux mélanges de même variance peuvent avoir des structures très différentes, ayant des répercussions sur l'usage recherché du produit.

Berthiaux (2002) illustre cette notion avec l'exemple d'un mélange pharmaceutique destiné à la fabrication de comprimés, (voir 1.11). Les variances des échantillons prélevés dans les deux mélanges sont égales. Cependant si nous supposons que les douze échantillons correspondent à douze comprimés d'une même tablette, le patient pourra recevoir, dans le cas du mélange A un surdosage pendant les 6 premiers jours de traitement, et un sous dosage, pendant les 6 jours suivants alors que, dans le cas du mélange B, la quantité de principe actif est reçue plus régulièrement sur la durée globale du traitement.

Ce simple exemple permet de souligner qu'idéalement la qualité d'un mélange de poudre doit être appréciée à une échelle macroscopique mais aussi à une échelle microscopique afin de connaître la structure du mélange et les mécanismes ayant abouti à cet

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

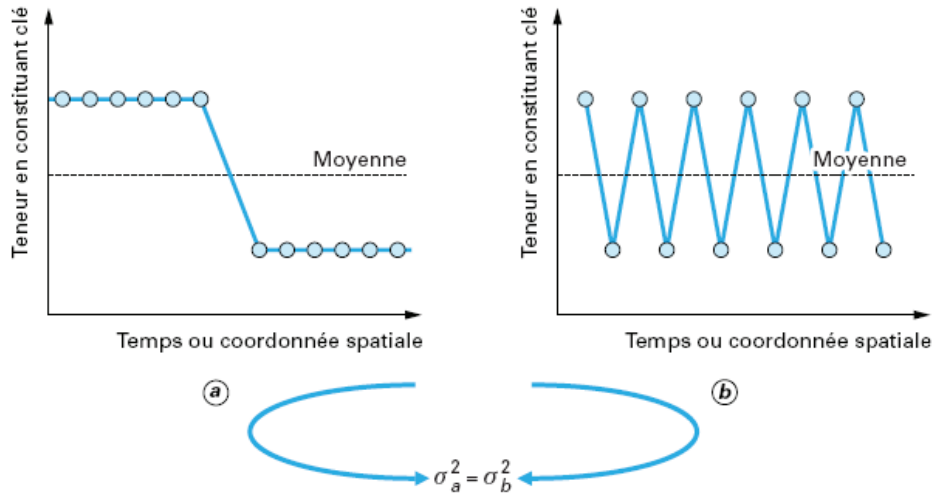


FIGURE 1.11 – Deux mélanges de même composition peuvent avoir des structures radicalement différentes d'après Berthiaux (2002).

état. C'est pour cette raison que Danckwerts propose l'utilisation d'un deuxième concept, l'échelle de ségrégation, en se basant sur la théorie des séries temporelles (Chatfield, 2009).

#### 1.3.2.2 Échelle de ségrégation

- **Description qualitative :**

De façon imagée, l'échelle de ségrégation, peut être vue comme la taille minimale des régions non ségrégées. La figure 1.12 présente de façon schématique 4 états de mélange, ayant tous la même intensité de ségrégation, mais entre chaque état de mélange l'échelle de ségrégation est diminuée de moitié. Pour le mélange le plus à gauche, elle est égale à la totalité du mélange et pour celui le plus à droite à  $1/32^{ième}$  de celui-ci. Notons d'ailleurs que la figure 1.10 était conçue à échelle de ségrégation constante.

Du fait du manque de régularité géométrique au sein d'un mélange et afin de quantifier ce concept par une méthode statistique, Danckwerts suggère l'utilisation de la fonction d'autocorrélation.

- **La fonction d'autocorrélation :**

Considérons un mélange déversé sur une bande en sortie de mélangeur. Le mélange est découpé en  $Z$  échantillons, suivant l'axe  $z$  (voir figure 1.13). La fonction d'autocorrélation  $R(r)$ , peut être déterminée de la façon suivante :



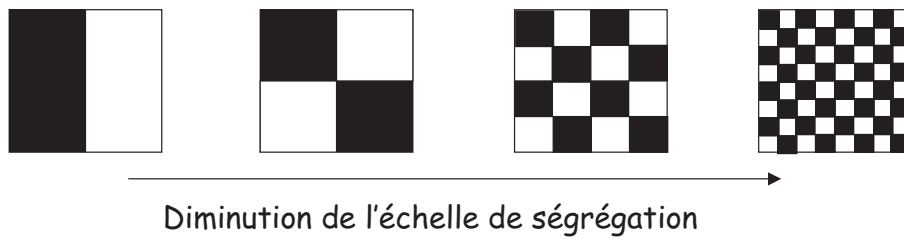


FIGURE 1.12 – Diminution de l'échelle de ségrégation à intensité de ségrégation constante (Danckwerts, 1952).

$$R(r) = \frac{\sum_{i=1}^{Z-r} (x_i - \mu)(x_{i+r} - \mu)}{\sum_{i=1}^Z (x_i - \mu)^2} \quad (1.4)$$

où  $r$ , nombre entier, représente l'intervalle entre deux échantillons

Nous pouvons remarquer que, quelles que soient les concentrations des échantillons  $R(0) = 1$ .

Soit  $r_0$ , tel que  $R(r_0) = 0$ .  $r_0$  est appelée longueur caractéristique car elle donne une estimation du nombre d'échantillons successifs liés entre eux (Chatfield, 2009). Sa détermination passe par le tracé d'un autocorrélogramme représentant la fonction d'autocorrélation (cf figure 1.14).

La fonction d'autocorrélation fluctue aux alentours de 0. On considère qu'en dessous de  $\varepsilon$ ,  $R(r)$  peut être considérée comme nulle et que les fluctuations ne sont plus représentatives d'une corrélation entre les échantillons.  $\varepsilon$  peut être déterminé par un raisonnement statistique et dépend du niveau de confiance souhaitée. Ainsi pour un intervalle de confiance à 95 %,  $\varepsilon = \pm \frac{1}{\sqrt{Z}}$ .

### • Vers une approche à 2 dimensions de l'échelle de ségrégation

La définition proposée par Danckwerts est basée sur le modèle de l'autocorrélation temporelle. Il n'existe donc qu'une seule direction d'autocorrélation puisque seul le passé ou le présent peuvent influencer le futur.

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

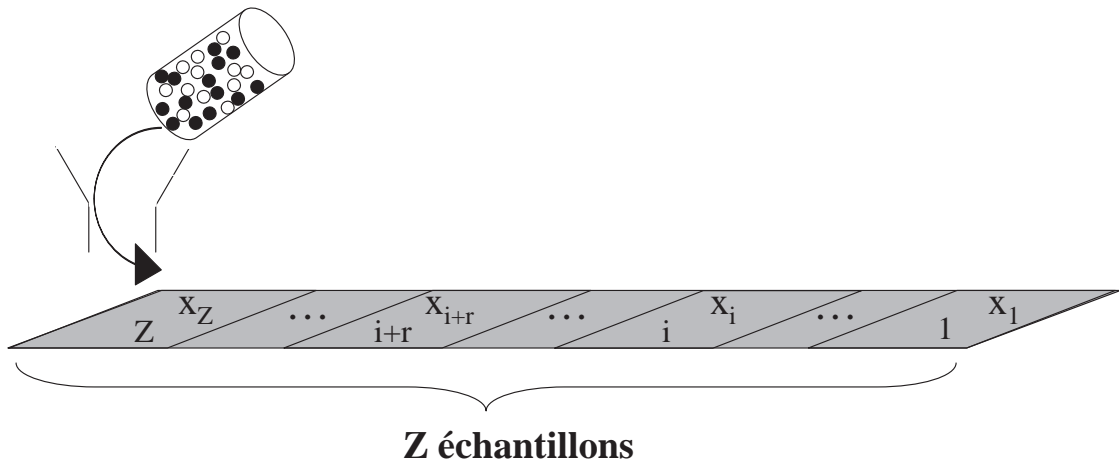


FIGURE 1.13 – Exemple de découpage en  $Z$  échantillons pour le calcul de la fonction d'autocorrélation.

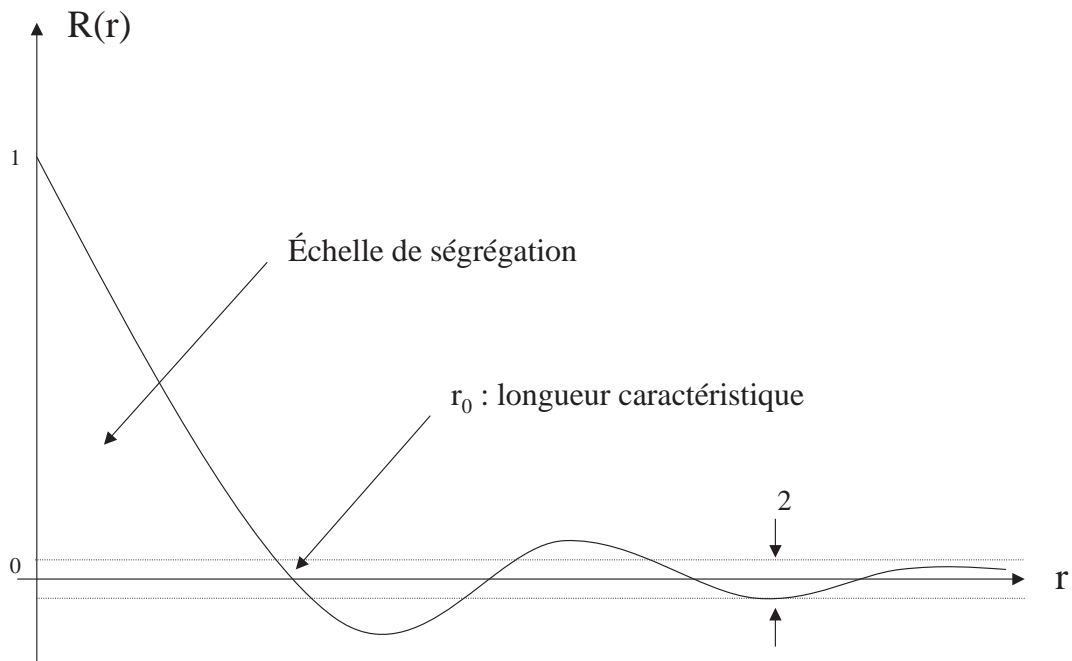


FIGURE 1.14 – Allure d'un autocorrélogramme.

Schofield (1970) extrapola la théorie de Danckwerts à 2 et 3 dimensions. Les compositions de chaque échantillon sont stockées au sein d'un tableau à 2 ou 3 dimensions selon le découpage considéré (voir figure 1.15).

Chaque valeur du tableau est considérée tour à tour comme "valeur primaire". La composition de l'échantillon correspondant est noté  $a_n$ . Les autres valeurs, à la distance  $r$ , sont considérées secondaires (les compositions correspondantes sont notées  $a_{i(n+r)}$ ). Le produit  $(a_n - \bar{a}) * (a_{i(n+r)} - \bar{a})$  est stocké pour chaque paire  $(a_n, a_{i(n+r)})$ . La fonction d'autocorrélation est alors calculée selon :

$$R(r) = \frac{\overline{(a_n - \bar{a}) * (a_{n+r} - \bar{a})}}{(\overline{a_n - \bar{a}})^2} \quad (1.5)$$

avec

- $a_n$  : composition de l'échantillon n
- $r$  distance entre deux échantillons
- $\bar{a}$ , moyenne des compositions des échantillons

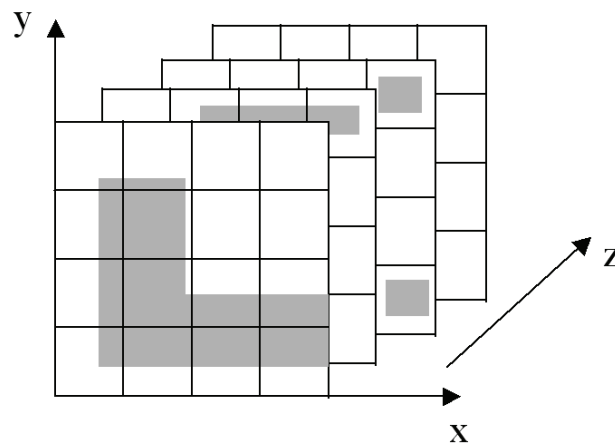


FIGURE 1.15 – Représentation d'un mélange découpé en échantillons selon 3 dimensions d'après Schofield (1970).

À partir des années 1970, une méthodologie pour l'étude d'autocorrélation spatiale ou spatio-temporelle a vu le jour. Elle a trouvé son application pour des corrélations économiques, géographiques ou épidémiologiques (Cliff and Ord, 1981). Cette théorie passe par la construction préliminaire d'une matrice de voisinage,  $W_r$ , qui indique à la ligne  $i$  et à la colonne  $j$  si l'échantillon  $i$  est voisin (1) ou non (0) de l'échantillon  $j$  à la distance  $r$ .

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

Dans le cas le plus simple, on peut définir la distance entre deux échantillons, comme la distance du centre de l'un à celui de l'autre. On considère que deux échantillons sont voisins à la distance  $r$ , si on traverse  $r$  frontières pour les joindre<sup>2</sup>. Une frontière est définie comme une ligne entre deux échantillons, les contacts ponctuels sont donc exclus.

Considérons un mélange découpé en  $Z$  échantillons, la matrice  $W_r$  sera donc une matrice  $Z \times Z$ , dont chaque élément de la diagonale sera nul, un échantillon ne pouvant être son propre voisin. La figure 1.16 présente un mélange découpé en 12 échantillons et la matrice de voisinage associée à la distance  $r=1$ . Les coefficients d'autocorrélation peuvent alors être calculés selon le modèle de Moran ou de Geary.

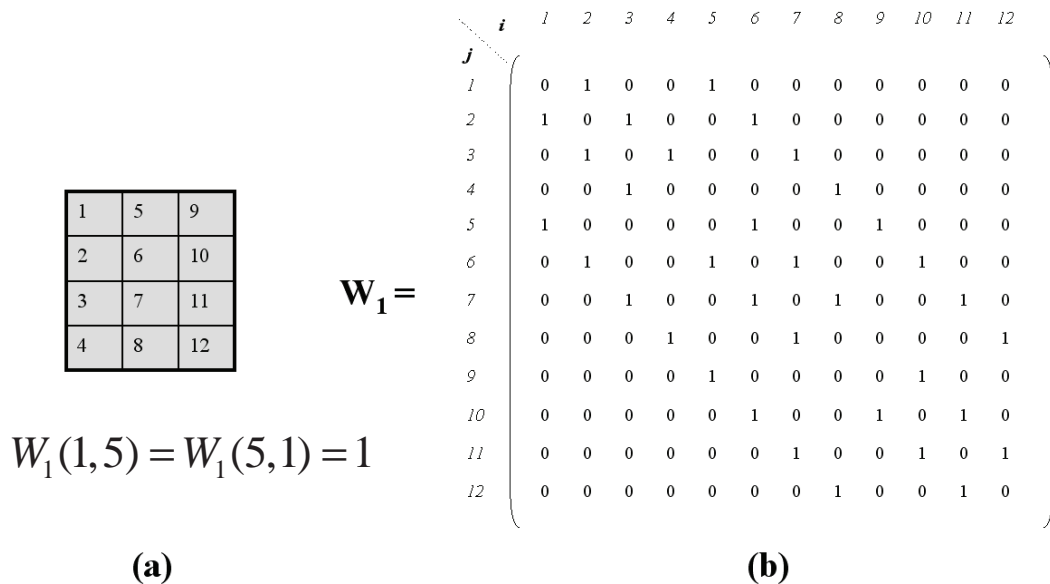


FIGURE 1.16 – Représentation d'un mélange découpé en 12 échantillons (a) et matrice de voisinage correspondante à la distance  $r=1$ (b).

Modèle de Moran :

L'indice de Moran est calculé grâce à l'équation suivante :

$$I(r) = \frac{n * \sum_i \sum_j w_{ij} (x_i - \bar{x}) * (x_j - \bar{x})}{S_0 * \sum_i (x_i - \bar{x})^2} \quad (1.6)$$

avec :

---

2. il est possible de pondérer la matrice en fonction de la taille des échantillons si ceux-ci n'ont pas une taille égale (on parle alors de matrice de poids)

- $w_{ij}$  : éléments de la matrice de voisinage  $W_r$  à la distance  $r$ ,
- $x_i$  : composition de l'échantillon  $i$  en constituant clé,
- $\bar{x}$  moyenne de la composition des  $n$  échantillons en constituant clé,
- $S_0 = \sum_i \sum_j w_{ij}$ .

L'indice de Moran varie entre  $-1$  et  $1$ . Quand deux échantillons proches ont tous les deux des concentrations éloignées de la moyenne, le produit croisé sera important. Au contraire un produit faible traduira le fait que les échantillons ont des concentrations très proches de la moyenne. En d'autres termes, un indice  $I$  important indique une forte autocorrélation spatiale.

Modèle de Geary :

Le coefficient de Geary est basé, non pas sur un produit croisé, mais sur la différence directe entre les compositions des échantillons :

$$c(r) = \left(\frac{n-1}{2 * S_0}\right) * \frac{\sum_i \sum_j w_{ij} (x_i - x_j)^2}{\sum_i (x_i - \bar{x})^2} \quad (1.7)$$

L'indice de Moran est un indicateur plus global, alors que le coefficient de Geary est plus sensible pour les différences de composition dans des voisinages proches (Dale et al., 2002).

Le coefficient de Geary varie entre 0 et 2. La valeur théorique de 1 indique que les échantillons sont spatialement non corrélés entre eux. Une valeur plus petite que 1 indique une autocorrélation positive, et une valeur plus grande que 1 exprimera une autocorrélation négative ("les échantillons se repoussent").

Des échantillons séparés d'une distance  $r$ , ayant systématiquement des compositions proches, seront responsable d'une **autocorrélation positive** à la distance  $r$ . L'autocorrélation positive traduit donc un lien direct entre les compositions des échantillons.

À l'inverse, des échantillons ayant systématiquement des compositions éloignées engendreront une **autocorrélation négative**.

**L'absence d'autocorrélation** traduira une dispersion aléatoire des échantillons autour de la teneur moyenne.

## 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

À notre connaissance, aucun autre article à ce jour n'a utilisé l'autocorrélation spatiale pour évaluer la structure d'un mélange de poudre. Nous tenterons de pallier ce manque dans le chapitre 5.

Aujourd'hui l'échelle de ségrégation est encore très peu utilisée pour évaluer la qualité d'un mélange à partir de données expérimentales, sans doute du fait d'un manque de visibilité physique de cet indice, et surtout à cause de l'important effort d'analyse que son application requiert (analyse de la totalité des échantillons d'un mélange, idéalement à plusieurs échelles d'observation (Hogg, 2003)). Le développement de nouvelles techniques d'analyse en-ligne (analyse d'image, spectroscopie PIR ou Raman...) rendent aujourd'hui possible l'analyse d'un grand nombre d'échantillons dans des temps très courts. L'échelle de ségrégation pourra donc devenir un outil intéressant pour quantifier la structure et l'homogénéité d'un mélange de poudre dans les années à venir.

### 1.3.3 La mise en place d'une procédure d'échantillonnage

La procédure d'échantillonnage détermine la taille et le nombre d'échantillons à prélever et la manière de réaliser ces prélèvements pour minimiser les erreurs. La taille idéale des échantillons a déjà été discutée à la section 1.3.1, (page 26) nous rappelons seulement qu'elle doit dans la mesure du possible être égale à l'échelle d'observation.

#### 1.3.3.1 Nombre d'échantillons à analyser

Toute procédure efficace et précise d'échantillonnage doit générer un nombre suffisant d'échantillons pour caractériser le mélange en évitant le prélèvement et l'analyse d'échantillons redondants. Un nombre plus important d'échantillons conduit généralement à plus de précision dans les résultats mais l'analyse implique alors des coûts supplémentaires en particulier si elle est destructive. L'objectif d'une procédure d'échantillonnage est donc d'obtenir des résultats fiables avec le nombre minimum d'échantillons.

Considérons un mélange de poudres, divisé en  $Z$  échantillons possibles, dont la taille est égale à l'échelle d'observation du mélange. Si ces  $Z$  échantillons sont entièrement prélevés et analysés, l'écart type  $\sigma$  de la distribution des compositions d'un constituant clé du mélange permet de déterminer l'intensité de ségrégation et d'évaluer ainsi la qualité du mélange.

Cependant il est parfois impossible d'étudier la totalité du mélange et une erreur est commise en ne prélevant que n échantillons parmi les Z possibles. Elle sera d'autant plus importante que le nombre d'échantillons prélevés, n, sera faible. Il s'agit donc en réalité d'estimer l'erreur maximale ne portant pas préjudice à l'évaluation de la qualité du mélange (Harnby, 1985).

La moyenne et l'écart-type sur les n échantillons prélevés peuvent être calculés par :

$$x_m = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (1.8)$$

et

$$s^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - x_m)^2 \quad (1.9)$$

avec :

- $x_m$  : moyenne des échantillons prélevés
- $s^2$  : variance observée

En répétant l'échantillonnage un grand nombre de fois, une distribution de la variance de la composition peut être tracée (voir figure 1.17)

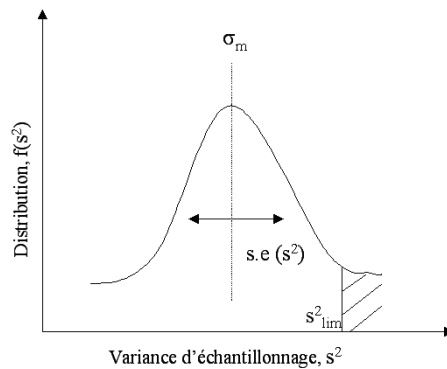


FIGURE 1.17 – Courbe de distribution de la variance d'échantillonnage.

Si l'échantillonnage n'a introduit aucun biais, le pic de cette courbe est égal à la variance vraie du mélange  $\sigma_{mel}$  et l'écart-type de la variance  $s.e(s^2)$  peut être calculé. L'aire sous la courbe exprime la probabilité d'avoir une variance supérieure à  $s_{lim}^2$  (variance maximale autorisée pour que le mélange soit considéré comme acceptable).

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

**Si le nombre d'échantillons prélevés est supérieur à 100 :** la courbe de distribution des variances peut être estimée par une loi normale et  $s^2$  vérifie l'équation suivante :

$$s^2 = \sigma_{mel}^2 \pm t * s.e(s^2) \quad (1.10)$$

avec :

$$s.e(s^2) = s^2 * \sqrt{\frac{2}{n}} \quad (1.11)$$

La valeur de  $t$  est déterminée à partir des tables de distribution de Student au degré de confiance souhaité.

**Si le nombre d'échantillons prélevés est inférieur à 100 :** La courbe de distribution des variances sera mieux estimée par une distribution du  $\chi^2$ . Au contraire des limites basées sur la loi normale, les bornes supérieures et inférieures ne sont pas symétriques (Poirier, 1992).

$$\sigma_{inf}^2 = s^2 * \frac{n-1}{\chi_{inf}^2} \quad (1.12)$$

$$\sigma_{sup}^2 = s^2 * \frac{n-1}{\chi_{sup}^2} \quad (1.13)$$

Les valeurs de  $\chi_{inf}^2$  et  $\chi_{sup}^2$  peuvent être obtenues à partir des tables de distribution du  $\chi^2$ . La figure 1.18 présente l'évolution, avec le nombre d'échantillons, des valeurs des bornes d'un intervalle de confiance (normé par la variance vraie) à 95%. Cette figure met clairement en évidence le caractère asymétrique de l'évolution de  $\chi_{inf}^2$  et  $\chi_{sup}^2$ .

Dans le cas où les échantillons retirés du mélange ne sont pas normalement distribués, aucune estimation de la précision ne peut être réalisée. En pratique, les profils de distribution non normaux se retrouvent seulement pour les mélanges fortement ségrégués. Plus la qualité du mélange s'améliore, plus la distribution de la moyenne des échantillons se rapproche d'une distribution normale.



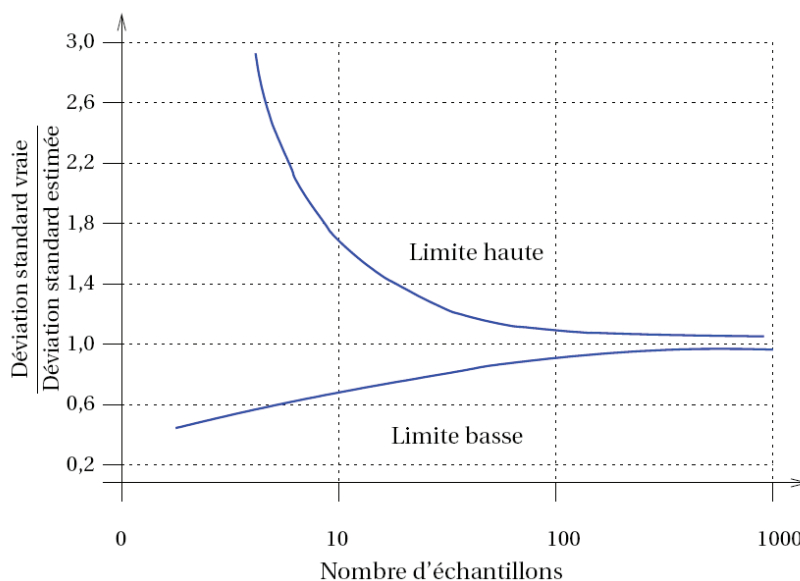


FIGURE 1.18 – Évolution de  $\chi_{inf}^2$  et  $\chi_{sup}^2$  en fonction du nombre d'échantillons.

### 1.3.3.2 Méthode de prélèvement des échantillons

Le prélèvement des échantillons se déroule généralement en plusieurs étapes (voir figure : 2.21) :

- L'intégration : consiste en la sélection de points de prélèvement. Différentes lois d'intégrations sont possibles.
- La découpe : consiste en la matérialisation géométrique de ces points.
- La prise : consiste en la matérialisation physique de ces points.

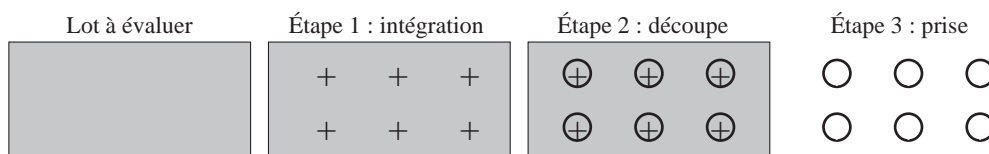


FIGURE 1.19 – Les trois temps d'un prélèvement.

L'étape de découpe et l'étape de prise d'échantillons sont deux sources possibles d'erreur. Du fait du caractère discret de la poudre, la découpe ne peut être idéale. Les particules se trouvant sur la ligne de démarcation de l'échantillon ne se partagent pas. Elles sont assignées -ou non- à l'échantillon mais engendrent dans tous les cas une erreur. La prise physique des échantillons implique l'utilisation d'un outil préleveur dont le passage induit forcément une perturbation dans l'organisation de la poudre. Certaines méthodes

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

d'analyse en-ligne ne nécessitent pas l'étape de prise des échantillons et limitent donc les erreurs associées (Gy, 1996).

- **Intégration :**

L'objectif de tout mélangeur est de tendre vers un mélange ordonné ou aléatoire (voir section 1.2.1, page 19). De ce fait il est préférable de choisir une loi d'intégration basée sur un processus aléatoire afin de minimiser le biais dans la sélection des échantillons. On peut ainsi choisir une des lois suivantes (voir figure 1.20) :

**Loi d'intégration au hasard** : on réalise  $n$  prélèvements sélectionnés au hasard le long de la veine.

**Loi d'intégration systématique avec implantation au hasard** : on sélectionne au hasard un point  $M$  comme origine et on réalise  $n$  prélèvements espacés d'une distance régulière du point  $M$ . La fréquence de prélèvement ne doit pas coïncider avec une fréquence du procédé (Harnby, 1985).

**Loi d'intégration stratifié au hasard** : On segmente la veine en  $n$  segments égaux et on réalise un prélèvement au hasard par segment.

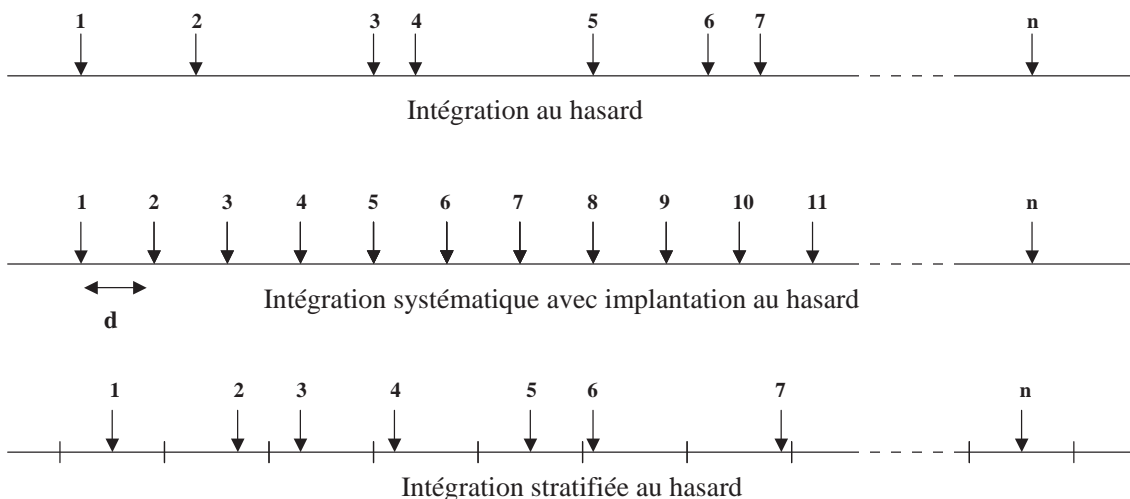


FIGURE 1.20 – Les différentes lois d'intégration.

### • **Prise des échantillons**

Lorsque l'utilisation d'une méthode d'analyse en ligne n'est pas possible, la prise physique des échantillons est nécessaire. Dans l'industrie, elle a très souvent été réalisée de manière statique, c'est à dire lorsque les poudres sont au repos, comme au sein de la cuve à l'issue d'une opération de mélange. Les prélèvements sont alors effectués à l'aide de sondes voleuses. Elles sont faciles à manipuler et permettent de retirer des échantillons de masses faibles. Cependant, Muzzio et al. (2003), soulignent que leur passage au sein du lit de poudre engendrent de nombreuses erreurs. De même Berman et al. (1996) montre qu'une même sonde utilisée dans différentes conditions ou deux sondes utilisées dans des conditions semblables peuvent extraire des échantillons très différents à partir de la même population et donc conduire à des résultats d'analyse contradictoires. De plus, elles ne peuvent être utilisées que pour retirer un petit nombre d'échantillons du mélange (inférieur à 30, au-delà les perturbations engendrées dans le lit de poudre sont trop importantes).

Malgré ces inconvénients, les sondes voleuses restent encore majoritairement utilisées car elles répondent à des besoins particuliers de l'industrie. Elles permettent par exemple de vérifier, au sein d'un mélangeur batch, que le mélange a atteint les propriétés requises avant l'opération de vidange pour pouvoir, au besoin, augmenter le temps de mélange. Dans ce cas, une compréhension des mécanismes de mélange au sein du mélangeur et une connaissance des limites de la méthode d'échantillonnage peuvent augmenter de manière significative la précision de cette dernière. Ainsi si le mélange radial est plus difficile à atteindre que le mélange axial, on privilégiera l'étude des échantillons au bord et au centre du mélangeur afin de limiter les perturbations (Muzzio et al., 2003).

Pour limiter les erreurs dues à l'échantillonnage statique, il est recommandé de chercher une étape du procédé où le mélange est en mouvement. C'est le cas par exemple lors de la vidange d'un mélangeur ou lors du transport du mélange. On aura alors recours à un échantillonnage dynamique. Le dispositif le plus simple peut consister à prélever une section de la poudre sur une bande transporteuse. Les perturbations liées à la prise des échantillons sont alors réduites. Pour l'industrie, différents dispositifs ont été développés. Nous pouvons citer les systèmes de prélèvement en sortie de bande transporteuse ou par diviseur rotatif (cf figure 1.21). Le principal inconvénient de ces systèmes industriels est qu'ils ne permettent pas en général la prise d'échantillons de masse faible. Ils sont également peu adaptés aux lots pulvérulents ou aux lots cohésifs.

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

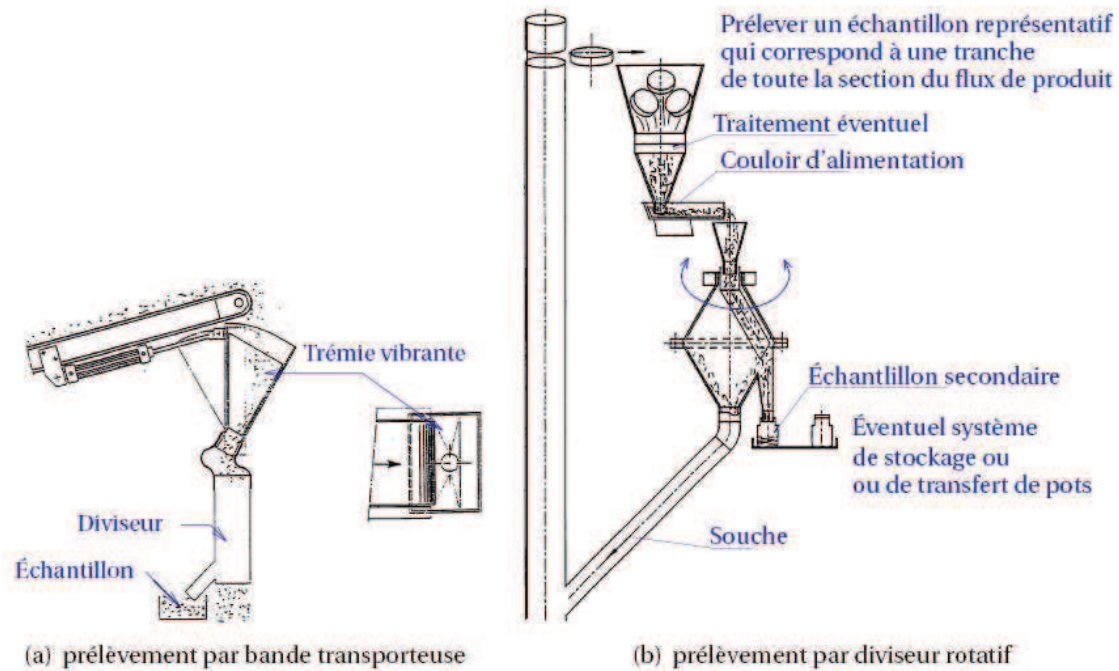


FIGURE 1.21 – Exemple de systèmes industriels de prélèvement en sortie de bande transporteuse (a) et de prélèvement par diviseur rotatif (b) proposé par Forratechnic.

#### 1.3.4 Méthode d'analyse de la composition des échantillons

Les méthodes d'analyse de la composition d'un échantillon sont basées sur l'étude de propriétés physiques ou chimiques (couleurs, taille...etc) d'un ou de plusieurs des constituants du mélange. Par le biais d'un étalonnage, il est possible de calculer la composition de chaque échantillon. On peut également suivre directement les variations de la propriété choisie à la place de la composition pour analyser l'homogénéité du mélange. La propriété physique ou chimique retenue doit présenter un contraste important entre les poudres pour aboutir à une précision suffisante.

Les progrès technologiques actuels ont permis l'adaptation de nombreuses techniques d'analyse en ligne (in-situ ou "in-line"). Les méthodes in-situ consistent en une mesure intégrale des propriétés du matériau au niveau d'une coupe d'un réacteur, d'une conduite, ou à la paroi d'un mélangeur. Pour les mesures "in-line", le matériau à analyser défile devant une sonde, et une mesure rapide et locale de la propriété est réalisée. Ces méthodes

évitent l'étape de prise physique de l'échantillon et permettent généralement l'analyse d'un grand nombre d'entités tout en réduisant considérablement les temps d'analyse.

### 1.3.4.1 Les méthodes spectroscopiques :

Les méthodes spectroscopiques (optique, UV, 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. L'inconvénient principal de ces techniques réside dans la quantité d'information contenue dans un seul spectre (informations chimiques et physiques). Il est souvent difficile d'interpréter ces spectres à cause du manque de corrélation structurale entre l'information pertinente et les données physico-chimiques.

#### • Spectroscopie optique et UV :

Ces méthodes reposent sur l'utilisation simultanée de deux fibres optiques. La première fibre transmet la lumière alors que la seconde recueille la lumière réfléchie et la transforme en un signal de tension. La grandeur physique mesurée est l'intensité de lumière réfléchie liée à la composition du mélange.

Cette technique optique a été appliquée pour la première fois sur des poudres par Gray (1957). 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 la lumière réfléchie par une couche de particules permet de déterminer la composition de l'échantillon analysé à partir d'une courbe d'étalonnage déterminée préalablement. Asthon et al. (1966) ont également développé un dispositif similaire présenté à la figure 1.22 pour l'étude d'un mélange de particules de tailles identiques ( $150 \mu\text{m}$ ) et de couleurs différentes (rouge et blanc). Enfin nous pouvons également citer les travaux de Harwood et al. (1972) où cette même méthode a été utilisée 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 1.23).

#### • Spectroscopie proche infra-rouge (PIR)

Les radiations proche-infra-rouge ont des longueurs d'onde qui se situent dans la région du spectre électromagnétique comprise entre  $0,7$  à  $2,5 \mu\text{m}$  soit pour des nombres d'onde compris entre  $14290$  à  $4000 \text{ cm}^{-1}$ . Cette région correspond aux harmoniques de vibrations

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

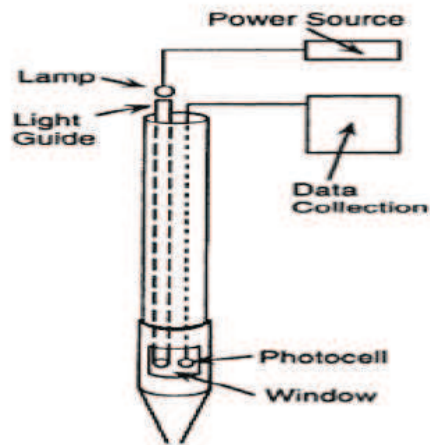


FIGURE 1.22 – Sonde optique développée par Asthon et al. (1966).

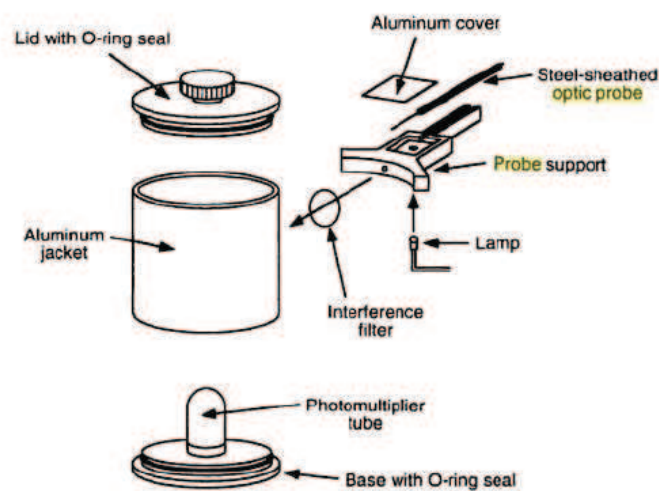


FIGURE 1.23 – Fibre optique utilisée par Harwood et al. (1972) pour étudier le mélange des poudres.

d'un grand nombre de liaisons chimiques ( C-H; O-H et N-H). L'amplitude des pics d'absorption est souvent moins importante que dans le domaine IR moyen mais leur nombre est restreint, éliminant ainsi une partie importante du bruit que l'on retrouve sur ce type de mesure. Ces 20 dernières années, les améliorations des appareils de mesure optronique et du traitement des données ont ouvert la porte à l'utilisation des techniques PIR pour l'étude de l'homogénéité d'un mélange de poudres. La technique la plus utilisée est la réflexion diffuse PIR. Le spectre qui en découle est non seulement le résultat de l'absorption des harmoniques de vibration, mais aussi de la réfraction et de la dispersion du rayon incident (Berntsson et al., 2000). La part de la dispersion dans le signal final est beaucoup plus importante que la part de l'absorption. Afin de pouvoir utiliser le spectre pour le suivi de l'homogénéité, il faut supprimer cette composante grâce à une étape de calibration préalable. Tout changement dans la composition du mélange implique alors une nouvelle calibration (Berntsson et al., 2002).

Un traitement mathématique des données permet alors de prédire la concentration en fonction du spectre obtenu (Berntsson et al., 1997). Wu et al. (2009) ont notamment développé un modèle pour analyser la composition de différents mélanges pharmaceutiques multicomposants avec des erreurs associés de 9.5%, sur 9 formulations différentes testées.

Les mesures peuvent être réalisées hors ligne suite au prélèvement d'échantillons, en ligne ou in-situ. Les travaux de Berntsson et al. (2002) illustrent cette dernière possibilité sur un mélangeur Nauta<sup>®</sup> (voir figure 1.24) en couplant un spectromètre proche infra-rouge avec une sonde à fibre optique. Le rôle de cette fibre optique est de laisser passer le rayonnement proche infrarouge envoyé par le spectromètre. Dans ce type de configuration, seule la poudre proche de la sonde est donc analysée. De plus, un point supplémentaire est à prendre en compte : l'échantillon est en mouvement. Le signal obtenu dans ce cas-là est donc fonction de la vitesse de balayage de l'appareil, du mouvement et de l'hétérogénéité de l'échantillon compliquant de manière significative la mesure (Berntsson et al., 2000).

Les méthodes d'analyses par spectroscopie proche infra-rouge font depuis quelques années, l'objet de nombreuses recherches car elles semblent à première vue adaptable à de nombreux systèmes particuliers. Cependant, les étapes de calibration et de traitement du signal sont assez fastidieuses. De plus, pour une utilisation en ligne, seul un point du mélange est analysé au cours du temps, la taille des échantillons est donc très faible ce

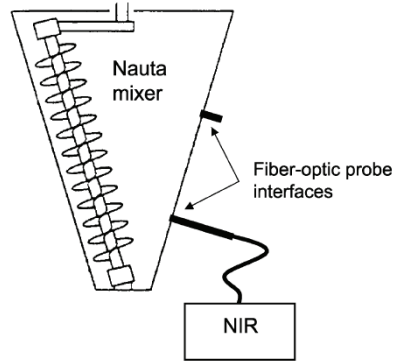


FIGURE 1.24 – Exemple de dispositif expérimental de mesure de l'homogénéité par méthode de réflectance diffuse NIR au sein d'un mélangeur Berntsson et al. (2002).

qui peut conduire à une sous estimation de l'état de mélange.

#### • Spectroscopie Raman

En spectrométrie Raman, l'analyse repose sur la réponse d'un matériau à une excitation. Porté à un niveau énergétique virtuel par une puissante source lumineuse monochromatique de type LASER, il réémet ensuite une radiation qui est collectée puis analysée par un détecteur adéquat. Ce type de mesure peut être adapté en ligne avec un dispositif comme présenté sur la figure 1.25 : les radiations d'une puissante source LASER 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.

Kachrimanis et al. (2007) ont utilisé la spectroscopie FT-Raman associée à une régression PLS (Partial Least Squares regression) pour analyser quantitativement un mélange de poudres composé de deux formes différentes de paracétamol. Les données expérimentales obtenues ont été exploitées par différents algorithmes statistiques à savoir la méthode OSC "orthogonal signal correction", la méthode SNV "standard normal variate transformation", et la méthode MSC "multiplicative scatter correction" dans le but de prédire la composition du mélange. 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 1.26. Le choix de la technique de prétraitement des spectres Raman joue un rôle primordial dans la détermination de la qualité des résultats obtenus par ré-



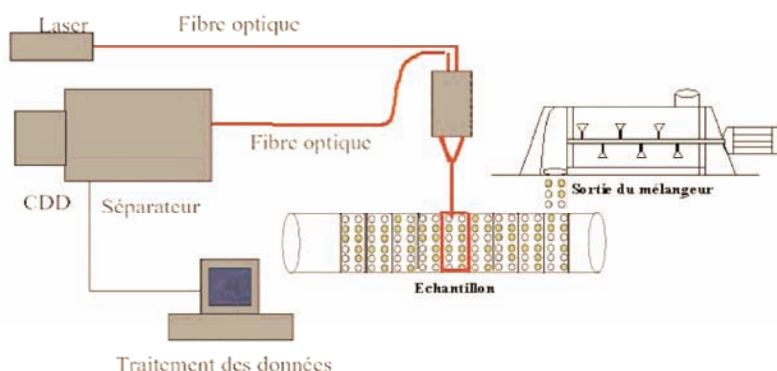


FIGURE 1.25 – Schéma de principe de l'analyse des poudres en ligne par la spectroscopie Raman d'après Ammarcha (2010).

gressions PLS. Dans le cas de cet exemple, la méthode OSC donne les meilleurs résultats sur toute la gamme des concentrations utilisées.

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

In parentheses, the numbers of latent variables used in each model are given.

FIGURE 1.26 – Prédiction de la concentration du paracétamol par spectroscopie Raman dans un mélange en utilisant différents algorithmes statistiques d'après Kachrimanis et al. (2007).

### 1.3.4.2 Les méthodes par analyse d'images

L'analyse d'image pour le suivi de l'homogénéité des mélanges de poudre a également connu une forte expansion ces dix dernières années, en témoignent les nombreux articles publiés sur ce sujet. Le suivi de l'homogénéité est possible si et seulement si les matériaux

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

à analyser sont distinguables par une différence de couleur<sup>3</sup>.

Le dispositif expérimental consiste généralement en une caméra numérique reliée à un ordinateur et une lampe pouvant éclairer la scène de manière puissante afin de minimiser les erreurs de couleurs sur l'image finale dues à l'éclairage. La figure 1.27 présente le dispositif utilisé par Muerza et al. (2002) en sortie d'un mélangeur statique.

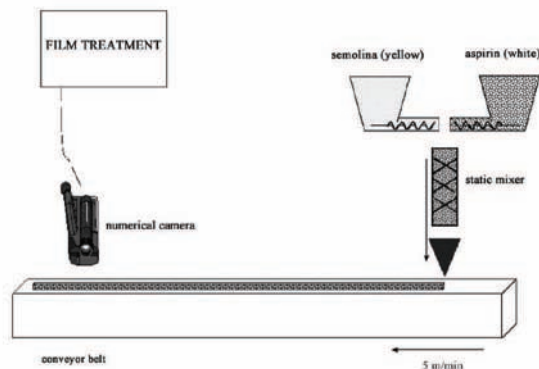


FIGURE 1.27 – Dispositif expérimental de mesure de l'homogénéité par analyse d'image utilisé par Muerza et al. (2002).

Du fait de la simplicité du dispositif, l'analyse a le plus souvent lieu en ligne, la caméra étant placée la plupart du temps en sortie du mélangeur sur un convoyeur. Seule la couche supérieure est visionnée, on fait alors l'hypothèse que cette couche est représentative du volume total de poudre. Une fois l'acquisition réalisée, le film est divisé en différentes images (procédure d'échantillonnage). Les images sont alors traitées.

Le premier traitement consiste souvent en un cadrage. Seule la partie concernant le mélange de poudres est gardée. Les parties de l'image contenant des détails environnants sont supprimées afin de ne pas biaiser les résultats. L'image numérique est constituée de pixels contenant chacun une information de couleur. Une image en couleurs contient trop d'informations non-exploitable dans le cadre de la définition de l'homogénéité, il est

---

3. Lorsque les poudres ont des couleurs quasi similaires, il est toujours possible, pour l'étude expérimentale de remplacer une des deux poudres par un traceur dont les propriétés (forme, densité, taille de particules) sont similaires à celle de la poudre mais dont la couleur est différente (Gosselin et al., 2008). Cependant, il est quasi impossible de trouver un marqueur dont l'ensemble des caractéristiques conditionnant l'homogénéité soient similaires à celles du matériau d'origine. Ainsi une approximation sur l'une au moins des caractéristiques devra réalisée.

nécessaire de la transformer en niveaux de gris. L'image résiduelle peut être traitée telle qu'elle ou binéarisée grâce à un processus de seuillage. L'image est donc codée par une matrice de données. Une calibration préalable permet alors de remonter à la composition de l'échantillon.

Realpe and Velazquez (2003) ont étudié par analyse d'image différents mélanges de lactose avec du chocolat ou de la cellulose dans le but de déterminer le meilleur modèle de calibration. Deux modèles ont été testés et comparés avec les résultats obtenus par spectroscopie PIR.

Le premier s'appuyait sur une analyse univariable suivie d'une régression polynomiale, en utilisant le niveau de gris moyen comme variable indépendante; le second consistait en une analyse en composante principale en utilisant les fréquences de chaque valeur de niveaux de gris comme variables indépendantes, suivi de la méthode des moindres carrés. La figure 1.28 présente la comparaison entre les résultats prédits et les résultats observés par ces deux modèles et ceux obtenus par une analyse proche infra-rouge. Le modèle basé sur l'analyse de la composante principale semble conduire à de meilleurs résultats.

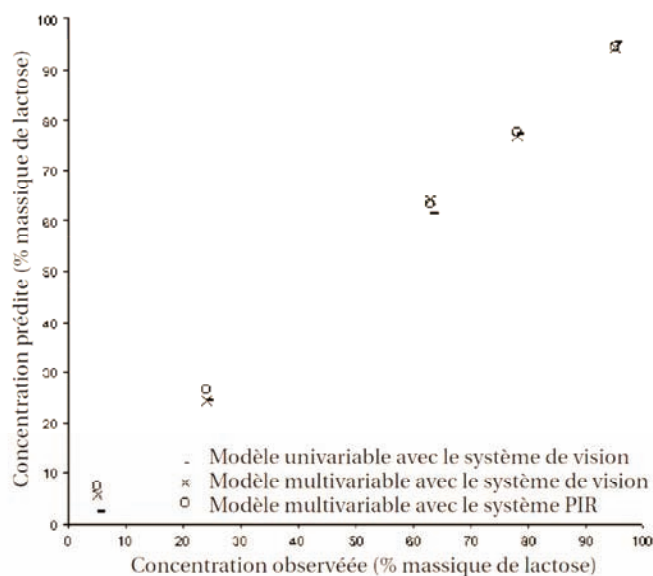


FIGURE 1.28 – Comparaison entre les concentration prédites par analyse d'image suivant le modèles de calibration univariable et l'analyse en composante principale et celles prédites par spectroscopie PIR d'après Realpe and Velazquez (2003).

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

Nous pouvons également citer ici les travaux de Demeyre (2007) et Ammarcha (2010) qui ont utilisé cette technique d'analyse d'images pour mesurer l'homogénéité d'un système binaire de particules de couscous et de semoule. Les particules de semoule ont été colorées en noir pour les distinguer des particules de couscous (blanches). La figure 1.29 présente le dispositif expérimental utilisé par Demeyre (2007). La caméra est placée en sortie d'un mélangeur convectif planétaire batch : le Triaxe<sup>®</sup>. Le dispositif expérimental est piloté par un ordinateur et un logiciel développé sous Labview. Les travaux d'Ammarcha (2010) s'appuient sur un dispositif similaire mais à la sortie d'un mélangeur continu.

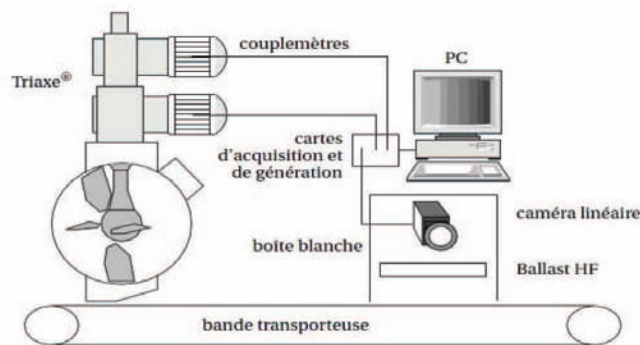


FIGURE 1.29 – Schéma du dispositif expérimental utilisé par Demeyre (2007).

#### 1.3.4.3 Les méthodes capacitives

Ces méthodes reposent sur la mesure de la capacité électrique du mélange passant entre deux électrodes d'un condensateur. Cette mesure, moyennant l'hypothèse que le mélange est homogène en tout point d'une section donnée, permet ensuite de remonter à la composition du mélange selon la théorie du milieu effectif :

$$\sum_{i=1}^n \frac{\epsilon_m - \epsilon_i}{\epsilon_i + 2\epsilon_m} * p_i = 0 \quad (1.14)$$

- $p_i$  : proportion volumique du constituant  $i$
- $\epsilon_i$  : permittivité diélectrique à l'état dense du matériau  $i$
- $\epsilon_m$  : permittivité diélectrique du mélange des  $n$  constituants de proportion  $p_i$

La mesure ne dépend que de la géométrie du capteur et de la permittivité du milieu entre les deux électrodes (fonction de la composition du mélange). La figure 1.30 présente le dispositif expérimental développé par Ehrhardt et al. (2005) pour suivre en ligne l'évolution de composition d'un mélange de sucre et de carbure de silicium (SiC) lors de

son transport et de son passage dans un mélangeur statique. Cette méthode présente des résultats assez encourageants, à condition que les produits étudiés possèdent des caractéristiques électriques bien distinctes et que leurs concentrations respectives ne saturent pas le capteur.

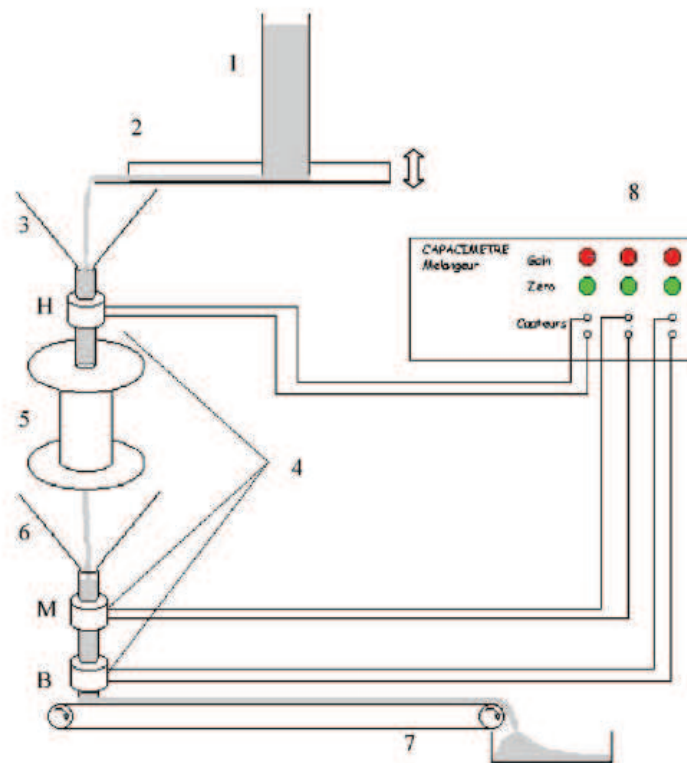


FIGURE 1.30 – Installation expérimentale utilisée par Ehrhardt et al. (2005) montrant l'état initial du mélange (1), un canal vibrant (2), un tunnel supérieur (3), des capteurs (4), un mélangeur statique (5), un tunnel inférieur (6), un transporteur par bande (7) et un capacimètre (8).

#### 1.3.4.4 Les méthodes thermiques

Ces méthodes se basent sur l'étude d'une des propriétés de la poudre soumise à des contraintes thermiques.

- **Mesure par calorimétrie différentielle à balayage : DSC**

Cette méthode est basée sur la mesure des flux thermiques échangés lors de transformations physiques (exemple : transition de phase) ou de réaction (exemple : polymérisation) entre un échantillon et une référence. Elle permet notamment de visualiser :

### 1.3 Caractériser l'état d'un mélange

---

- La température de transition vitreuse ( $T_{g0}$ ) des polymères et des verres métalliques.
- Les températures de fusion et de cristallisation.
- Les enthalpies de réaction de polymérisation.

À partir des enthalpies massiques de transition, il est possible de recalculer à la masse de constituant ayant réagi au sein de l'échantillon (Wunderlich, 1990). En effet, durant la phase de transition, la température de l'échantillon étudié va rester stable pendant un temps  $t_i$ . La relation suivante est alors vérifiée :

$$\int_t^{t+t_i} \frac{dQ}{dt} = m * \Delta H_i$$

avec

- $\Delta H_i$  : Enthalpie massique de transition [ $\text{J.kg}^{-1}$ ]
- $\frac{dQ}{dt}$  : Flux de chaleur échangé [ $\text{J.s}^{-1}$ ]
- $m$  : Masse de produit intervenant dans la transition [kg]
- $t$  : Temps [s]

Cette méthode est particulièrement adaptée pour des masses très faibles d'échantillon. Certains facteurs propres à l'échantillon, outre sa nature chimique, affectent les mesures de DSC à savoir : la taille et la forme des particules constituant l'échantillon, la densité du conditionnement, le degré de cristallisation. Des précautions sont donc à prendre pour limiter les risques d'erreurs.

#### • Mesure par effusivité thermique

Lorsqu'une poudre présente un fort contraste de conduction avec les autres constituants du mélange, la mesure de l'effusivité thermique peut permettre de déterminer la concentration, après calibration (Mathews et al., 2002). L'effusivité thermique se définit par :

$$e_t = \sqrt{k * \rho * c_p} \quad (1.15)$$

avec

- $e_t$  : effusivité thermique [ $\text{J.m}^{-2}.\text{K}^{-1}.\text{s}^{-1/2}$ ]
- $k$  : conductivité thermique [ $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ]
- $\rho$  : masse volumique [ $\text{kg.m}^{-3}$ ]
- $c_p$  : capacité calorifique [ $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ]

Léonard et al. (2008) ont utilisé cette méthode pour déterminer le temps de mélange optimal de plusieurs mélanges de poudres pharmaceutiques. Les résultats ont été comparés à ceux obtenus par une mesure spectroscopique UV et de masse volumique tassée. Ils concluent sur l'intérêt de ces analyses pour suivre l'homogénéité de mélange peu dilué (concentration du traceur > 10%) en prenant toutefois garde à la porosité des poudres dont l'impact sur l'effusivité est non négligeable.

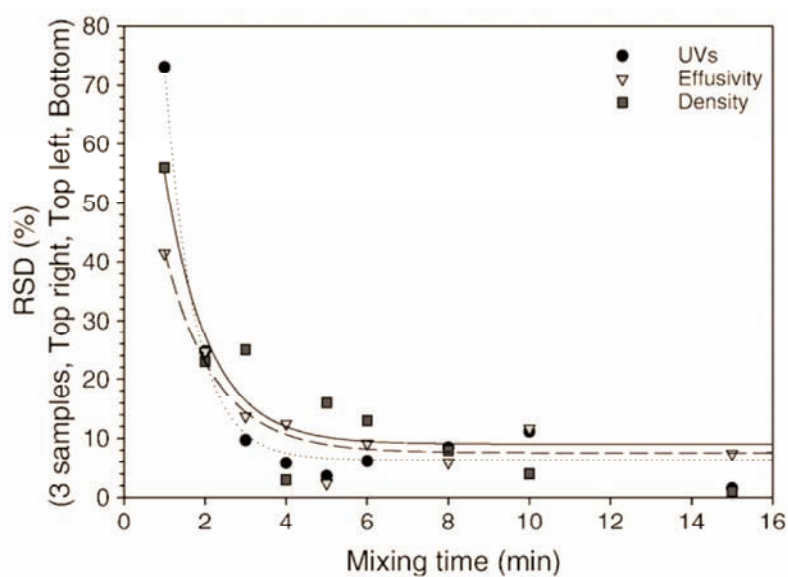


FIGURE 1.31 – Évolution de l'écart-type des mélanges obtenu pour différents temps de mélanges par la mesure de l'effusivité thermique, de la masse volumique tassée et de la spectroscopie UV d'après Léonard et al. (2008).

### 1.3.5 Critère d'acceptation de l'homogénéité d'un mélange

À partir de la détermination des concentrations des échantillons, l'intensité et éventuellement l'échelle de ségrégation peuvent être calculées et une information quantitative sur la qualité d'un mélange est obtenue. Un industriel doit alors pouvoir juger si la qualité du mélange est suffisante pour l'usage auquel le produit est destiné.

Afin d'apporter des éléments de réponse à cette question délicate, le "working group for blend uniformity testing" (Boehm, 2001) propose d'utiliser les critères suivants :

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

---

- La masse de l'échantillon ne doit pas excéder trois fois la masse d'une dose unitaire de produit final (exemple comprimé pharmaceutique) .
- 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  $\pm 7,5 \%$ .

Les mélanges pharmaceutiques sont actuellement validés -ou non- sur cette base. Les mélanges non conformes sont détruits ce qui engendre parfois des coûts très importants.

Pour des besoins industriels spécifiques, une adaptation de ces critères peut être envisagée en s'appuyant par exemple sur le cahier des charges du produit final.

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

### 1.4.1 Cinétique de mélange

Dans les paragraphes précédents, nous avons mis en évidence les principaux mécanismes responsables de l'état de mélange et nous avons présenté des outils permettant de le caractériser. Au sein d'un mélangeur batch, l'état de mélange évolue sans cesse en fonction du temps d'opération pour atteindre un état que l'on souhaite optimal.

Le suivi de l'évolution de l'écart type ou d'un indice de mélange avec le temps permet ainsi la construction d'une courbe cinétique à partir de laquelle il est possible d'identifier le temps de mélange optimal. Celui-ci peut correspondre au temps nécessaire pour atteindre une déviation minimum de 10% par rapport à l'écart-type minimum observé sur la courbe cinétique (Delaplace et al., 2004).

Il est préférable d'adimensionnaliser le temps de mélange optimal afin de pouvoir réaliser des comparaisons fiables entre différents types ou tailles de mélangeur (Delaplace et al., 2007). La solution la plus simple consiste à exprimer la durée d'opération en nombre de tours .

Mais l'étude des cinétiques de mélange ne se limite pas à la détermination du temps optimal, elles nous renseignent également sur les mécanismes ayant abouti à cet état (fi-



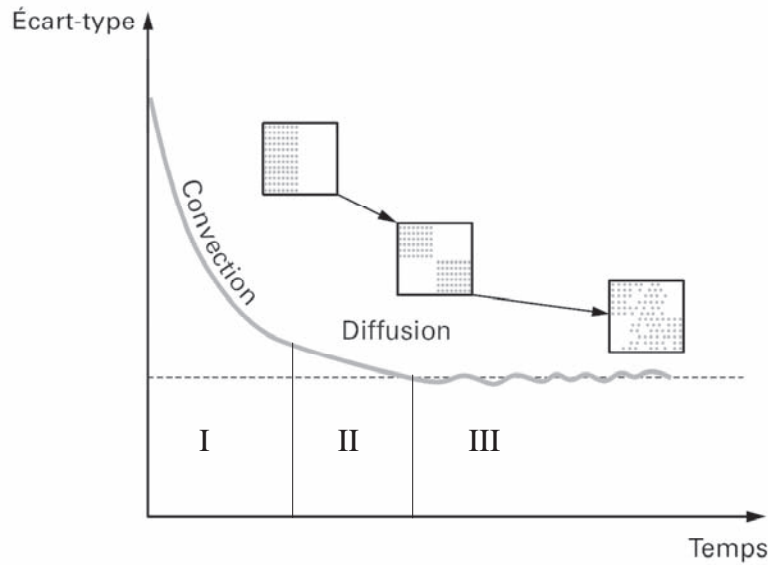


FIGURE 1.32 – Courbe cinétique caractéristique d'un procédé de mélange batch d'après Berthiaux (2002).

gure 1.32).

#### 1.4.1.1 Modèle cinétique avec et sans ségrégation

Cette courbe cinétique peut être découpée en trois portions :

- (I) : La courbe dans cette zone à une allure d'exponentielle décroissante caractéristique d'un mélange convectif prépondérant. En effet les mouvements convectifs engendrent des réarrangements pratiquement à l'échelle du mélangeur et ont pour effet immédiat des réductions de variance particulièrement importantes.
- (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 diffusionnel 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.

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

---

En réalité l'ensemble des mécanismes coexistent au sein du mélangeur pendant toute la durée de l'opération. Certains sont plus ou moins efficaces suivant l'état de mélange obtenu, c'est à dire du positionnement sur cette courbe.

La cinétique sur la première portion de la courbe peut s'exprimer par une équation de vitesse du premier ordre, avec M l'indice de mélange de Rose (1959).

$$\frac{dM}{dt} = A * (1 - M) \text{ avec } M = 1 - \frac{\sigma}{\sigma_0} \quad (1.16)$$

$\sigma$  étant l'écart type du mélange à l'instant t et  $\sigma_0$  l'écart-type du mélange à l'instant initial. Le coefficient A joue le rôle de constante de vitesse et quantifie la pente de la droite obtenue à l'étape initiale. Cette constante est fortement dépendante des conditions opératoires et des propriétés des poudres.

D'après Rose (1959), on peut représenter mathématiquement la variation de l'indice de mélange M en fonction du temps également pour les autres portions de la courbe en mettant en compétition deux potentiels, un potentiel de mélange (1-M) et un potentiel de ségrégation  $\Phi$ .

$$\frac{dM}{dt} = A * (1 - M) - B * \Phi \text{ avec } \Phi = \pm \sqrt{1 - M} \quad (1.17)$$

Avec M indice de mélange de Rose (voir équation 1.16); A constante cinétique en  $s^{-1}$  et B constante de ségrégation en  $s^{-1}$ .

Le potentiel de ségrégation peut être positif ou négatif selon la distribution spatiale des constituants. Par exemple, si les constituants sont de densités différentes, le potentiel est négatif si le composant le plus dense est placé au dessus. Réciproquement, le potentiel est positif si le composant le plus dense est initialement chargé au fond du mélangeur.

La résolution de l'équation 1.17 et la recherche de l'optimum permet de déterminer les temps de mélange optimaux.

$$\forall \Phi > 0 \Rightarrow M = \eta * [1 - (\frac{B}{A} + (1 - \frac{B}{A}) * \exp(-A * t))^2] \Rightarrow t_m = \frac{2}{A} * \ln(1 - \frac{B}{A}) \quad (1.18)$$

$$\forall \Phi < 0 \Rightarrow M = \eta * [1 - (\frac{B}{A} + (1 + \frac{B}{A}) * \exp(-A * t))^2] \Rightarrow t_m = \frac{2}{A} * \ln(1 + \frac{B}{A}) \quad (1.19)$$

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

### 1.4.1.2 Exemples d'étude de cinétique de mélange pour des mélangeurs de poudre

En guise d'illustration, nous pouvons citer les travaux de Berntsson et al. (2002) qui ont construit des cinétiques de mélange en suivant l'homogénéité du mélange grâce à la spectroscopie PIR au sein de mélangeur Nauta<sup>®</sup>. Les essais ont été réalisés à l'échelle laboratoire (essai LAB 2) et à l'échelle pilote (essai PROD).

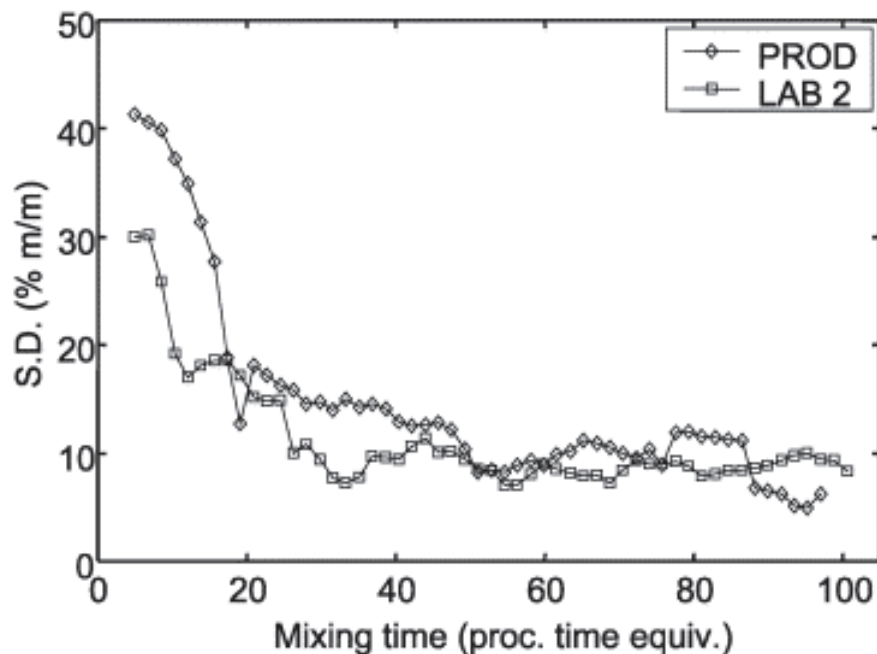


FIGURE 1.33 – Comparaison de l'évolution de l'écart-type de différents batches en fonction du temps de mélange pour un mélangeur à l'échelle laboratoire et un mélangeur à l'échelle laboratoire et pilote d'après Berntsson et al. (2002).

Sur la figure 1.33 on distingue 3 zones caractéristiques comme sur la figure 1.32 :

- Une première zone, pour un temps de mélange adimensionnalisé inférieur à 10 à l'échelle laboratoire et inférieur à 20 à l'échelle pilote,
- Une deuxième zone s'étendant jusqu'à un temps de mélange d'environ 45 pour les deux tailles de mélangeur,
- une troisième zone où l'on observe des fluctuations de la variance, beaucoup plus importantes d'ailleurs à l'échelle pilote.

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

---

Cependant, en fonction des mécanismes responsables de l'état de mélange, l'allure de la courbe peut être radicalement différente. Marigo et al. (2012) ont étudié les cinétiques de mélange, pour différentes vitesses de rotation, dans un mélangeur à tambour horizontal, un mélangeur à cerceaux et un mélangeur Turbula® (voir figure 1.34-a et 1.34-b sur la base de simulation DEM)<sup>4</sup> en s'intéressant à deux types de remplissage axial ou transversal (cf. figure 1.35).

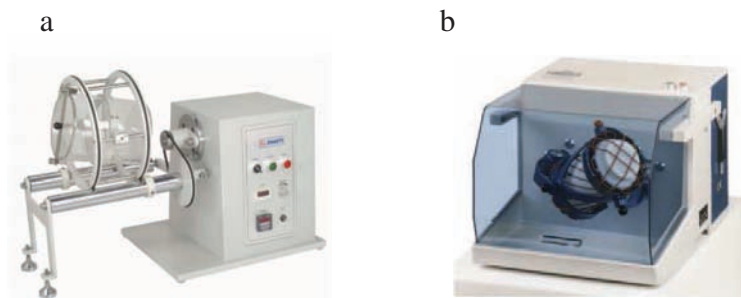


FIGURE 1.34 – Mélangeur à cerceaux(a) et mélangeur Turbula (b)

L'allure des courbes obtenue est très différente suivant les mélangeurs et le type de remplissage. Par exemple, sur la figure 1.36-a l'indice de ségrégation diminue très lentement pour un remplissage axial laissant supposer la présence de mécanismes de diffusion, et très fortement dans le cas d'un remplissage transversal, mettant en évidence la présence de mécanismes de convection. Bien que la différence soit moins nette, on peut observer des mécanismes similaires dans le mélangeurs à cerceaux (figure 1.36-b). Dans le cas du mélangeur Turbula®, seule la vitesse de rotation semble avoir une influence sur l'allure des courbes obtenues laissant supposer que le mélange est réalisé de manière identique dans les directions axiales et transversales mais que les mécanismes entrant en jeu sont différents suivant la vitesse de rotation.

Nous pouvons également citer ici les travaux de Losada Martin et al. (2004) qui ont construit des cinétiques de mélanges en mélangeur Turbula® T 2F pour un mélange de 50% de cellulose micro-cristalline et 50% de sel, deux produits cohésifs. La figure 1.37 présente les courbes obtenues aux vitesses de 22 tr.min<sup>-1</sup> et 46 tr.min<sup>-1</sup>. Dans les premiers

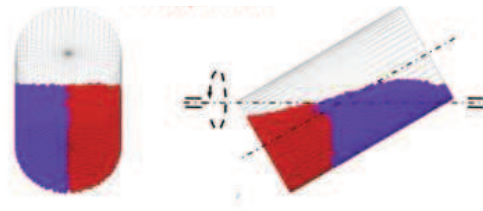
---

4. DEM : simulation numérique par la méthode des éléments discrets. Ces simulations permettent de suivre le mouvement d'un grand nombre de particules.

## Mélangeur à tambour rotatif



## Mélangeur à cerceaux



## Mélangeur Turbula

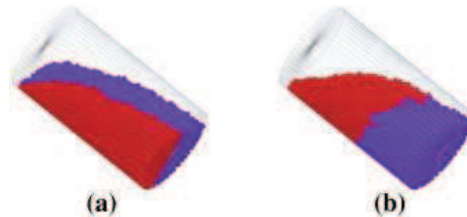


FIGURE 1.35 – Représentation des constituants au sein des 3 mélangeurs utilisés pour les simulations DEM : (a) remplissage transversal, (b) : remplissage axial d'après Marigo et al. (2012).

temps du mélange (nombre de tours inférieur à 25), la vitesse de  $22 \text{ tr.min}^{-1}$  permet une amélioration plus rapide de la qualité du mélange. Ainsi à  $22 \text{ tr.min}^{-1}$ , la variance minimale est atteinte après seulement 12 tours de mélange alors qu'il faut attendre 25 tours à  $46 \text{ tr.min}^{-1}$  pour obtenir une variance similaire. Par contre, la vitesse de  $46 \text{ tr.min}^{-1}$  permet l'obtention d'une variance plus faible mais pour des temps de mélange beaucoup plus longs (supérieurs à 100 tours). Les auteurs expliquent ces résultats en soulignant que les plus fortes vitesses favoriseront les mécanismes de diffusion pour des temps longs de mélange et permettront ainsi l'obtention de mélanges à une échelle plus fine.

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

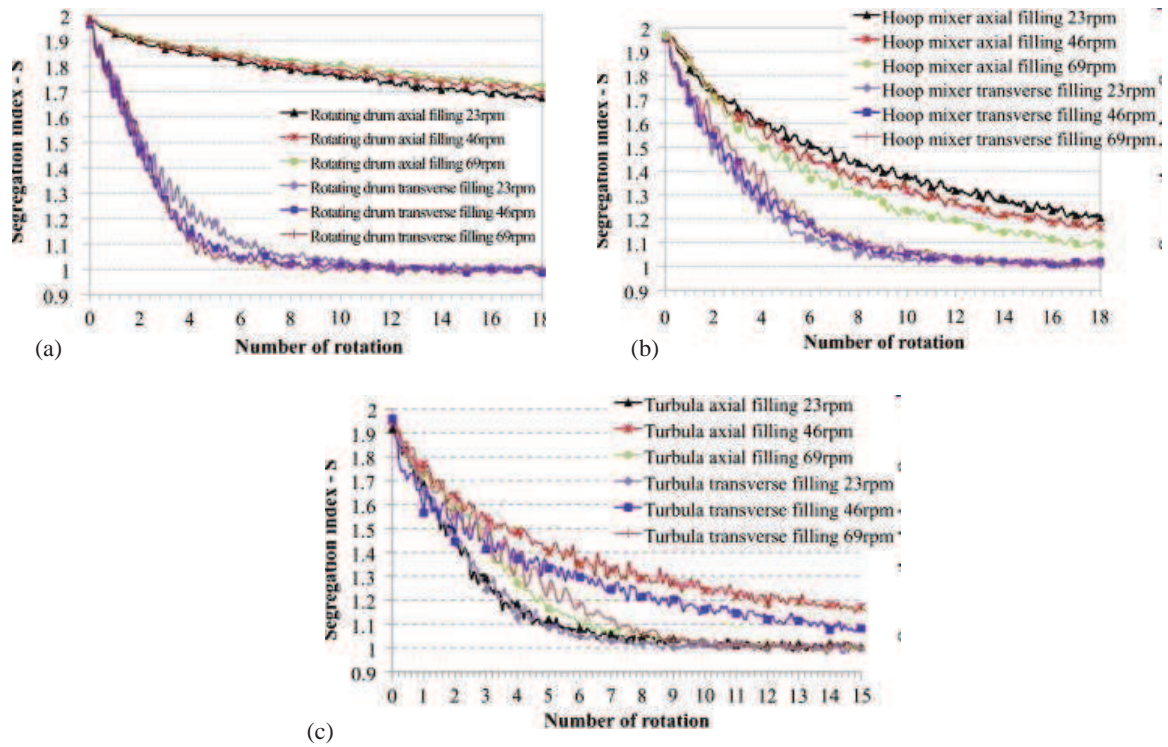


FIGURE 1.36 – Comparaison des résultats obtenus pour différentes vitesses et différents types de remplissage, pour le mélangeur à tambour horizontal (a), à cerceau (b) et Turbula (c) d'après Marigo et al. (2012).

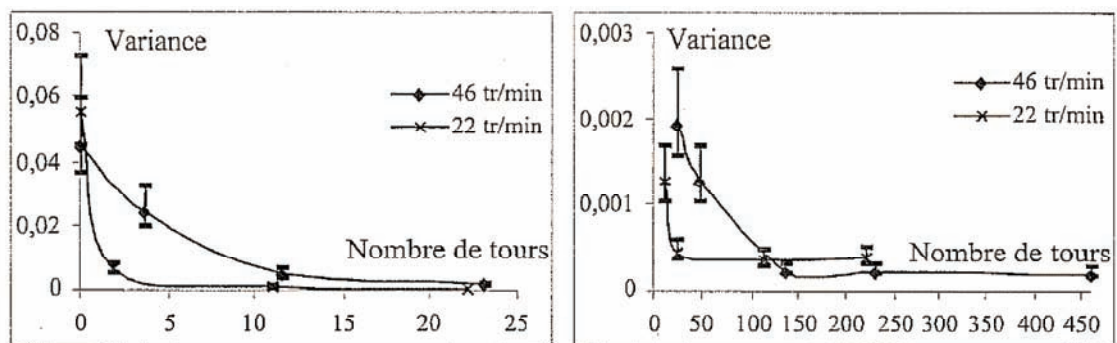


FIGURE 1.37 – Cinétique de mélange obtenue pour un mélange de cellulose microcristalline et de sel en mélangeur Turbula® par Losada Martin et al. (2004).

### 1.4.2 L'utilisation de l'échelle de ségrégation pour l'étude de la dynamique des mélanges

Une autre façon d'approcher les mécanismes de mélange au sein du mélangeur consiste à étudier l'état de mélange obtenu grâce à des outils statistiques. C'est le travail qu'a réalisé Gyenis (1999) en cherchant à identifier les mécanismes responsables de l'état de mélange (diffusion ou convection/cisaillement) à partir de différents outils mathématiques lors de simulations unidimensionnelles.

Ces simulations portaient sur 1000 particules disposées en une seule ligne. A l'état initial, les 500 premières représentaient le constituant 1 et les 500 suivantes le constituant 2. Deux séries d'expériences numériques ont été conduites. La première simulait des mécanismes de diffusion grâce à des changements individuels de positions de particules proches les unes des autres (la distance interparticulaire pouvant varier de 1 à 10). Une étape de mélange est constituée de 5000 à 50 000 changements individuels. La deuxième série d'expériences simulait les mécanismes de convection et cisaillement par des mouvements de blocs de particules (de 50 à 250 particules); la localisation des blocs de départ et des blocs d'arrivée étant déterminée de manière aléatoire. Une étape de mélange était constituée de 10 à 50 étapes basiques de mélange, constituées elles même de 5 à 50 mouvements de blocs de particules.

Les différents états de mélange obtenus ont alors été analysés au moyen du coefficient de variation, de la fonction d'autocorrélation, d'une analyse fractale, et de diagrammes espace-temps.

La figure 1.38 présente les autocorrélogrammes obtenus pour les mécanismes de diffusion et de convection/cisaillement. Les allures sont radicalement différentes et Gyenis conclut que l'utilisation de la fonction d'autocorrélation est la meilleure technique pour évaluer à la fois le degré d'homogénéité et les mécanismes de mélange qui y ont conduit, particulièrement dans les premières étapes de celui-ci.

Les travaux de Schofield (1970) lors de simulation de mélange bidimensionnelles aboutissent aux mêmes conclusions (voir section 1.3.2.2 page 28 ).

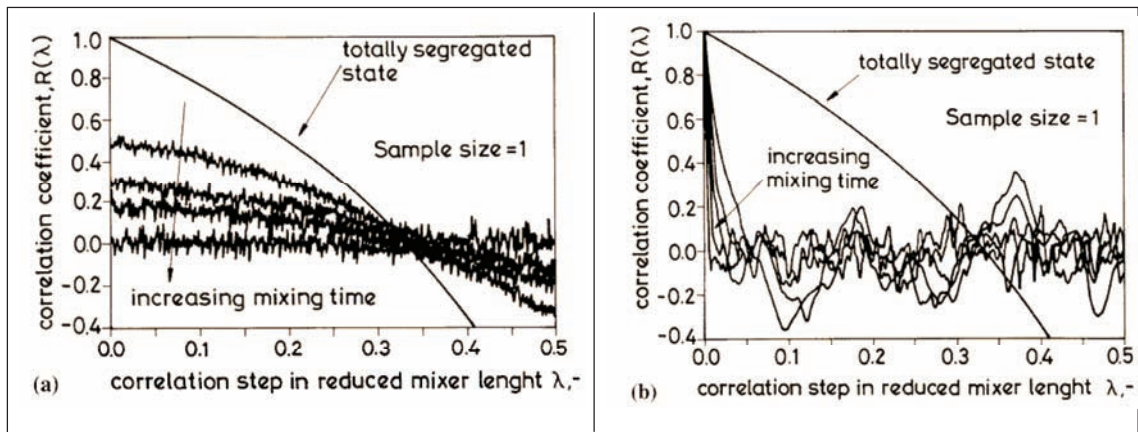


FIGURE 1.38 – Corrélogrammes obtenus pour deux états de mélange simulés par mécanisme de diffusion "pure" (a) et par mécanisme de convection/cisaillement "pure" (Gyenis, 1999).

### 1.4.3 La dynamique de mélange au sein d'un mélangeur à tambour rotatif

Les mélangeurs à tambour rotatif font partie des mélangeurs les plus utilisés dans l'industrie. De ce fait la dynamique de ces mélangeurs ont été largement étudiée pour différents types de poudres sur la bases de travaux expérimentaux et de simulations.

#### 1.4.3.1 Description qualitative des différents régimes d'écoulement

Henein et al. (1983) suivis par Mellmann (2001) ont identifié qualitativement différents régimes d'écoulement (Voir figure 1.39) au sein de ces dispositifs :

- Le régime de glissement (slipping)
- Le régime d'avalanche (cascading)
- Le régime de cataracte (cataracting)

**Remarque :** Les termes ont volontairement été conservés en anglais car il n'existe pas d'équivalents français permettant de traduire avec autant de nuances les différences au sein de chaque régime.



• **Le régime de glissement**

Le régime de glissement comprend deux types de mouvement : le "sliding" et le "surging". Le "sliding" se produit lorsque la charge n'adhère pas à la surface de la cuve et glisse en un seul bloc. Aucun mouvement de rotation n'est alors observé. Avec l'augmentation du frottement entre la paroi et le solide, le "sliding" se transforme en "surging" : la charge adhère à la paroi jusqu'à un certain angle de déflexion, puis glisse en masse pour revenir à sa position initiale. Ces deux modes apparaissent pour des vitesses de rotation de la cuve très faibles et ne permettent pas un réel mélange des produits (Ramaroson, 2008).






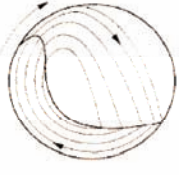
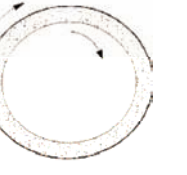
<u>Régime de glissement</u>	 slidding	 surging	
<u>Régime d'avalanche</u>	 slumping	 rolling	 cascading
<u>Régime de cataracte</u>	 cataracting	 centrifuging	

FIGURE 1.39 – Les différents modes d'écoulement au sein d'un mélangeur à tambour rotatif d'après Mellmann (2001).

• **Le régime d'avalanche**

Quand la vitesse de rotation ou la rugosité de la paroi augmente, le mouvement de glissement peut être transformé en "slumping" : la charge adhère sur la paroi et suit la cuve dans sa rotation jusqu'à ce qu'elle atteigne un certain angle (angle de repos dynamique

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

---

ou angle de talus), elle s'écoule alors à travers une couche (couche active) au-dessus de la zone où les particules sont en mouvement de rotation (couche passive).

Pour des vitesses de rotation un peu plus importantes, la couche active est alimentée de manière continue et un mouvement de "rolling" est observé. Lorsque la vitesse de rotation augmente encore, les particules arrivant en haut du talus parviennent à décoller légèrement de la couche active : on passe alors en mode "cascading".

Le "rolling" et le "cascading" permettent le déplacement de grands blocs de particules : le mélange est donc essentiellement convectif (Yang et al., 2008). Pour les poudres à écoulement libre, une compétition avec de la ségrégation par roulement sur la pente peut être observée. À l'inverse, pour les poudres cohésives, aucune ségrégation n'apparaît mais le procédé "plafonne", l'énergie apportée n'étant souvent pas suffisante pour vaincre les forces interparticulaires.

On observe également l'apparition de cisaillement entre la couche de particules entraînée par le tambour et la couche de active.

Lehmberg et al. (1977) ont démontré à l'aide de traceurs colorés que le régime d'avalanche permettait un bon mélange radial des produits. Ce régime est d'ailleurs utilisé dans de nombreux mélangeurs industriels.

### • Le régime de cataracte

Pour des vitesses de rotation plus fortes, certaines particules se détachent du lit et sont projetées dans l'air après leur passage dans la couche passive : le régime d'avalanche devient alors le "catacting".

Ce mode engendre également le déplacement d'ensemble de particules. Dans le cas du mélange de poudres à écoulement libre, les mécanismes de convection restent prépondérants et engendrent généralement une baisse rapide de l'intensité de ségrégation. Toutefois, celle-ci est difficile à prédire car il existe une compétition entre les mécanismes de mélange et des mécanismes de ségrégation par trajectoire.

Lorsque la vitesse augmente encore, la rotation de la cuve engendre alors des vibrations et des collisions entre les particules, les déplacements sont plus limités.

Pour les poudres à écoulement libre, les mécanismes de mélange sont alors essentiellement diffusifs. Les phénomènes de ségrégation par roulement et trajectoires sont moins présents au profit d'une ségrégation par percolation.

Pour les poudres cohésives, les blocs de poudre sont « hachés » par un fort cisaillement (Chaudhuri et al., 2006). La diffusion apparaît également car les particules sont désolidarisées, pouvant même engendrer des phénomènes de ségrégation si de fortes disparités en terme de tailles de particules existent.

Lorsque la vitesse est très élevée, il se produit un phénomène de "centrifuging" : la charge est centrifugée sur la paroi du cylindre rotatif (Boateng and Barr, 1996), elle ne bouge plus et le mélange devient alors impossible.

#### 1.4.3.2 Critères de transition entre les différents régimes

Mellmann (2001) puis Liu et al. (2005) ont cherché à définir des critères permettant de déterminer, en fonction de paramètres opératoires, les points de transitions entre les différents modes.

Mellmann (2001) propose de se baser sur l'utilisation du nombre de Froude, ( $Fr$ ), et du taux de remplissage local,  $f$ , définis par :

$$Fr = \frac{\omega^2 * R}{g} \quad (1.20)$$

Avec

- $R$  : rayon de la cuve [m]
- $\omega$  : vitesse de rotation de la cuve [tr.s<sup>-1</sup>]
- $g$  : gravité [m.s<sup>-2</sup>]

$$f = \frac{1}{\pi}(\alpha - \sin \alpha \cos \alpha) \quad (1.21)$$

$\alpha$  désignant le demi-angle de la section occupée par le lit de poudre, montré sur la figure 1.40.

Mellmann (2001) a ensuite ainsi pu dresser un diagramme indiquant les régimes d'écoulement, en fonction du nombre de Froude et du taux de remplissage,  $f$  (voir figure 1.41). Il est ainsi possible de prédire le régime d'écoulement des poudre au sein du mélangeur. À titre d'exemple pour un nombre de Froude égal à 1 et un taux de remplissage  $f=0,5$ , les produit sont dans un régime de "cataracting".

## 1.4 L'étude de la dynamique de mélange

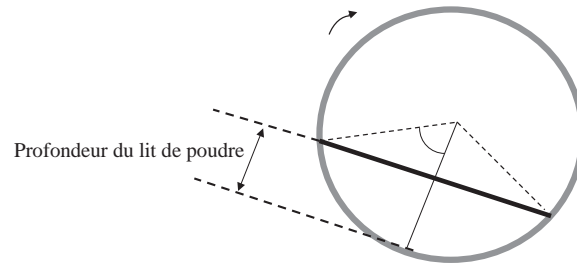


FIGURE 1.40 – Le demi-angle de la section occupée par le lit de poudre dans un mélangeur à cuve tournante.

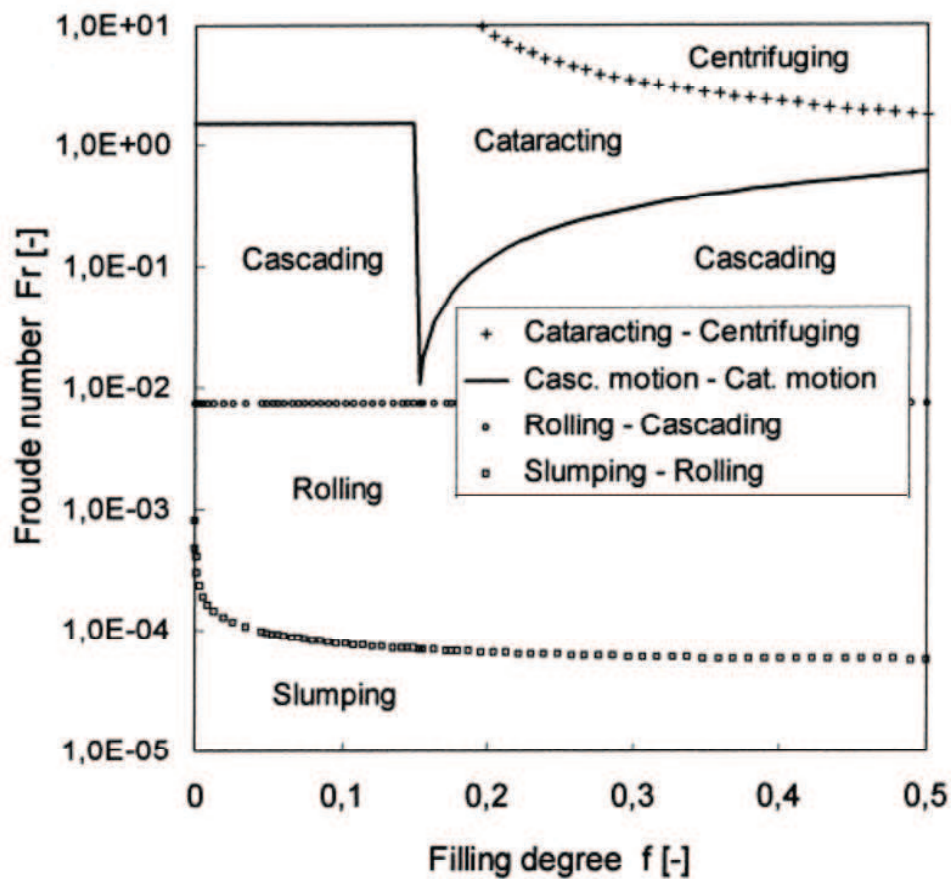


FIGURE 1.41 – Les différents mode d'écoulement en fonction du nombre de Froude et du taux de remplissage,  $f$ , d'après Mellmann (2001) pour un mélangeur à cuve tournante.

## 1.5 L'analyse dimensionnelle

L'optimisation d'un mélangeur de poudre consiste en la détermination des conditions optimales de mélange (vitesse et temps de mélange...). Ce travail est bien entendu réalisé dans l'optique de l'obtention d'un produit de qualité mais ne peut négliger les aspects liés à la consommation énergétique de l'équipement. Ainsi il s'agit en réalité de déterminer le point optimum entre qualité de mélange, temps de mélange et consommation énergétique.

D'une manière générale, en génie des procédés, les équations fondamentales de la mécanique des fluides et/ou des solides et de la thermique sont souvent difficiles à résoudre. Les solutions analytiques sont même rares et les solutions numériques sont parfois lourdes à mettre en œuvre et coûteuses en temps de calcul. Le travail expérimental, à travers l'étude de la dynamique de mélange, reste donc la base pour l'optimisation des équipements. Pour des raisons de temps et de consommations de matières premières, l'expérimentateur va chercher à minimiser le nombre total d'essais réalisés grâce à l'analyse dimensionnelle.

L'analyse dimensionnelle permet la construction de nombres adimensionnels qui caractérisent le procédé dans sa globalité. Elle repose sur le regroupement de variables en nombres adimensionnels ayant une signification physique à partir des équations différentielles des bilans (matière, quantité de mouvement, chaleur...) lorsque celles-ci sont connues

Dans certains cas, les équations différentielles des bilans ne sont pas connues dans leur globalité et l'utilisation de matrices dimensionnelles permet alors de générer les nombres adimensionnels décrivant le système même si on ne sait modéliser les phénomènes. Le lecteur pourra se référer à l'ouvrage de Zlokarnik (2002) pour une description détaillée de la méthodologie de construction de matrices dimensionnelles et des exemples concrets.

Le théorème de Buckingham (Buckingham, 1914) établit une relation entre ces différents nombres adimensionnels formés. Ainsi si une équation physique met en jeu  $n$  variables physiques  $(x_0, x_1, x_2, \dots, x_n)$ , celles-ci dépendant de  $k$  unités fondamentales, alors il existe une équation équivalente mettant en jeu  $p = n - k$  variables sans dimension construites  $(\Pi_1, \Pi_2, \dots, \Pi_p)$  à partir des variables originelles. Les fonctions sont formées de manière hypothétique en développement généralisé de type polynomial.

$$f(x_0, x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \Leftrightarrow f(\Pi_1, \Pi_2, \dots, \Pi_p) = 0 \quad (1.22)$$

## 1.5 L'analyse dimensionnelle

---

D'après Delaplace et al. (2007), dans le cas des fluides, l'utilisation systématique de l'analyse dimensionnelle pour le mélange a permis de définir des groupes sans dimension pour l'ensemble des technologies d'agitation classique. Ainsi, pour la plupart des opérations de mélange, que ce soit pour des transferts thermiques, l'homogénéisation, la suspension, l'émulsion,..., la communauté scientifique a proposé de nombreuses corrélations impliquant divers nombres sans dimensions (nombre de puissance, Reynolds, Weber, Archimède, Nusselt, Prandtl...) selon le régime d'écoulement et les systèmes de mélange étudiés.

La complexité des solides divisés ne permet pas aujourd'hui une analyse dimensionnelle classique. En effet, d'une part il est souvent difficile de déterminer l'impact de chacun des facteurs influençant l'écoulement d'un système particulière donné, et d'autre part ces facteurs sont difficilement quantifiables. De plus, il n'existe pas vraiment d'équivalent à la viscosité pour les milieux granulaires, et donc pas non plus d'équivalent au nombre de Reynolds. Dans la littérature, les chercheurs ont proposé des corrélations "tronquées" entre certains nombres adimensionnels (généralement le nombre de Froude -Fr- et le nombre de puissance -Np-) dans lesquelles interviennent des coefficients dépendant des caractéristiques d'écoulement du solide et du mélangeur étudié. Ces coefficients doivent être déterminés expérimentalement. Toutefois ces corrélations restent souvent la propriété des industriels et la littérature scientifique reste globalement assez pauvre dans ce domaine.

Nous présentons dans les parties suivantes deux exemples de corrélation entre nombres adimensionnels déterminées de manière empirique pour un mélangeur à tambour rotatif et un mélangeur convectif à vis.

### 1.5.1 Exemple d'application de l'analyse dimensionnelle pour des mélangeurs à tambour rotatif

Sato and Miyanami (1979) ont proposé une relation linéaire entre le nombre de Froude -Fr- et le nombre de Newton -Ne-

$$Ne = A + B * Fr \quad (1.23)$$

$$Ne = \frac{T}{\rho * g * R^3 * L} \quad \text{et} \quad Fr = \frac{R * N^2}{g} \quad (1.24)$$

avec

- T : couple relatif au mobile [N.m]
- N : vitesse de rotation de la cuve en [tr.min<sup>-1</sup>]
- R : rayon de la cuve en [m]
- L : longueur de la cuve [m]
- $\rho$  : masse volumique apparente du mélange [kg.m<sup>-3</sup>]
- A et B : coefficients empiriques

Les coefficients A et B de l'équation 1.23 dépendent du taux de remplissage du mélangeur (f), de l'angle de repos de la poudre ( $\phi$ ) et de son coefficient de frottement à la paroi et peuvent être déduits d'abaques présentées à la figure 1.42.

À partir de la relation 1.24, il est alors possible de déterminer, en fonction du rayon et de la longueur de cuve, la vitesse de rotation optimale du mélangeur.

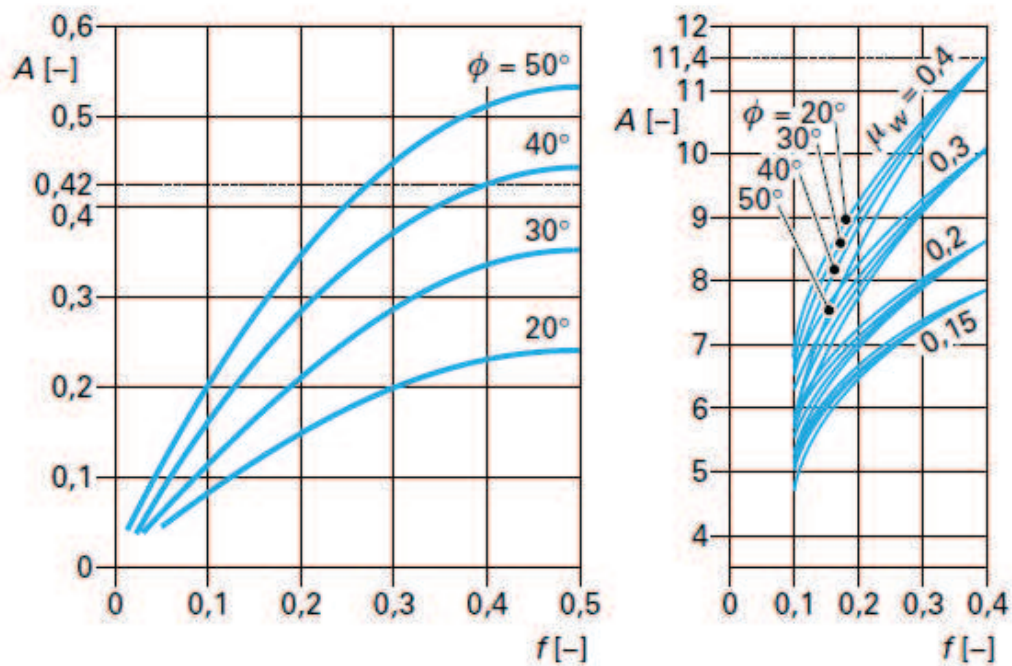


FIGURE 1.42 – Éléments pour le dimensionnement d'un mélangeur à tambour horizontal d'après Sato and Miyanami (1979).

### 1.5.2 Exemple d'application pour un mélangeur convectif orbital à vis

Entrop (1978) a proposé une corrélation entre le nombre de puissance, les vitesses de rotation de la vis (sur elle-même et autour de la cuve) et un facteur géométrique :

$$N_p = \frac{P}{\rho * g * D_v^4 * N_v} = K * \left(\frac{N_v}{N_A}\right)^m * \left(\frac{L}{D_v}\right)^{1,7} \quad (1.25)$$

avec

- P : puissance consommée [J.s<sup>-1</sup>]
- D<sub>v</sub> : diamètre de la vis [m]
- N<sub>v</sub> : vitesse de rotation de la vis sur elle-même [s<sup>-1</sup>]
- N<sub>A</sub> : vitesse orbitale de rotation de la vis [s<sup>-1</sup>]
- L : Longueur de la vis [m]
- m et K : coefficients dépendant de la poudre

Ils ont également montré que le nombre adimensionnel N<sub>v</sub> \* t<sub>m</sub>, correspondant au nombre pour atteindre le degré d'homogénéité souhaitée, permet de déterminer le temps de mélange optimal t<sub>m</sub> qui ne dépend que de facteurs géométriques.

$$N_v * t_m = 13 * \left(\frac{L}{D_v}\right)^{1,93} \quad (1.26)$$

En combinant les équations 1.25 et 1.26, on obtient une relation entre le nombre de puissance et le nombre de tours optimal pouvant être utilisée pour déterminer les vitesses de rotation de la vis.

$$N_p = K * \left(\frac{N_v}{N_A}\right)^m * \left(\frac{N_v * t_m}{13}\right)^{0,86} \quad (1.27)$$

## 1.6 Changement d'échelle et similitudes

### 1.6.1 Le principe des similitudes

L'analyse dimensionnelle conduit à des groupements de variables qui peuvent être utilisés dans la prédiction de phénomènes similaires se produisant à des échelles différentes. Selon la théorie des modèles, deux procédés peuvent être considérés comme similaires si d'une part ils présentent des similitudes géométriques et si d'autre part l'ensemble des



nombre adimensionnels utilisés pour décrire le système sont égaux (Langhaar, 1980). Autrement dit une similitude complète est obtenue si les  $p = n - k$  nombres sans dimension prennent la même valeur pour les deux systèmes.

La similitude complète est en général impossible dans la pratique. On privilégie alors certains nombres adimensionnels, soit parce que l'impact de certains facteurs est faible par rapport aux autres, soit parce que l'on cherche à privilégier un des aspects du système (vitesse d'écoulement, force centrifuge...). On parle alors de similitude restreinte.

On distingue trois types de similitude : géométrique, cinématique et dynamique

### 1.6.1.1 Similitude géométrique

Deux systèmes sont géométriquement semblables s'il existe un rapport constant entre les dimensions géométriques du modèle (procédé à petite échelle) et du prototype (procédé extrapolé). En pratique, les similitudes géométriques sont toujours recherchées par les équipementiers. Cependant d'après Midoux (1985), une similitude géométrique ne peut être parfaite, ne serait-ce que parce que l'état de rugosité des surfaces solides est rarement extrapolable. Il existe donc toujours une légère distorsion dans la similitude géométrique.

Ainsi pour toutes les longueurs caractéristiques du modèle ( $L_{modèle}$ ) et du prototype ( $L_{prototype}$ ), on a

$$\frac{L_{modèle}}{L_{prototype}} = r_L = cste \Rightarrow \frac{S_{modèle}}{S_{prototype}} = r_L^2 \Rightarrow \frac{V_{modèle}}{V_{prototype}} = r_L^3 \quad (1.28)$$

avec S et V respectivement les surfaces et les volumes du modèles et du prototype.

L'industrie pharmaceutique utilise particulièrement le principe de similitude géométrique validant le design d'un procédé à l'échelle 1/10<sup>ième</sup> avant validation à l'échelle de la production.

### 1.6.1.2 Similitude cinématique

Les mouvements de deux systèmes sont cinématiquement semblables si leurs points homologues d'un point de vue géométrique décrivent des trajectoires telles que, dans des temps homologues (proportionnels dans le rapport  $r_T$ ), les arcs parcourus correspondants sont dans le rapport  $r_L$ .

## 1.6 Changement d'échelle et similitudes

---

En d'autres termes, il y aura similitude cinématique si les vitesses de chaque entité (particules, volume infinitésimal de liquide, etc.) correspondantes dans les deux systèmes sont dans un rapport constant tel que :

$$\frac{v_{\text{modèle}}}{v_{\text{prototype}}} = \frac{L_{\text{modèle}}/T_{\text{modèle}}}{L_{\text{prototype}}/T_{\text{prototype}}} = \frac{r_L}{r_T} \quad (1.29)$$

Les accélérations seront donc dans le rapport :

$$\frac{a_{\text{modèle}}}{a_{\text{prototype}}} = \frac{r_L^2}{r_T^2} \quad (1.30)$$

Dans le cas des liquides, une similitude cinématique se traduit par des lignes de courant identiques dans les deux systèmes. Pour les systèmes particuliers, les similitudes cinématiques sont souvent assimilées à des vitesses de particules identiques. Cette assimilation est plus restrictive que la définition de l'équation 1.29, car elle implique que le rapport de temps  $r_T$  et le rapport des longueurs  $r_L$  soient égaux.

### 1.6.1.3 Similitude dynamique

Deux systèmes sont dits dynamiquement semblables si des points géométriquement correspondants dans les deux systèmes sont soumis à des forces homologues. En pratique, il sera difficile d'obtenir un rapport constant pour l'ensemble des forces que peuvent subir les points dans les deux systèmes. On s'attachera donc à déterminer les forces prépondérantes dans le système et l'on choisira les nombres adimensionnels associés.

Les principaux nombres adimensionnels rencontrés en génie des procédés et les forces qu'ils expriment sont résumés dans le tableau 1.1. Leurs expressions, dans le cas d'un écoulement liquide est également donné à titre d'exemple.

Eu	Nombre d'Euler	$\frac{\text{Force d'inertie}}{\text{Force de pression}}$	$\frac{u^2}{\rho * p}$
Fr	Nombre de Froude	$\frac{\text{Force d'inertie}}{\text{Force de pesanteur}}$	$\frac{u^2}{L * g}$
Re	Nombre de Reynolds	$\frac{\text{Force d'inertie}}{\text{Force de viscosité}}$	$\frac{u * L}{\nu}$
Ma	Nombre de Mach	$\frac{\text{Force d'inertie}}{\text{Force de compression}}$	$\frac{u^2}{c^2}$
We	Nombre de Weber	$\frac{\text{Force d'inertie}}{\text{Force de tension superficielle}}$	$\frac{u^2 * \rho * L}{\sigma}$

Tableau 1.1 – Principaux nombres adimensionnels utilisés en génie des procédés.

avec

- $L$  [m] et  $u$  [ $\text{m.s}^{-1}$ ]                      Longueur et vitesse caractéristique
- $\nu$  [ $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ] et  $\rho$  [ $\text{kg.m}^{-3}$ ]      viscosité cinématique et masse volumique du liquide
- $c$  [ $\text{m.s}^{-1}$ ] et  $\sigma$  [ $\text{kg.s}^{-2}$ ]              célérité et tension superficielle du liquide
- $p$  [ $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ] et  $g$  [ $\text{m.s}^{-2}$ ]          pression et gravité

### 1.6.2 Exemple d'application

La problématique du changement d'échelle en génie des procédés consiste à traiter des volumes plus importants de matière tout en conservant une qualité similaire pour le produit. La grandeur que l'on cherche à conserver entre les différentes échelles, appelée grandeur cible, est très souvent un indice de la qualité du produit mais d'autres grandeurs peuvent également être envisagées comme une vitesse de déplacement de particules (cas des produits fragiles ou friables).

L'application du principe de similitude impose un préalable essentiel : l'existence de similitude géométrique entre le modèle et le prototype. En fonction de la grandeur cible que l'on souhaite conserver identique entre les deux tailles considérées, on appliquera alors soit un principe de similitude cinématique, soit un principe de similitude dynamique. Pour des systèmes relativement simples, il est parfois possible de rencontrer les deux à la fois et on s'approche alors d'une similitude complète entre les deux équipements.

Nous avons montré à la section 1.5.1 que les relations entre les nombres adimensionnels décrivant des mélangeurs de poudres sont empiriques et bien souvent tronquées. De ce fait les relations pour le changement d'échelle de ces mélangeurs sont difficiles à établir. Jusqu'au début de cette décennie, dans la littérature scientifique, peu d'articles traitaient de cette problématique pour les mélangeurs de poudre et les chercheurs concentraient leurs travaux sur le mélangeur à tambour rotatif, un système relativement simple, pas forcément très performant, mais encore très utilisé dans l'industrie.

### 1.6.3 Le changement d'échelle pour un mélangeur à tambour horizontal

Ding et al. (2001) ont établi les équations gouvernant le mouvement des particules à l'intérieur d'un mélangeur à tambour horizontal, pour un système à écoulement libre. Ils en ont déduit des relations de changement d'échelle basées sur le nombre de Froude, un pseudo-Reynolds et un pseudo-Euler, des ratio géométriques, des propriétés propres

## 1.6 Changement d'échelle et similitudes

---

à la cuve (remplissage et inclinaison de l'axe de rotation) ainsi que sur des propriétés physiques des particules (distribution granulométrique, coefficient de restitution, module élastique...).

Un travail expérimental leur a ensuite permis de réduire le nombre total de paramètres gouvernant le système. Ils ont ainsi montré que le nombre de Froude, le rapport "diamètre de particule" sur "diamètre de la cuve", le taux de remplissage et le coefficient de restitution des particules peuvent être combinés en un seul nombre adimensionnel si le mélangeur travaille en "rolling mode" (voir figure 1.39) et que le nombre de Froude est supérieur à 0,003.

Alexander et al. (2002) suggèrent de déterminer des relations de changement d'échelle en étudiant la vitesse des particules de la couche de surface dans les différentes tailles de mélangeurs. Ils se basent ainsi une similitude cinématique en stipulant que la qualité de l'état de mélange est fonction du régime d'écoulement au sein du mélangeur. Leurs travaux mettent en évidence que la vitesse des particules dépend très peu du nombre de Froude et de la vitesse tangentielle, contrairement à ce qui est généralement réalisé de manière industrielle pour extrapoler ce type de mélangeur. Ils proposent donc l'utilisation de différents rapports permettant d'accorder la forme et l'amplitude des profils de vitesse des particules. La figure 1.43 présente les profils de vitesse obtenus pour différentes tailles et vitesse de rotation des mélangeurs. Cependant ce travail est seulement relié au régime d'écoulement au sein du mélangeur et non à la qualité du produit obtenu en sortie.

### 1.6.4 L'apport des simulations par la méthode des éléments discrets

Si les équations décrivant le système sont trop compliquées pour être résolues de manière analytique, les simulations numériques permettent aujourd'hui d'en approcher le résultat. L'augmentation de la puissance des ordinateurs permet actuellement de traiter numériquement un grand nombre de problèmes de changement d'échelle. L'utilisation des méthodes discrètes (DEM) ouvre aussi la porte à l'utilisation de ces simulations pour les systèmes particuliers.

Dès 2006, Laurent (2006) note que les progrès récents concernant les logiciels de simulation DEM permettent d'accéder à la "cartographie" des forces interparticulaires, aux taux de collision entre les particules, aux forces de cisaillement interne et donnent des informations sur les mécanismes à l'intérieur du lit de particule. Il ajoute également que

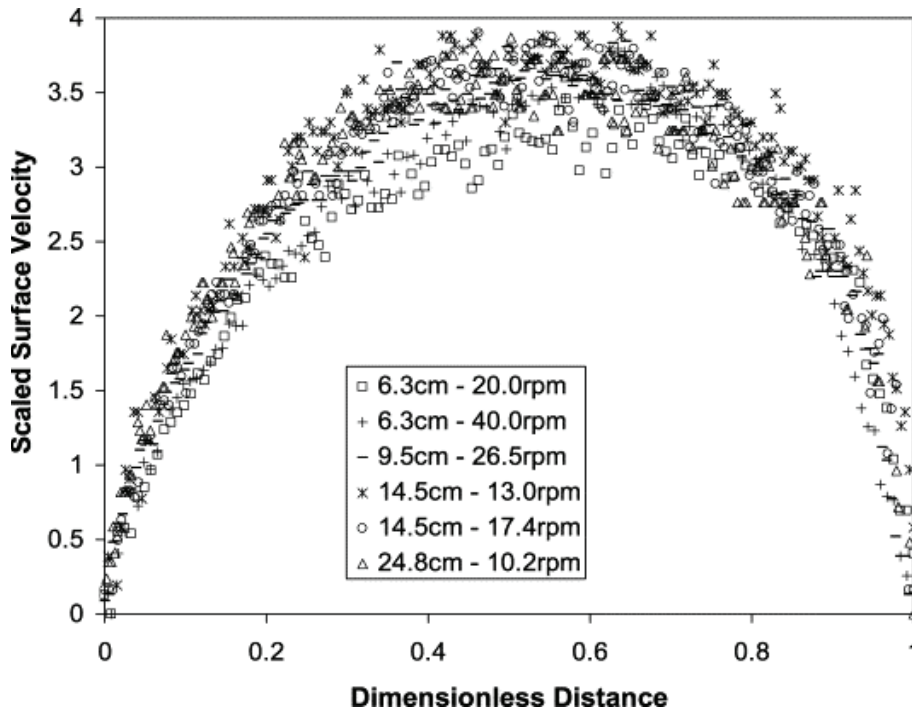


FIGURE 1.43 – Profils de vitesse obtenus dans des mélangeurs à tambour rotatif de rayon 6,3, 9,5, 14,5 et 24,8 cm pour différentes vitesses de rotation d'après Alexander et al. (2002).

les travaux futurs dans ce domaine devraient porter sur le développement de relations permettant les changements d'échelle.

Cleary and Sinnott (2008) ont testé l'utilisation du nombre de Froude comme critère pour extrapoler la taille d'un mélangeur double cône en V en considérant 5 échelles différentes. La cuve, pour la plus grande taille de mélangeur considérée, avait un volume de 186 l. Le nombre de particules simulé était de l'ordre de  $5 \cdot 10^6$ , la taille des particules étant comprise entre 2,50 et 3 mm, avec une taille moyenne de 2,75 mm. Les coefficients de restitution lors des collisions particule/particule et particule/paroi ont été respectivement fixés à 0,7 et 0,85 et ceux de friction à 0,5 et 0,4.

Ils ont ainsi suivi l'évolution d'un indice de mélange, ("rate of mixing"), pour chacune des tailles de mélangeur en fonction du temps. La figure 1.44 présente la répartition des composants obtenue pour des différents temps de mélange pour la simulation d'un mélangeur à l'échelle du laboratoire.

La figure 1.45 résume les résultats obtenus par ces auteurs. La troisième colonne du tableau présente le rapport entre l'indice à l'échelle considéré et celui à l'échelle laboratoire.

## 1.6 Changement d'échelle et similitudes

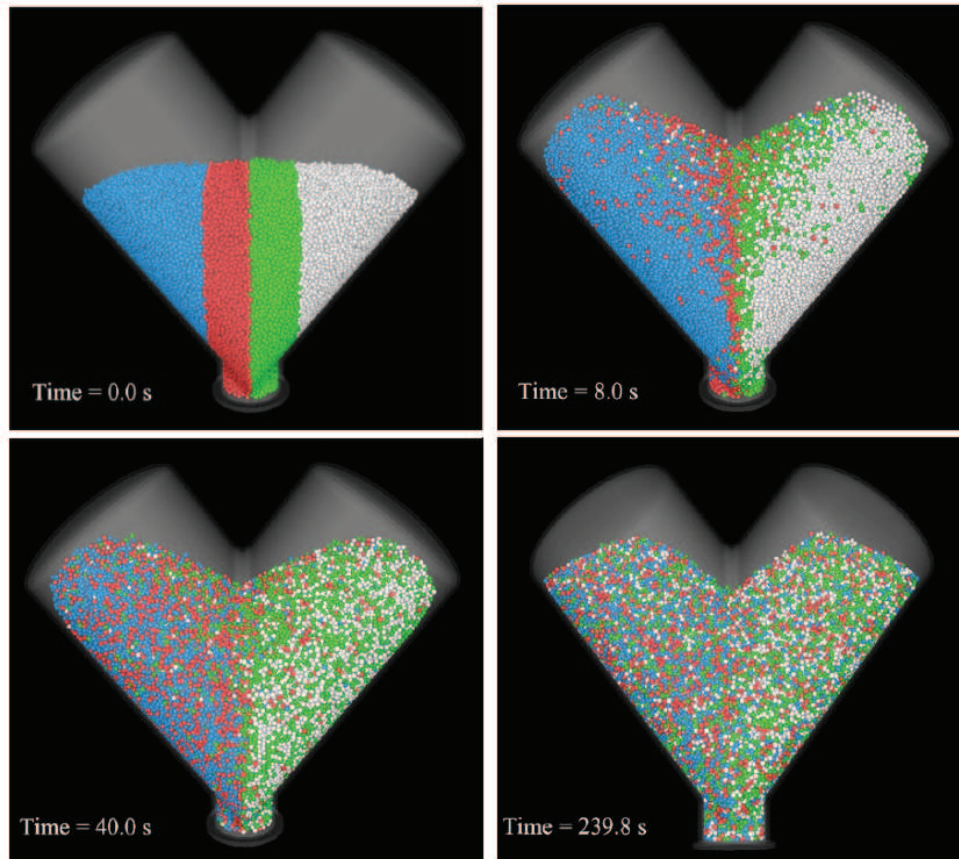


FIGURE 1.44 – Répartition des composants pour différents temps de mélange au sein d'un mélangeur en V, à l'échelle du laboratoire d'après Cleary and Sinnott (2008).

On remarque qu'une réduction de plus de 50 % de l'indice de mélange a été observée lors du passage du mélangeur de 1,86 l à un mélangeur de 58,8 l. Ainsi à nombre de Froude constant et pour un temps de mélange identique, la qualité de mélange obtenu est supérieure dans le mélangeur dont la taille est plus importante.

Nakamura et al. (2009) ont étudié les effets du changement d'échelle sur des mélangeurs granulateurs à haut-cisaillement de différentes tailles, similaires géométriquement. La taille des différentes cuves variait de 1 l à 16 l et le nombre de particules considérées de 8000 à 130 000. Leurs travaux ont permis de valider la relation empirique proposée par Knight et al. (2001) pour les mélangeurs à haut cisaillement :

$$T_d = T_{d0} + k * Fr_1^{0.5} \quad (1.31)$$

où  $T_d$  et  $Fr_1$  représente respectivement le couple adimensionnel et le nombre de Froude relatif à la pale du mélangeur :

Blender volume (L)	Mixing measure after three revolutions	Ratio of mixing rate to the lab scale
1.86	7.2%	1.00
5.88	5.5%	0.76
18.6	4.2%	0.58
58.8	3.4%	0.47

FIGURE 1.45 – Variation de l'indice de mélange dans les différentes tailles de cuve après 3 tours de mélangeur (en V) d'après Cleary and Sinnott (2008).

$$T_d = \frac{T}{M * g * r_1} \quad (1.32)$$

$$Fr_1 = \frac{r_1 * \omega_1^2}{g} \quad (1.33)$$

avec

- T : couple de l'agitateur [N.m]
- M : masse totale des particules [Kg]
- $r_1$  : rayon de la pale d'agitation [m]
- $\omega_1$  : vitesse angulaire de la pale [rad.s<sup>-1</sup>]

Ils ont également étudié les similitudes cinématiques (par le suivi des vitesses des particules) et dynamiques (basées sur l'énergie de collision entre les particules). Ils ont constaté qu'en travaillant à puissance d'agitation constante, les similitudes dynamiques étaient bien respectées, contrairement aux similitudes cinématiques. Ils concluent donc leurs travaux en suggérant de s'appuyer sur des similitudes dynamiques pour l'extrapolation des mélangeurs à haut-cisaillement.

Cependant, l'augmentation de la taille d'un mélangeur signifie également l'augmentation du nombre total de particules au sein de celui-ci. En 2010, Bridgwater (2010) remarquait que les simulations DEM permettait de suivre le déplacement tridimensionnel en fonction du temps de chaque particule pour un ensemble de 10<sup>6</sup> particules. Si l'on considère une cuve de 1 m<sup>3</sup> contenant des particules de 1 mm de diamètre, le nombre total

## 1.7 Conclusion

---

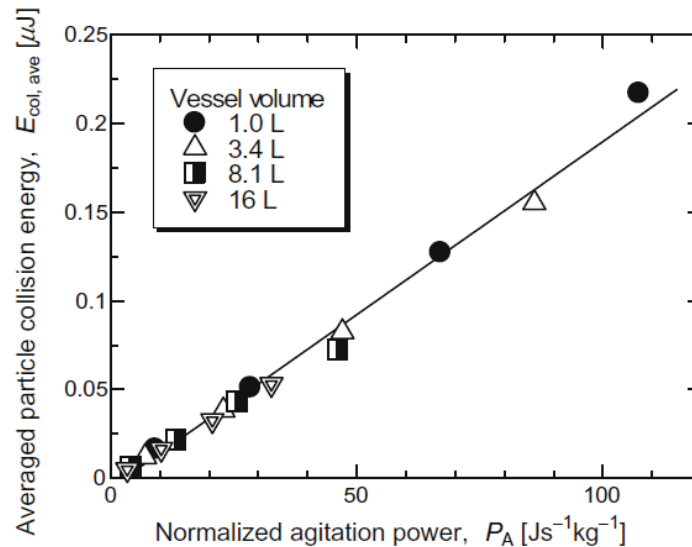


FIGURE 1.46 – Évolution de l'énergie moyenne de collision des particules en fonction de la puissance d'agitation normalisée, pour différentes tailles de mélangeur confirmant l'existence de similitudes dynamiques d'après Nakamura et al. (2009).

de particule au sein de la cuve est de l'ordre de  $10^9$ . Si la taille des particules est réduite à  $10\ \mu\text{m}$ , ce nombre augmente jusqu'à  $10^{15}$ . Il met alors en évidence qu'il est essentiel de pouvoir s'appuyer sur des règles d'écoulement de ces particules afin de réduire de manière significative les besoins en puissance de calcul.

## 1.7 Conclusion

Les travaux des différents auteurs présentés dans ce premier chapitre nous ont permis de mettre en évidence les nombreux facteurs pouvant influencer le mélange des poudres et la nécessité de la mise en place d'une méthodologie complète pour pouvoir caractériser avec précision l'état d'un mélange. Comme nous avons pu le constater, la multitude de ces facteurs et la difficulté à pouvoir les quantifier rend aujourd'hui difficile une analyse complète d'un mélangeur et des mécanismes de mélange s'y déroulant. L'extrapolation entre les différentes tailles de mélangeur reste encore très empirique, même si ces dix dernières années, plusieurs auteurs ont cherché à développer des corrélations basées sur une étude plus rigoureuse, grâce notamment à l'apport des simulations DEM. Cependant l'ensemble de ces travaux reste cantonné au cas des poudres à écoulement libre et les corrélations avec les résultats expérimentaux sont encore insuffisantes pour pouvoir valider les différentes hypothèses.





# Chapitre 2

## Développements méthodologiques et expérimentaux pour l'étude de la qualité des mélanges

### Description du contenu

---

<b>2.1</b>	<b>Systèmes particuliers</b>	<b>81</b>
<b>2.2</b>	<b>Préparation et réalisation des mélanges</b>	<b>93</b>
<b>2.3</b>	<b>Méthode d'analyse de la composition des mélanges</b>	<b>97</b>

---

### 2.1 Systèmes particuliers

Trois systèmes particuliers ont été utilisés dans ces travaux. Un de ces systèmes a été étudié dans le cadre du projet MaSCoTe. Il est constitué de graphite et d'une matrice polymérique thermodurcissable. Ce mélange, appelé par la suite mélange "composite", est destiné à la fabrication de plaques bipolaires pour l'industrie des piles à combustible. Les deux autres systèmes sont constitués de lactose et de semoule de blé. Il n'ont pas d'application industrielle spécifique mais les quantités disponibles, leur coût, leur manipulation aisée et la possibilité de l'utilisation d'une méthode en ligne pour caractériser l'homogénéité du mélange mise au point dans le cadre de travaux antérieurs (Demeyre, 2007) rendent possible un grand nombre d'essais. Ces mélanges seront appelés mélanges "modèles".

Dans le chapitre 1, nous avons montré que les propriétés des poudres influençaient fortement l'écoulement des produits et leurs comportements lors d'une opération de mélange. Nous nous sommes donc attachés dans un premier temps à caractériser les systèmes particuliers utilisés.

### 2.1.1 Description des systèmes particuliers

- Mélanges modèles :

Ces mélanges sont constitués en masse de 85% de lactose et de 15 % de semoule de blé. Deux types de lactose ont été utilisés. Il s'agit dans les deux cas de Lactose Granulac 140 commercialisé par la société MEGGLE mais provenant de deux lots différents. L'un a été acheté en septembre 2006 et l'autre en Octobre 2011. Il s'est avéré que les deux lactoses avaient des distributions granulométriques légèrement différentes (voir tableau 2.1) avec une présence plus importante de fines particules dans l'un des deux lots entraînant des comportements à l'écoulement différents (voir section 2.1.5, page 89).

La semoule provient d'un couscous fin commercial constitué de granules sphériques obtenues à partir de semoule de blé dur sélectionnée, humidifiée, agglomérée, soumise à une pré-cuisson à la vapeur puis séchée et calibrée. Le diamètre moyen des particules en volume se situe aux environs de 800  $\mu\text{m}$ . Cette semoule a été recalibrée par tamisage à l'aide d'une tamiseuse Retsch<sup>®</sup> afin de conserver les particules dont la taille est comprise entre 500  $\mu\text{m}$  et 1200  $\mu\text{m}$ .

- Mélange composite :

Ce mélange est composé à 85 % en masse de graphite (Timrex KS150) provenant de la société TIMCAL et d'une matrice polymérique thermodurcissable (15 % en masse), elle même constituée à 97% de résine époxy (DGEBA), à 2,5 % d'un durcisseur (DDA) et à 0,5% d'un catalyseur (poly-urée). Les différents constituants de la matrice polymérique ont été fournis par la société RAIGI. Leurs structures chimiques ainsi que leurs proportions respectives au sein du mélange sont présentées sur la figure 2.1.

### 2.1.2 Distributions granulométriques

Les distributions granulométriques des différentes poudres ont été obtenues par diffraction laser à l'aide d'un granulomètre Mastersizer<sup>®</sup> en voie sèche. Les diamètres ca-

## 2.1 Systèmes particulières

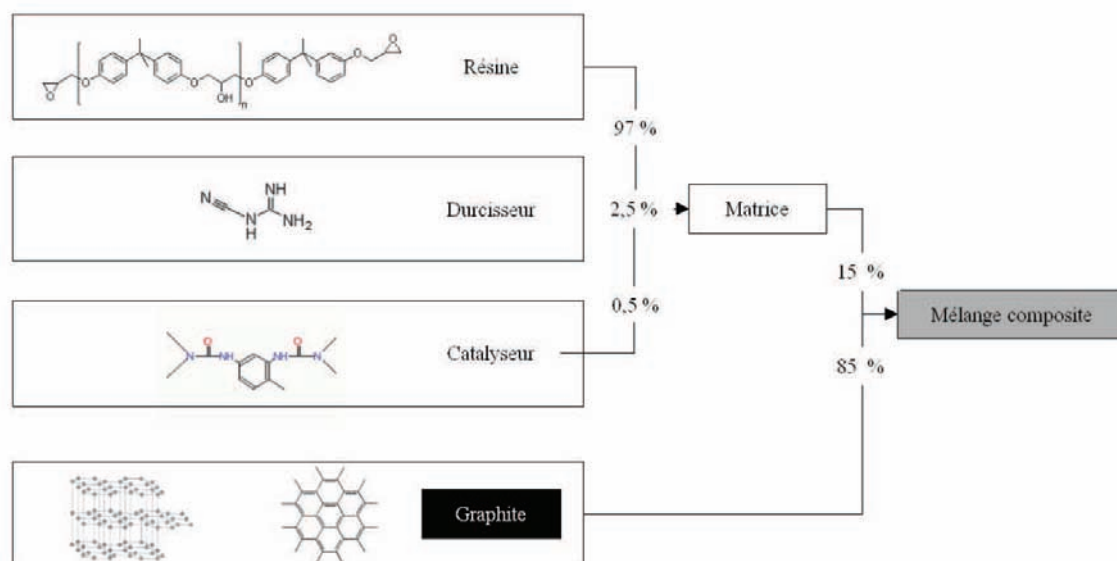


FIGURE 2.1 – Composition du mélange composite.

ractéristiques de ces distributions sont synthétisés dans le tableau 2.1 et l'ensemble des courbes de distributions granulométriques est représentée dans l'annexe C (page 209).

Le SPAN a été déterminé par la relation :

$$\text{SPAN} = \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} \quad (2.1)$$

Une faible valeur de SPAN (<1) traduira une distribution granulométrique resserrée autour de son diamètre moyen. À l'inverse une valeur élevée (>2) mettra en évidence une distribution granulométrique très étalée.

Tableau 2.1 – Différents diamètres caractéristiques de la distribution granulométrique des produits mesurés au granulomètre LASER Mastersizer®.

	Mélanges modèles			Mélanges composites			
	Lactose 1	Lactose 2	Semoule	Graphite	Résine	Durcisseur	Catalyseur
$d_m$ ( $\mu\text{m}$ )	65	65	1014	75	175	8	3
$d_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	13	8	686	14	15	1,9	0,2
$d_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )	128	146	1394	166	426	6,9	0,3
$d_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	59	54	979	57	121	17	0,8
SPAN	1,952	2,544	0,723	2,657	3,400	2,130	1,721

**Remarque :** Physiquement, le diamètre moyen en volume des particules  $d_m$  aussi noté  $(D[4,3])$  correspond à une moyenne arithmétique des diamètres pondérée par le volume. Cette moyenne privilégie les effets de volume et donc d'écoulement.

- Mélanges Lactose/semoule :

Les deux lactoses présentent les mêmes diamètres volumiques. Cependant la distribution du lactose 1 est plus recentrée sur son diamètre moyen. La semoule présente quant à elle une distribution très resserrée (due aux étapes de tamisage préliminaires) avec un  $d_m$  environ 10 fois supérieur à ceux des lactoses. Ces mélanges auront donc a priori une forte tendance à la ségrégation.

- Mélange composite :

Les distributions granulométriques de l'ensemble des constituants sont très étalées. Les particules de résine ont un  $d_m$  deux fois plus important que celui du graphite. Les particules de catalyseur et de durcisseur possèdent quant à elles de très faibles diamètres comparés aux autres particules du mélange.

### 2.1.3 Masses volumiques

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

**La masse volumique vraie des particules :** elle est mesurée au pycnomètre à Hélium (AccuPyc 1330, Micromeritics®). Cet appareil injecte de 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 de la poudre :** Elle est mesurée par le testeur d'Hosokawa. Une masse de poudre est déversée dans un récipient de volume calibré (100 cm<sup>3</sup>) à travers un tamis vibrant qui permet d'individualiser les particules. Afin d'obtenir le volume le plus exact possible, la cellule est arasée et la masse volumique apparente aérée est déterminée en divisant la masse par le volume apparent.

**La masse volumique apparente tassée :** elle est mesurée par un volumétre de tassement, 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

## 2.1 Systèmes particuliers

---

de coups (500 coups) qui permettent de tasser la poudre autant que possible.

Le tableau 2.2 présente les différentes masses volumiques obtenues pour les constituants des mélanges. Les quantités de catalyseur et de durcisseur disponibles n'ont pas permis la détermination des masses volumiques apparentes aérée et tassée pour ces deux produits.

Tableau 2.2 – Les différentes masses volumiques des constituants.

Masse volumique [Kg.m <sup>-3</sup> ]		Vraie	Aérée	Tassée
Mélanges modèles	Lactose 1	1,54 * 10 <sup>3</sup>	0,57 * 10 <sup>3</sup>	0,92 * 10 <sup>3</sup>
	Lactose 2	1,54 * 10 <sup>3</sup>	0,49 * 10 <sup>3</sup>	0,93 * 10 <sup>3</sup>
	Semoule	1,45 * 10 <sup>3</sup>	0,76 * 10 <sup>3</sup>	0,82* 10 <sup>3</sup>
Mélange composite	Graphite	2,75 * 10 <sup>3</sup>	0,37 * 10 <sup>3</sup>	0,64 * 10 <sup>3</sup>
	Résine époxy	1,19 * 10 <sup>3</sup>	0,50 * 10 <sup>3</sup>	0,67 * 10 <sup>3</sup>
	Durcisseur	1,40 * 10 <sup>3</sup>		
	Catalyseur	1,19 * 10 <sup>3</sup>		

Les masses volumiques vraies des lactoses et de la semoule sont proches. Par contre celles de la résine et du graphite sont plus éloignées mais restent dans le même ordre de grandeur.

### 2.1.4 Morphologie

L'ensemble des poudres, à l'exception de la semoule dont la taille ne s'y prête pas, a été observée au microscope électronique à balayage (figures 2.2 à 2.4). Ces clichés, outre l'aspect visuel qu'ils apportent, permettent d'une part une analyse morphologique et d'autre part de confirmer les ordres de grandeurs des diamètres des particules déterminés par

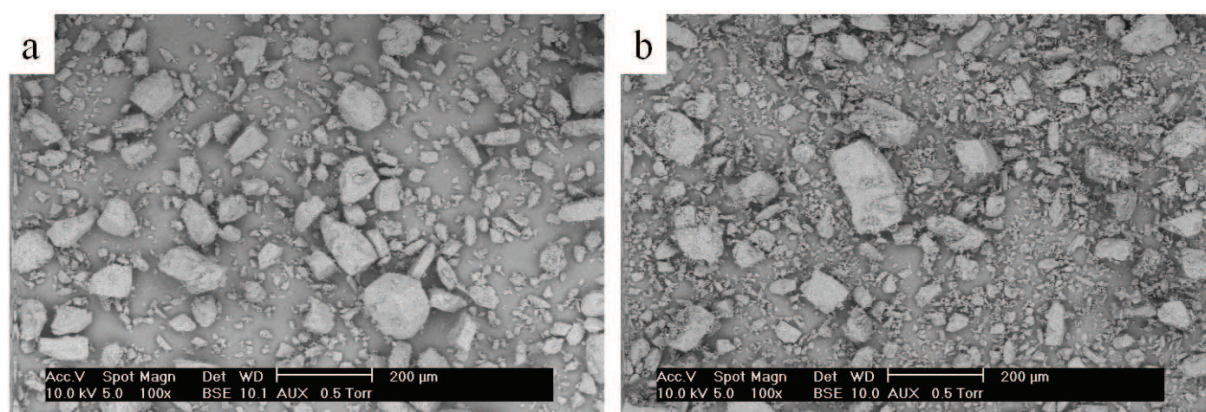


FIGURE 2.2 – Morphologie des particules de lactose 1 (a) et de lactose 2 (b).

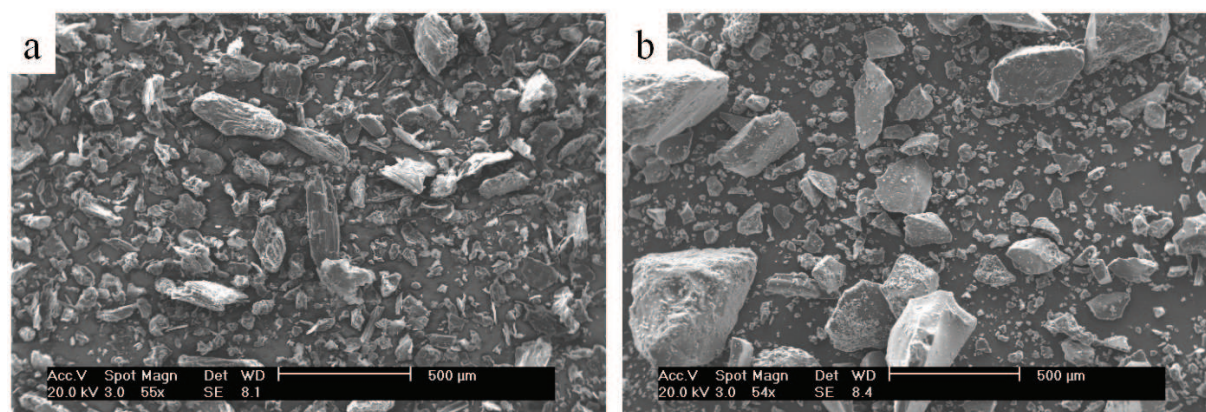


FIGURE 2.3 – Morphologie des particules de graphite (a) et de résine (b).

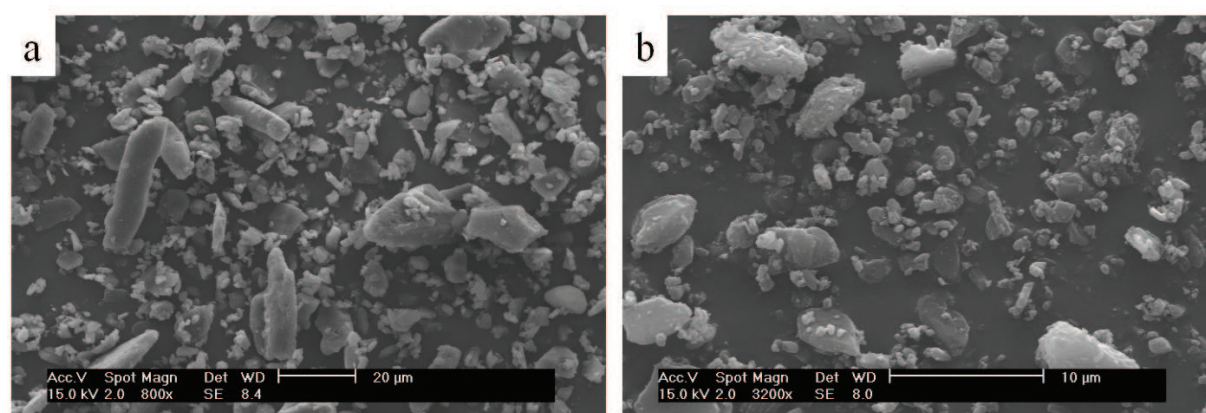


FIGURE 2.4 – Morphologie des particules de durcisseur (a) et de catalyseur (b).

## 2.1 Systèmes particuliers

---

granulométrie LASER.

- Mélanges Lactose/semoule :

La figure 2.2 met clairement en évidence une présence beaucoup plus importante de particules fines dans le lactose n° 2 (figure 2.2 b) par rapport au lactose n°1 (figure 2.2 a) et confirme ainsi les résultats granulométriques. On remarque également que les grains de lactose ont des formes parallélépipédiques .

Les particules de semoule ont, du fait de leur procédé de fabrication, des formes sphériques. Les mélanges modèles seront donc sujet à la ségrégation d'une part à cause des fortes différence de tailles entre les constituants du mélange et d'autre part parce que la forme des particules aura peu tendance à stabiliser le système particulaire (Venables and Wells, 2001).

- Mélange composite :

Les particules de résine présentent aussi des grains parallélépipédiques plus ou moins réguliers mettant en évidence l'obtention de ces particules par un procédé classique de broyage. Sur la figure 2.3, il apparaît que les particules de graphite ont des formes assez allongées de type plaquettes ou aiguilles et présentent beaucoup d'aspérités du fait de sa structure en feuillets. Le graphite pourra donc présenter des difficultés d'écoulement mais aura également peu tendance à la ségrégation.

Les clichés de la figure 2.4 confirment également les tailles très faibles des particules de durcisseur et de catalyseur comparées à celles des autres constituants du mélange composite (10 à 20 fois inférieures). Au vu de ces tailles et des faibles teneurs, nous pouvons nous attendre à la formation d'un mélange ordonné stable entre ces constituants et la résine (adhésion par des affinités chimiques de type Van der Waals).

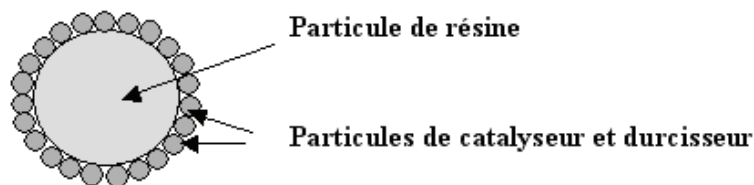


FIGURE 2.5 – Représentation schématique d'une particule de résine totalement enrobée par des particules plus fines de durcisseur et de catalyseur.



Le mélange ordonné auquel nous faisons référence ici est un mélange où les plus fines particules viendraient enrober des particules plus grossières (voir figure 2.5) créant un certain ordre dans le mélange. Ce type de mélange est particulièrement stable et peu sujet à la ségrégation. Il est connu et utilisé dans le domaine des poudres inhalables en pharmacie, les grosses particules jouant le rôle de " porteurs " pour les fines particules de principe actif, celles-ci étant libérées au niveau des bronches.

### Vérification mathématique de l'hypothèse

Afin de valider cette hypothèse, le nombre de particules de résine catalyseur et durcisseur a été estimé en s'appuyant sur les  $d_m$  mesurés au granulomètre laser et en assimilant les particules à des sphères <sup>a</sup> .

	Résine	Durcisseur	Catalyseur
Masse de produit dans 100 g	97 g	2,5 g	0,5 g
Masse d'une particule (en g)	$2,7 * 10^{-8}$	$3 * 10^{-12}$	$1,3 * 10^{-13}$
Nombre de particules	$\approx 3 * 10^9$	$\approx 8 * 10^{11}$	$\approx 4 * 10^{12}$

Pour 1 particule de résine nous avons donc :

- 230 particules de durcisseur
- 1000 particules de catalyseur

Le calcul en surface de sphère nous permet de déterminer que 480 particules de  $8 \mu\text{m}$  (diamètre moyen du durcisseur) ou 3400 particules de  $3 \mu\text{m}$  (diamètre moyen du catalyseur) seraient nécessaires pour enrober totalement une sphère de diamètre  $175 \mu\text{m}$  (diamètre moyen de la résine). D'un point de vue mathématique, il semble n'y avoir aucune contre indication à la formation de ce type de mélange.

<sup>a</sup>. Une erreur est commise notamment pour les particules de durcisseur dont la forme est assez éloignée d'une sphère. Cependant la détermination des  $d_m$  au granulomètre laser se base déjà sur cette hypothèse. De plus, le calcul présenté ici ne vise pas à la détermination d'un nombre exact de particules mais plutôt à l'estimation d'un ordre de grandeur

Cette hypothèse n'a pas pu être validée de manière physique, car lors de la réalisation de photos MEBE d'un mélange constitué de résine, durcisseur et catalyseur, il est impos-

## 2.1 Systèmes particuliers

---

sible d'identifier si les grains de résine sont enrobés par des particules de catalyseur et de durcisseur ou par des particules plus fines de résine.

Vu que les masses de catalyseur et de durcisseur présentes au sein de la matrice sont très faibles en comparaison à celle de la résine, nous avons choisi de conserver cette hypothèse malgré tout. Dans la suite de l'étude, le catalyseur, le durcisseur et la résine seront donc assimilés à un seul constituant appelé matrice, dont les propriétés d'écoulement sont très proche de celles de la résine.

### 2.1.5 Aptitude à l'écoulement

Afin de comparer les propriétés d'écoulement des différents systèmes particuliers et de les relier aux comportements des poudres au sein du mélangeur, nous avons cherché à quantifier leur écoulement.

La compressibilité d'un milieu granulaire est liée aux propriétés d'écoulement. En effet dans un milieu fortement compressible, les particules auront la possibilité de s'arranger de sorte à réduire au minimum les distances inter-granulaires. Ceci pourra engendrer des forces de cohésion beaucoup plus importantes.

L'indice de Carr (Carr, 1970) et le rapport d'Hausner (Hausner, 1967), déterminés à partir des masses volumiques aérées et tassées permettent d'approcher de manière quantitative la coulabilité et la compressibilité d'une poudre.

$$\text{Indice de Carr} = \frac{\rho_{tassée} - \rho_{aérée}}{\rho_{tassée}} \quad (2.2)$$

$$\text{Rapport de Hausner} = \frac{\rho_{tassée}}{\rho_{aérée}} \quad (2.3)$$

avec

- $\rho_{tassée}$  : masse volumique apparente tassée
- $\rho_{aérée}$  : masse volumique apparente

À partir des masses volumiques précédemment déterminées, ces indices ont été calculés pour les différents constituants et une interprétation qualitative a été donnée. Le tableau 2.3 synthétise ces informations.

Tableau 2.3 – Indice de Carr et Rapport d’Hausner pour les différents constituants des mélanges.

Produits utilisés		Indice (%) de Carr (%)	Ratio d’Hausner	Apréciation
Mélange composite	Graphite	42 %	1,73	Coulabilité : exécration Poudre compressible
	Résine epoxy	25%	1,34	Coulabilité : mauvaise Compressibilité intermédiaire
Mélanges modèles	Lactose 1	38 %	1,61	Coulabilité : très mauvaise Poudre compressible
	Lactose 2	47%	1,90	Coulabilité : exécration Poudre compressible
	Semoule	7,3%	1,08	Coulabilité : excellente Poudre peu compressible

Les fonctions d’écoulement réalisées à partir d’études de cisaillement permettent de quantifier plus précisément l’écoulement des produits, en particulier pour les produits cohésifs. En effet cette mesure intègre les effets des divers propriétés des poudre et des caractéristiques physiques (forme et taille des particules, humidité, température...).

Les fonctions d’écoulement ont été tracées grâce à une cellule annulaire de Schulze. Le dispositif permet de déterminer le lieu cinématique de rupture (LCR) c’est-à-dire le cisaillement à partir duquel il y a rupture pour une contrainte normale appliquée sous différentes charges de consolidations. On obtient alors un couple  $(f_c, \sigma_1)$  qui représente l’état de cohésion de la poudre en fonction de sa consolidation. L’obtention de plusieurs LCR pour différentes consolidations permet d’obtenir la courbe  $f_c = f(\sigma_1)$  nommée fonction d’écoulement.

Les produits cohésifs, d’après les résultats de coulabilité et de compressibilité, ont été étudiés suivant ce protocole. Les fonctions d’écoulement associées sont présentées sur la figures 2.6 pour les deux lactoses et la figure 2.7 pour le graphite et la résine. La courbe d’écoulement de la semoule n’a pas été tracée car ce produit ne pose aucune difficulté d’écoulement.

## 2.1 Systèmes particulaires

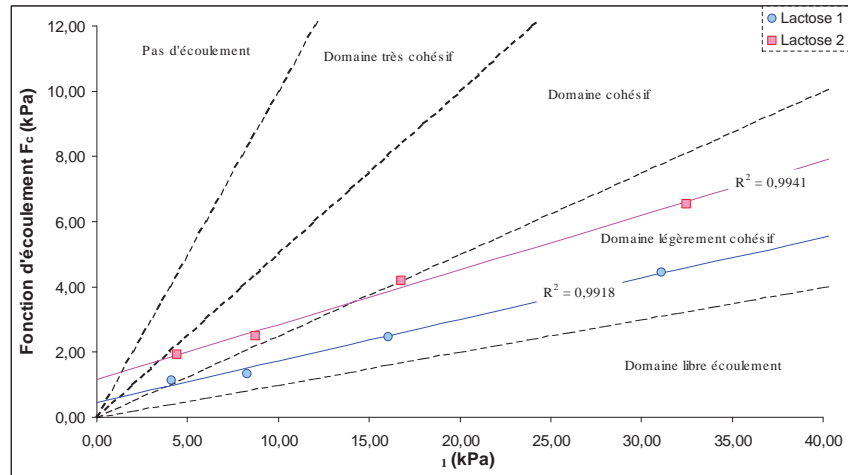


FIGURE 2.6 – Fonctions d'écoulement obtenues pour le lactose 1 et 2.

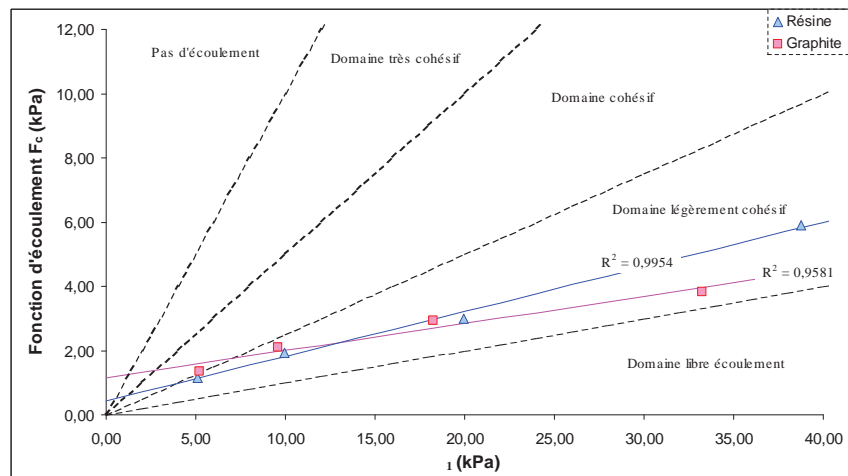


FIGURE 2.7 – Fonctions d'écoulement obtenues pour la résine et le graphite.

Des régression linéaires ont été tracées à partir des points expérimentaux afin d'estimer  $f_c$  pour les très faibles consolidations qui correspondent à celles que peuvent subir la poudre au sein d'un mélangeur ou lors de sa vidange. Pour tous les produits sauf le graphite, on obtient des droites avec des coefficients de corrélation très acceptables ( $> 0,99$ ). Le graphite semble avoir un comportement un peu plus complexe et la régression linéaire obtenue n'est pas satisfaisante. De ce fait, la coulabilité du graphite au sein du mélangeur est difficile à estimer.

Les fonctions d'écoulement confirment la tendance fortement cohésive de l'ensemble des produits - à l'exception de la semoule - dans des conditions de manipulations à faibles contraintes. Elles mettent également en évidence des aptitudes à l'écoulement différentes,

le lactose 2 apparaissant comme le produit le plus difficile à mettre en mouvement. Le lactose 1 et la résine, bien qu'également cohésifs semblent pouvoir s'écouler plus facilement.

Cependant, Demeyre (2007) a montré que la coulabilité de mélanges réalisés à partir de lactose et de semoule était nettement supérieure à celle du lactose seul. De ce fait on peut s'attendre à un bon écoulement du mélange modèle 1 et un écoulement un peu moins bon pour le mélange modèle 2.

Vu les faibles différences dans les propriétés d'écoulement de la résine et du graphite, la coulabilité du mélange composite restera très proche de celle de ces constituants.

### 2.1.6 Résumé des principales propriétés des systèmes particuliers

Tableau 2.4 – Résumé des principales propriétés des différents constituants.

		Morphologie	Taille ( $d_m$ )	Coulabilité
Mélanges modèles	Lactose 1	parallélépipédique	$65\mu\text{m}$	- -
	Lactose 2	parallélépipédique	$65\mu\text{m}$	- - - -
	Semoule	sphérique	$1014\mu\text{m}$	+ + +
Mélange composite	Graphite	plaquette	$75\mu\text{m}$	- - -
	Résine	parallélépipédique	$175\mu\text{m}$	-
	Durcisseur	plaquette	$8\mu\text{m}$	Non déterminé : hypothèse de formation d'un mélange ordonné stable avec la résine
	catalyseur	parallélépipédique	$3\mu\text{m}$	

Le mélange composite a été ramené à un mélange de deux constituants sur la base de l'hypothèse de la formation d'un mélange ordonné entre les particules de durcisseur, de catalyseur et de résine. Les trois systèmes particuliers sont donc des systèmes binaires, où les constituants majoritaires sont cohésifs mais présentent des aptitudes à l'écoulement différentes. Les constituants minoritaires présentent quant à eux de réelles différences

## 2.2 Préparation et réalisation des mélanges

---

en terme de taille de particules et propriétés d'écoulements, les mélanges modèles étant a priori plus sujets à la ségrégation. Le tableau 2.4 résume l'ensemble des principales caractéristiques des différents systèmes particuliers.

## 2.2 Préparation et réalisation des mélanges

### 2.2.1 Présentation du dispositif de mélange : le Turbula®

Le Turbula® est un mélangeur à retournement dont le fonctionnement repose sur la combinaison de trois mouvements : une translation, une rotation et une inversion selon la théorie géométrique de Schatz (1975). Cette combinaison entraîne un mouvement tri-dimensionnel proche d'un mouvement chaotique et permet l'obtention rapide de mélanges satisfaisants pour de nombreux cas industriels.

L'appareil est composé d'une cuve insérée et fixée au sein d'un panier de mélange relié par deux étriers à deux axes de rotation (voir figure 2.8). L'ensemble des liaisons sont de type pivot. L'un des deux axes est moteur et entraîne le système à la vitesse choisie. Les plages de vitesses sont fonction de la taille du mélangeur considéré. Sur les modèles standards, il est possible de choisir entre 4 ou 5 vitesses (voir tableau 2.5), le changement de vitesse s'effectuant en déplaçant la courroie d'entraînement sur des poulies à étages. Un variateur de vitesse peut également être ajouté en option.

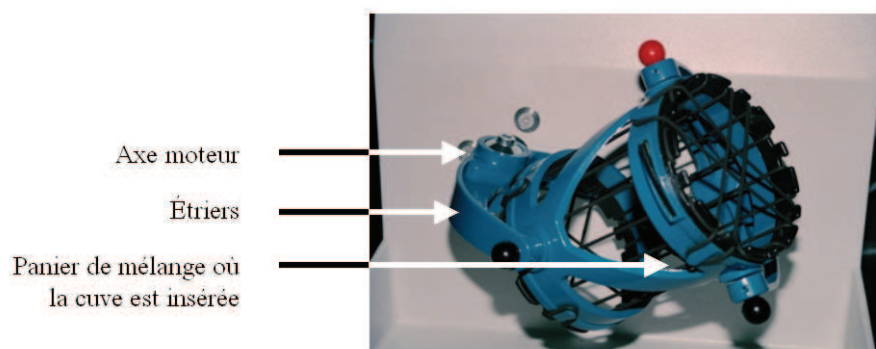


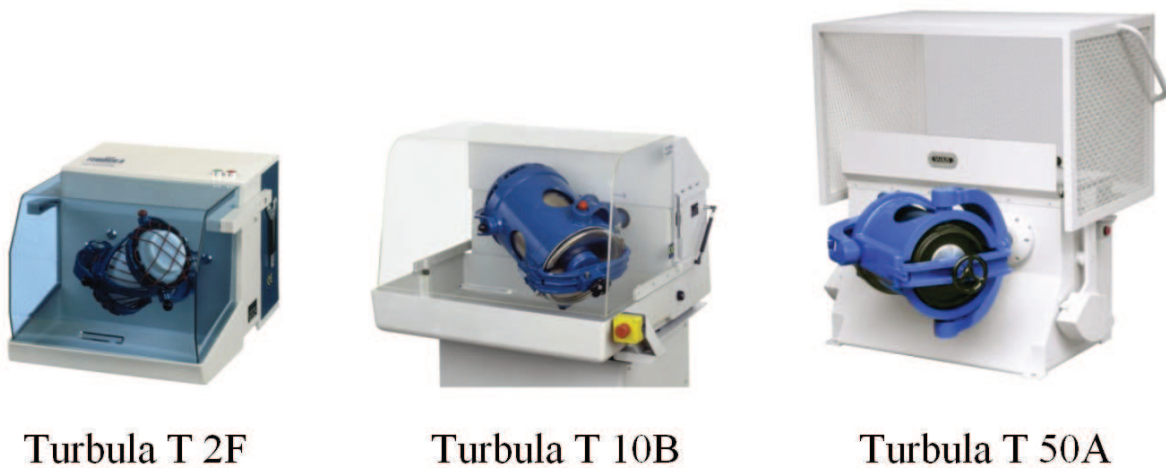
FIGURE 2.8 – Le mélangeur Turbula® T 2F.

Ce mélangeur commercialisé par la société WAB est disponible sous trois tailles : laboratoire (Turbula® T 2F), pilote (Turbula® T 10B) et industrielle (Turbula® T 50A). Ces mélangeurs sont présentés sur la figure 2.9. Le panier de mélange peut recevoir des

Tableau 2.5 – Gamme des vitesses standards pour les 3 tailles de mélangeurs étudiées.

	Vitesses possibles pour l'axe de rotation en entrée
Turbula T 2F	22, 32, 46, 67, 96 tr.min <sup>-1</sup>
Turbula T 10 B	15, 23, 32, 44 tr.min <sup>-1</sup>
Turbula T 50 A	16, 20, 25, 32, 40 tr.min <sup>-1</sup>

cuves normalisées de différents diamètres (Correspondant à des volumes jusqu'à 2L pour le T 2F, 17 L pour le T 10B et 55 L pour le T 50A), il est également possible d'adapter d'autres récipients non standards comme par exemple un tube à essai au sein du turbula<sup>®</sup> T 2F.

FIGURE 2.9 – Les trois tailles de mélangeur Turbula<sup>®</sup> commercialisées par la société WAB.

### 2.2.2 Variables opératoires des mélangeurs Turbula<sup>®</sup>

Les différentes variables opératoires des mélangeurs Turbula<sup>®</sup> pouvant influencer l'état de mélange sont :

**La taille du mélangeur :** La taille du mélangeur est directement reliée au volume de poudre mélangé. De ce fait, son impact sur la qualité du mélange est évident. Dans le cadre de ce travail, nous avons utilisé les trois tailles standards de mélangeur Turbula<sup>®</sup>. Le laboratoire était équipé d'un T 2F. Nous avons fait l'acquisition, au cours de cette thèse d'un T 10B. Par ailleurs, le CEA, partenaire du projet MaSCoTe a également mis à notre disposition un Turbula T 50A afin de pouvoir comparer les

## 2.2 Préparation et réalisation des mélanges

---

résultats de mélanges à trois échelles.

**Le volume de la cuve :** Des cuves de diamètres différents peuvent être insérées au sein des paniers de mélange. Dans cette étude nous avons travaillé avec les cuves en inox normalisées, de diamètre maximum, soit une cuve de 2L pour le T 2F, une cuve de 17 L pour le T 10B et une cuve de 55 L pour le T 50A.

**Le taux de remplissage de la cuve :** Pour les mélangeurs Turbula<sup>®</sup>, il est conseillé de travailler avec un taux de remplissage compris entre 33 % et 70 %. Nous avons travaillé avec un taux moyen constant proche de 50 %.

**La vitesse de rotation de l'axe moteur des mélangeurs :** Les vitesses de rotation de l'axe moteur impliquent généralement des mécanismes de mélange et des régimes d'écoulement différents au sein des mélangeurs. Même si, pour des questions pratiques, la totalité des vitesses n'a pu être étudiée pour les trois systèmes particuliers, nous avons cherché à balayer l'ensemble de la plage de vitesse pour chacune des tailles de mélangeurs.

**La cinétique de mélange :** Le suivi de l'état de mélange en fonction du temps d'opération permet de déterminer la cinétique du mélange. Celle-ci est essentielle pour mettre en évidence les différents mécanismes au sein du mélangeur. Pour les mélangeurs discontinus, comme les mélangeurs Turbula<sup>®</sup>, elle permet également de déterminer le temps de mélange optimal, à partir duquel le mélange n'évolue plus, ou au contraire à tendance à se démixer. Afin de réaliser des comparaisons entre les différentes tailles de mélangeur, le temps de mélange a été adimensionné et exprimé en nombre de tours.

### 2.2.3 Préparation des produits et réalisation des mélanges

- Mélanges modèles :

La composition des mélanges modèles a été déterminée par analyse d'image. Afin d'augmenter le contraste de couleurs entre les deux constituants du mélange, la semoule a été colorée en noir par une solution de bétadine (réaction entre l'amidon contenue dans la semoule et l'iode). Le tableau 2.6 présente les masses des constituants utilisés pour la



réalisation de ces mélanges pour chaque taille de mélangeur.

Tableau 2.6 – Masse des constituants pour la réalisation de mélanges modèles dans les différentes tailles de mélangeur Turbula®.

	Turbula T 2F	Turbula T 10B	Turbula T 50A
Masse de mélange	420 g	3 570 g	11 550 g
Masse de semoule	63 g g	535,5 g	1732,5 g
Masse de lactose	357 g	3034,5 g	9817,5 g

• Mélange composite :

La température de transition vitreuse de la résine epoxy utilisée est proche de 32° C (voir annexe E, page 213). De ce fait, lors d'un stockage prolongé elle a tendance à former des ponts solides qui conduisent à la création d'agglomérats très durs ne pouvant être brisés par la seule force du mélangeur. De même, les particules de durcisseur, du fait de leur taille et de leur nature chimique, ont également tendance à l'agglomération et forment de petits amas.

Afin d'obtenir une meilleure répartition des constituants et un mélange d'une qualité supérieure, nous avons choisi d'éliminer ces agglomérats en amont de l'opération de mélange. Les amas de durcisseur sont donc broyés au mortier à main avant leur introduction dans la cuve de mélange. Dans le cas de la résine, les quantités utilisées pour le mélange ne rendent pas possible l'utilisation d'un mortier à main. De plus la résine étant sensible à la chaleur, nous avons souhaité éviter les procédés de broyage classique. La solution du tamisage a donc été retenue. La résine présentant également une très forte tendance à se charger de manière triboélectrique, celui ci a été réalisé sur un tamis manuel de 500  $\mu\text{m}$ .

Le tableau 2.7 présente les masses des différents produits constituant le mélange composite en fonction de la taille des mélangeurs.

Massol-Chaudeur (2000) a montré que dans un mélangeur à tambour rotatif, l'ordre d'introduction avait une forte influence sur la qualité du mélange obtenu, la situation la plus favorable étant une introduction des constituants minoritaires entre deux couches de constituants majoritaires. Cependant, du fait de la spécificité du mouvement du Turbula® l'ordre d'introduction des constituants semble avoir moins d'importance que dans le cas d'un mélangeur à tambour rotatif (voir chapitre 3, section 3.1.4.1, page 125). Nous avons

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

---

Tableau 2.7 – Masse des constituants pour la réalisation de mélanges composites dans les différentes tailles de mélangeur Turbula®.

	Turbula® T 2F	Turbula® T 10B	Turbula® T 50A
Masse de mélange	420 g	3 570 g	11 550 g
Masse de catalyseur	0,315 g	2,68 g	8,66 g
Masse de durcisseur	1,57 g	13,4 g	43,3 g
Masse de résine	61,1 g	519,4 g	1680,5 g
Masse de graphite	357 g	3034,5 g	9817,5 g

choisi d'introduire en premier les constituants ayant les plus faibles teneurs au sein du mélange. En effet cette solution a permis dans le cas du T 2F de peser directement les produits dans la cuve du mélangeur évitant ainsi les pertes lors des transvasages, en particulier pour le catalyseur et le durcisseur dont les masses introduites sont très faibles.

La cuve est ensuite insérée et fixée dans le mélangeur et la vitesse de rotation de l'axe moteur du mélangeur est réglée sur la valeur choisie. Afin de prendre en compte l'inertie du mélangeur, celui-ci est arrêté un peu avant la fin du nombre de tours choisi, de tel sorte que sa position d'arrêt coïncide avec le nombre de tours complet fixé.

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

Nous avons montré dans le chapitre 1 que la caractérisation de l'homogénéité d'un mélange est fortement liée à la problématique d'échantillonnage. En effet, la variance expérimentale est la somme de la variance réelle du mélange, de la variance d'échantillonnage et de la variance de la méthode d'analyse :

$$\sigma_{exp}^2 = \sigma_{mel}^2 + \sigma_{ech}^2 + \sigma_{ana}^2 \quad (2.4)$$

La méthode d'analyse doit permettre de minimiser  $\sigma_{ech}^2$  et  $\sigma_{ana}^2$  de telle sorte que  $\sigma_{exp}^2$  soit le plus proche possible de  $\sigma_{mel}^2$ . Les méthodes d'analyse en ligne permettent souvent un prélèvement dynamique d'échantillons et l'analyse d'un très grand nombre d'entités. Elles limitent donc la variance d'échantillonnage. L'obtention des résultats est généralement rapide, évitant les étapes de transport de l'échantillon au laboratoire d'analyse et sa

préparation avant mesure. Cependant, en fonction de la nature des produits, leur mise en place n'est pas toujours possible. Le choix de la méthode d'analyse doit alors intégrer une réflexion sur l'échantillonnage et les erreurs associées.

### 2.3.1 Mélanges modèles

La composition d'un mélange en sortie d'un mélangeur peut être déterminée grâce à l'analyse des couleurs des produits qui le constituent par analyse d'images. Dans ses travaux de thèse, Demeyre (2007) a développé un dispositif permettant l'analyse de la composition d'un mélange dont les caractéristiques sont assez proches des mélanges lactose/semoule considérés ici. La méthodologie proposée s'appuie donc en partie sur ces travaux.

En pratique, le contenu de la cuve est déversé sur un convoyeur à bande via un entonnoir à l'issue de l'opération de mélange. Une caméra linéaire (CCD) est installée en sortie du mélangeur pour filmer le mélange convoyé par une bande transporteuse. 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.

Du fait du contraste important entre les deux produits, la caméra est utilisée avec une résolution de seulement 8 bits, réduisant ainsi considérablement les temps de traitement des données. La caméra codera donc la scène avec des niveaux de gris compris entre 0 pour le noir et 255 pour le blanc.

- **Présentation du dispositif expérimental :**

Une caméra est dite linéaire lorsque son capteur (CCD) a une dimension de  $1 \times n$  capteurs. Ce type de caméra, largement utilisé en vision industrielle, permet l'acquisition ligne à ligne d'un objet défilant sur une bande transporteuse. Elle permet ainsi de réaliser des images de grande taille avec une luminosité homogène sur la totalité de l'image.

Une caméra linéaire « camera Lord DVL 5000 T » (voir figure 2.10), dont les caractéristiques sont disponibles en annexe D (page 211), a été installée sur un portique au-dessus de la bande transporteuse afin de filmer en continu le mélange après sa vidange. La fixation de la caméra permet d'assurer la stabilité du capteur. L'installation est munie d'un système d'éclairage puissant, composé de deux lampes diffusant une lumière blanche et

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

positionnées de chaque côté de la bande transporteuse, ce qui assure une grande surface d'éclairage. Un caisson en bois permet d'isoler le dispositif d'acquisition d'image de la lumière extérieure. Les images filmées sont envoyées via une sortie RS23 vers une carte d'acquisition reliée à un PC. Un logiciel développé sous Labview® permet le traitement des données. Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 2.11.

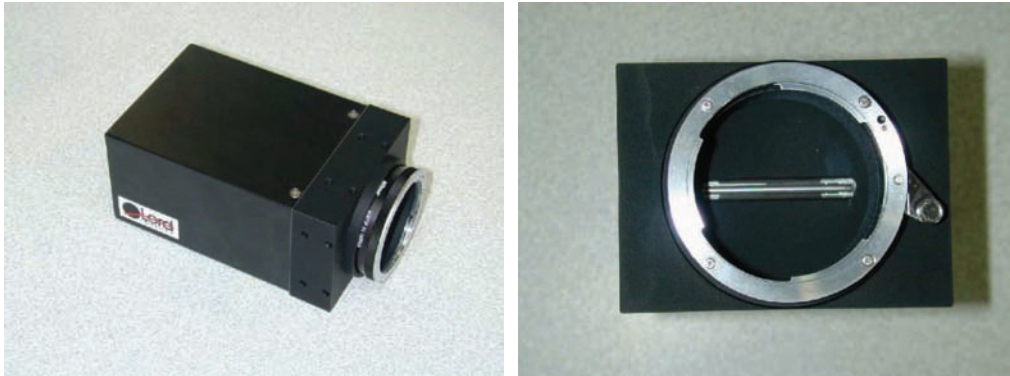


FIGURE 2.10 – La caméra linéaire utilisée, avec à gauche, une vue générale et à droite, le capteur CDD linéaire (5000 pixels).

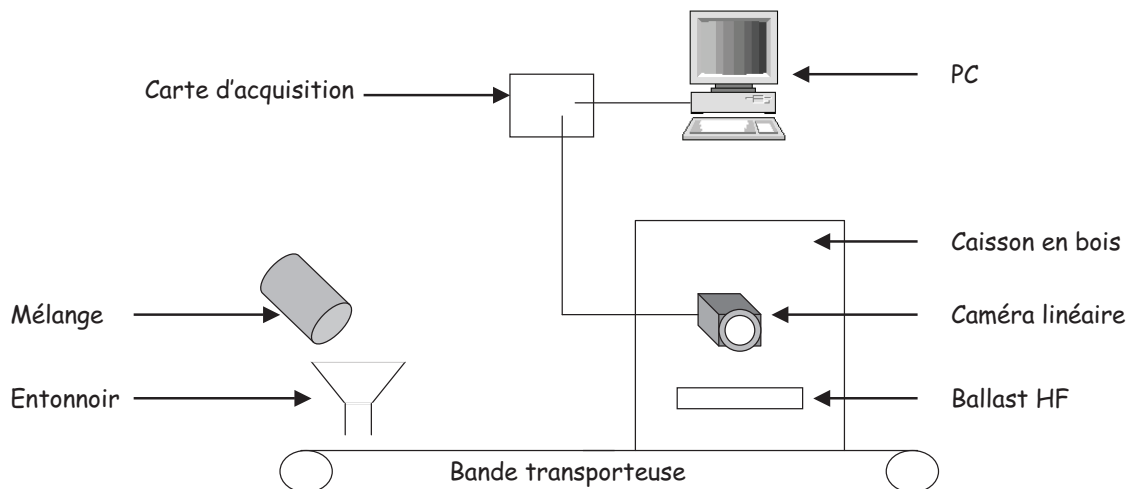


FIGURE 2.11 – Représentation schématique du dispositif expérimental de mesure de l'homogénéité du mélange par analyse d'image.

Afin de limiter les fluctuations de l'épaisseur et la largeur de la couche de poudre obtenue lors de la vidange du mélangeur une pièce de carton rigide inclinée a été fixée sur

la largeur des rails de guidage juste après l'entonnoir (voir figure 2.12).

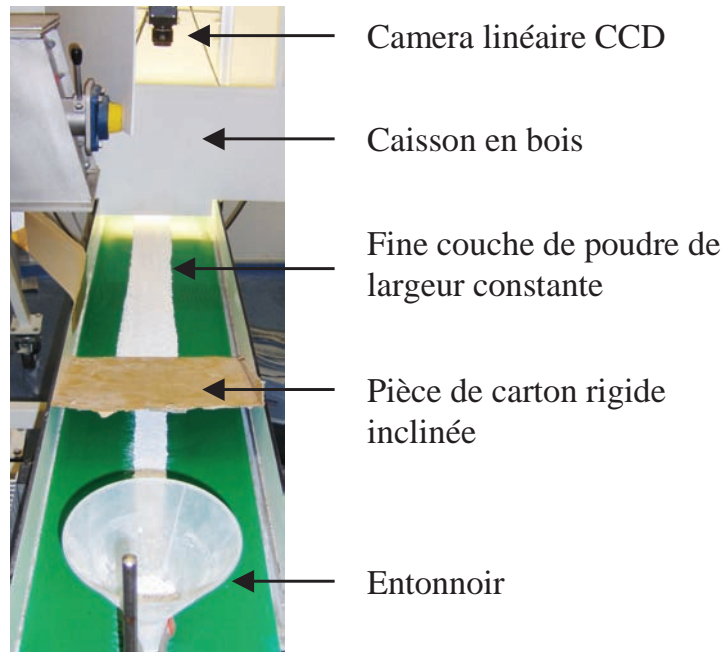


FIGURE 2.12 – Photo du dispositif expérimental mettant en évidence la formation d'une fine couche de poudre de largeur constante.

- **Acquisition d'une image :**

La caméra linéaire reconstruit l'image à partir d'une succession de lignes. La largeur de la bande transporteuse, qui fait 30 cm, est représentée par une ligne de 5000 pixels. Chaque pixel représente alors une zone de  $60 \times 60 \mu m^2$ . L'image a été ici reconstruite à partir de la succession de 200 lignes. Chaque image de  $5000 \times 200$  pixels représente ainsi une surface totale de  $30 \times 1,2 \text{ cm}^2$ . L'image ainsi acquise correspond à la largeur du convoyeur et non à celle du produit. Une région d'intérêt, en "langage labview", a donc été définie. Sa taille correspond exactement à la largeur de la bande du produit sur le convoyeur sur les 200 lignes constituant la hauteur de l'image. Cette image correspondra donc à la taille d'un échantillon.

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

---

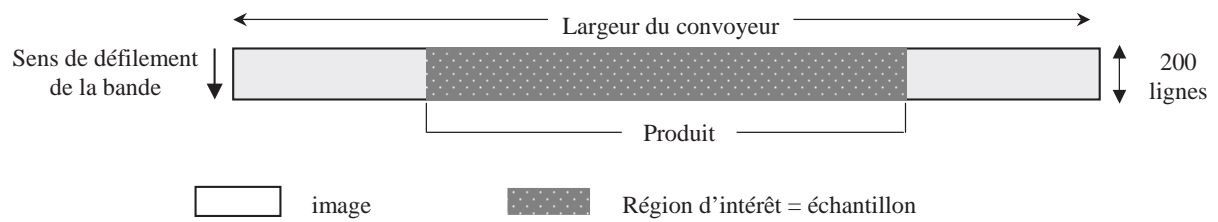


FIGURE 2.13 – Définition de la taille d'image utilisée pour le traitement des données.

Seule la surface supérieure de la couche de poudre est analysée par cette technique. L'hypothèse que l'échantillon est homogène sur l'épaisseur de la couche de poudre est donc réalisée.

Pour filmer la totalité du mélange, il a fallu synchroniser la vitesse de défilement du produit avec la vitesse d'acquisition d'image. En moyenne, la caméra filme 14 images par secondes ; chaque image ayant une "largeur" de 1,2 cm. Par conséquent, la caméra filme le mélange à une vitesse de  $16,8 \text{ cm.s}^{-1}$  ( $14 \times 1,2 \text{ cm.s}^{-1}$ ). 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 d'une image :**

Les mélanges modèles sont constitués à 85% de lactose blanc et à 15% de semoule noire. Sur l'image acquise, la bande n'est pas visible car les poudres la recouvrent.

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. La différenciation des produits est réalisée grâce à la binarisation de l'image, à chaque pixel est assignée une valeur de 0 ou de 1 : les pixels dont le niveau de gris est inférieur à la valeur choisie pour le seuillage prennent la valeur 0, les autres pixels prennent la valeur 1.

- **Calibrage de la méthode :**

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 est considérée comme sombre. En décalant le niveau de seuillage, à proportion massique de semoule constante, on obtient des réponses en proportion de pixel noir différentes. La détermination du seuillage est donc étroitement liée à la construction de la courbe d'étalonnage.

Demeyre (2007) a mis en évidence que cette courbe n'est pas linéaire pour des proportions massiques de particules noires balayant une gamme de 0 à 100%. Par contre, une droite peut être obtenue sur des plages plus restreintes. Typiquement, les échantillons au sein des mélanges modèles ont des teneurs massiques en semoule évoluant entre 10% et 20%. L'étalonnage a donc été réalisé pour des mélanges dont la composition en semoule varie entre 5% et 25%. Ces proportions correspondent aux concentrations que l'on peut rencontrer pour les mélanges analysés.

Dans le cas d'un échantillonnage exhaustif, la valeur de la moyenne des compositions mesurées de l'ensemble des échantillons doit être égale à la moyenne vraie du mélange. Des mélanges de différentes concentrations ont été réalisés dans le T 2F à partir du lactose 1 qui permet un échantillonnage exhaustif. Pour chaque concentration, la manipulation a été réalisée trois fois, puis une moyenne des résultats a été faite pour obtenir la droite d'étalonnage de la figure 2.14. Une régression linéaire a été réalisée, le coefficient de corrélation obtenu étant supérieur 0,99, la droite a été jugée acceptable.

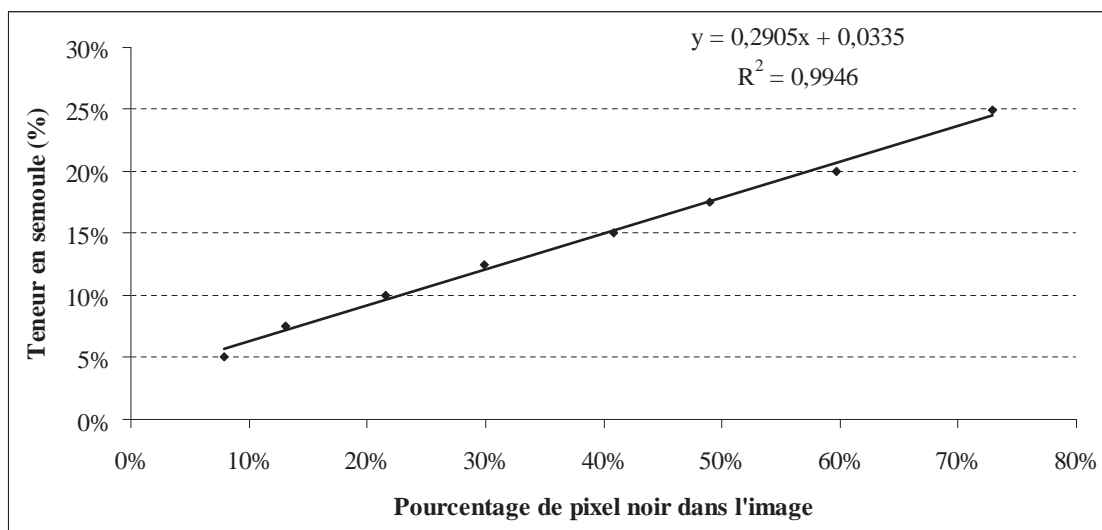


FIGURE 2.14 – Droite d'étalonnage liant la proportion de pixel noir à la teneur massique en semoule de l'échantillon analysé.

Malgré la présence du caisson en bois pour isoler le système de la lumière extérieure, il est apparu que celle-ci avait un léger impact. En fonction des heures de la journée, la moyenne des échantillons obtenue lors de l'analyse exhaustive d'un mélange de concen-

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

---

tration connue, pouvait s'éloigner de  $\pm 3\%$  de la moyenne théorique. Nous avons mis en évidence que cet écart était dû à une erreur systématique de la méthode d'analyse, car des tests réalisés successivement avec le même mélange conduisaient à la même erreur. Une rectification de la valeur du seuillage (variation de quelques points) permettait bien de retrouver la moyenne théorique. Il est possible qu'avec le temps, le système d'éclairage utilisé depuis 2005 ait perdu une partie de sa puissance et soit de ce fait plus sujet aux fluctuations de la lumière extérieure.

Pour minimiser cette erreur, chaque série d'essai a été précédée d'un test avec un mélange type, de concentration 85% en lactose. La valeur de seuillage était alors éventuellement ajustée.

La droite d'étalonnage reste valable pour les mélange modèles réalisés à partir du lactose 2, car les deux produits ont exactement la même couleur.

- **Échelle d'observation et échantillonnage :**

L'épaisseur de la couche de poudre peut être augmentée en relevant légèrement l'entonnoir au travers duquel celle-ci est vidangée. Une couche plus épaisse de poudre implique une taille d'échantillon plus grande et augmente l'incertitude sur l'homogénéité potentielle de l'épaisseur du lit de poudre. À l'inverse abaisser l'entonnoir permet de réduire l'épaisseur de la couche de poudre et la taille des échantillons mais induit des difficultés d'écoulement. Nous avons donc cherché la position de l'entonnoir permettant la formation d'une couche la plus fine possible tout en conservant un écoulement fluide des produits. Dans ces conditions, les échantillons ont des masses voisines de 0,7 g et recouvrent intégralement la bande transporteuse.

Pour le mélange réalisé avec le lactose n°2, beaucoup plus cohésif, une position très élevée de l'entonnoir était nécessaire pour avoir un écoulement correct du mélange. Les tailles d'échantillons associées étaient de ce fait trop importantes. Afin de conserver une échelle cohérente avec les mélanges réalisés à partir du lactose n°1, la position de l'entonnoir n'a pas été modifiée et un dévoutage manuel a été réalisé régulièrement avec une petite baguette au sein de l'entonnoir. Toutefois, malgré ces précautions, certains échantillons n'ont pu être traités car certains espaces du convoyeur n'étaient pas recouverts par la poudre. Lors de l'analyse d'image, la bande était considérée comme des particules noires et l'analyse de l'homogénéité était faussée. Ces échantillons ont été éliminés mais un échantillonnage exhaustif n'a pu être réalisé pour les mélanges fabriqués à partir du



lactose n°2.

La figure 2.15 résume l'ensemble du protocole suivi pour analyser la qualité des mélanges modèles.

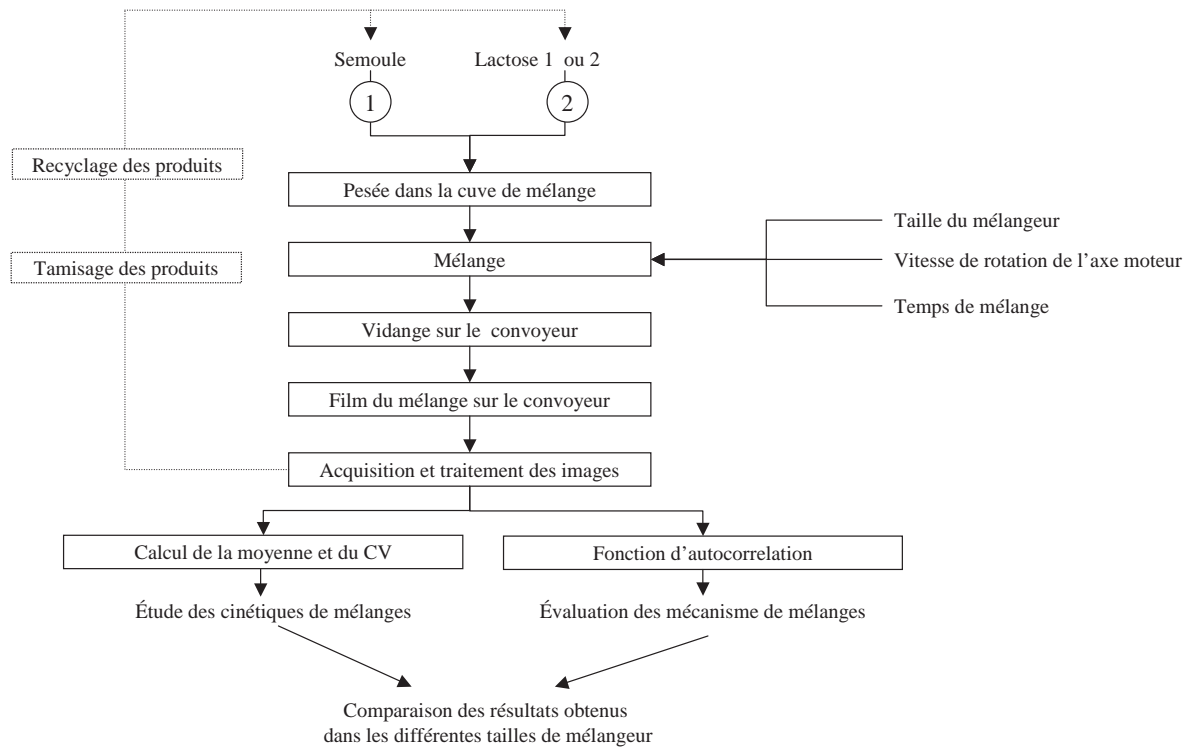


FIGURE 2.15 – Protocole suivi pour l'analyse de la qualité des mélanges modèles.

### 2.3.2 Mélange composite

Le mélange composite est un mélange multi-constituant qui a été ramené à un mélange binaire grâce à l'hypothèse de la formation d'un mélange ordonné stable entre les particules de résine et les particules de durcisseur et de catalyseur. La problématique de l'analyse de la qualité du mélange se ramène donc à l'étude de la dispersion de la composition d'un des deux constituants dans les échantillons.

La résine et le graphite présentent de forts contrastes en terme de propriétés physiques pouvant être utilisées pour une méthode d'analyse en ligne (couleurs, conductivité thermique ou électrique, absorbance IR ou Raman). Cependant lors des mesures associées à

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

---

ces grandeurs physiques, la forte proportion de graphite sature le signal sortant. Ainsi les échantillons ayant des compositions de 70 % ou 95% en graphite renvoient des signaux identiques et il est impossible de remonter à la composition en graphite des échantillons par ces méthodes. Aucune méthode d'analyse en ligne n'a donc pu être mise en place pour le mélange composite. L'analyse de la composition du mélange composite nécessitera donc la sélection et le prélèvement d'échantillons.

Le mélange composite étant à vocation industrielle, les plaques bipolaires composites doivent respecter un cahier des charges afin de permettre la création d'un produit satisfaisant les exigences de l'entreprise HELION. La méthode d'analyse choisie doit tenir compte de ces spécifications.

### 2.3.2.1 Cahier des charges pour les plaques bipolaires composites

Le cahier des charges a été exprimé en terme de composition en graphite à partir des premiers essais réalisés sur des plaques bipolaires composites par les partenaires industriels du projet MaSCoTe (voir figure 2.16).

Soit une plaque composite de 100 mm \* 100 mm \* 3 mm d'épaisseur :

- La plaque est divisée en 900 zones élémentaires de surface 3,3mm\*3,3mm sur l'épaisseur totale de la plaque. Ces zones élémentaires définissent l'échelle d'observation.
- Le taux moyen de graphite sur une plaque doit être compris entre de 84% et 86%. Le taux moyen est déterminé par analyse de la composition en graphite des zones élémentaires.
- La composition de chaque zone élémentaire doit être déterminée à  $\pm 1\%$ .
- La dispersion maximale autorisée entre deux zones moyennes de 3,3 mm\*3,3 mm est de  $\pm 5\%$ . C'est à dire que l'on autorise la présence aléatoire de deux zones consécutives avec des taux de charge de 80% et de 90%.

### 2.3.2.2 Transcription du cahier des charges en terme d'homogénéité de mélange

#### • Définition de l'échelle d'observation :

La masse volumique d'une plaque composite est d'environ  $210 \text{ kg.m}^{-3}$ , au vu de ces dimensions, la masse de poudre nécessaire à la fabrication d'une plaque est d'environ 63g et celle d'une zone élémentaire est donc de  $63 * 1/900 = 0,07g$ . En se basant sur le diamètre moyen,  $d_m$ , des particules et sur leurs masses volumiques vraies, le nombre de

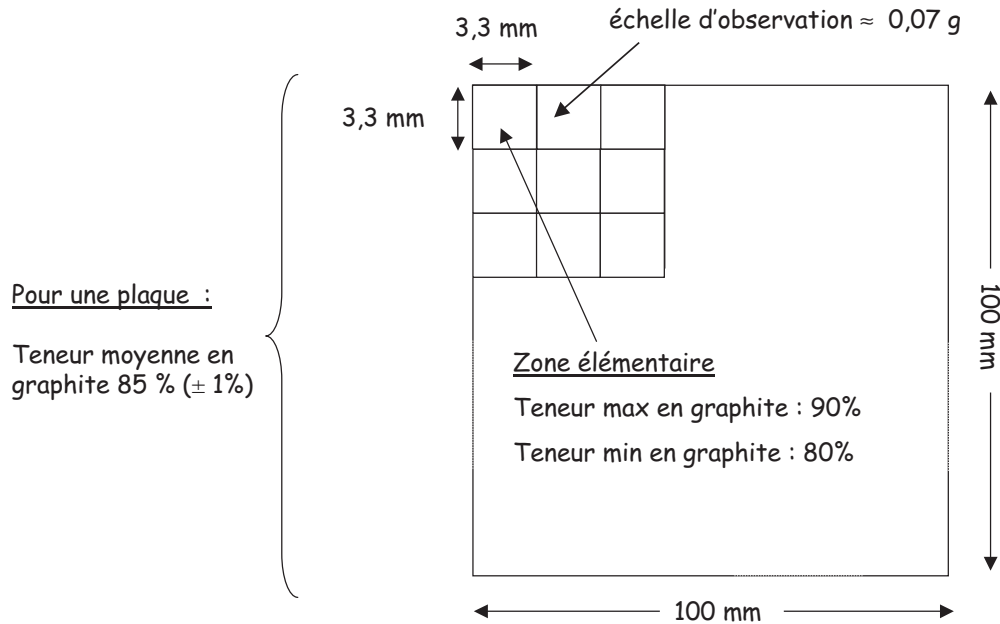


FIGURE 2.16 – Illustration du cahier des charges pour une plaque bipolaire.

particules au sein d'un échantillon ayant une composition de 85% en masse de graphite a été estimée en assimilant les particules à des sphères (Voir tableau 2.8)<sup>1</sup>.

Tableau 2.8 – Estimation du nombre de particules dans un échantillon de 0,07g ayant une teneur en graphite de 85%.

	Graphite	Résine	Durcisseur	Catalyseur
Masse de produit dans un échantillon	$5,95 * 10^{-2}$	$1,02 * 10^{-2}$	$2,63 * 10^{-4}$	$5,25 * 10^{-5}$
Masse d'une particule	$4,86 * 10^{-9}$	$2,70 * 10^{-8}$	$3,00 * 10^{-12}$	$1,30 * 10^{-13}$
Nombre de particule dans un échantillon	$\approx 1 * 10^7$	$\approx 4 * 10^5$	$\approx 9 * 10^7$	$\approx 4 * 10^8$

Quel que soit le constituant du mélange considéré, le nombre de particules estimé au sein d'un échantillon de 0,07 g est supérieur à  $10^5$ , l'échelle d'observation retenue est donc acceptable.

1. Une certaine erreur est commise lors de cette estimation car lors de l'étude morphologique, nous avons mis en évidence que les particules de graphite n'étaient pas sphériques. Cependant nous recherchons seulement ici un ordre de grandeur du nombre de particules.

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

---

### • Critères d'acceptation d'un mélange :

La qualité d'un mélange de poudre est généralement estimée à partir de la valeur du coefficient de variation (CV). Pour le mélange composite, le cahier des charges stipule que la teneur des échantillons doit être comprise entre 80% et 90%, nous avons donc cherché à estimer quelle valeur de CV était associée à un mélange dont la quasi totalité des échantillons validaient ce critère en simulant différents états de mélange.

Considérons un mélangeur T 2F rempli à 50% en volume par un mélange composite. Si la masse des échantillons est de 0,07 g, alors 6000 échantillons sont nécessaires pour représenter la totalité du mélange.

En se basant sur l'hypothèse que la composition en graphite des échantillons au sein du mélange suit une distribution normale, nous avons simulé, à partir de l'utilitaire de génération de nombres aléatoires de MS excel 2000, la teneur de ces 6000 échantillons, pour 4 écart-types, de telle sorte que la moyenne des compositions soit bien égale à 85%.

Le tableau 2.9 synthétise les valeurs demandées lors des simulations et les valeurs réelles mesurées pour les 6000 échantillons générés. Les graphiques de la figure 2.17 représentent les distributions des compositions échantillons pour chacune des simulations, les bornes supérieures (90%) et inférieures (80%) étant représentées par des traits pleins.

D'après ces graphiques, un CV inférieur à 2% semble garantir que la quasi-totalité des échantillons a une composition comprise entre 80% et 90%. Ainsi les mélanges dont la teneur moyenne en graphite est comprise entre 84% et 86% et dont le CV est inférieur à 2% valident le cahier des charges.

Tableau 2.9 – Valeurs des moyennes, écart-types et CV simulées et valeurs réellement obtenues lors de la génération de 6000 échantillons aléatoires selon une loi normale.

	Simulation 1	Simulation 2	Simulation 3	Simulation 4
moyenne demandée	85%			
écart-type demandé	0,85%	1,28%	1,70%	2,10%
CV demandé	1%	1,5%	2%	2,5%
Moyenne mesurée	85,00%	85,00%	84,97%	85,08%
écart-type mesuré	0,85%	1,27%	1,69%	2,11 %
CV mesuré	1,00%	1,49 %	1,99%	2,48 %

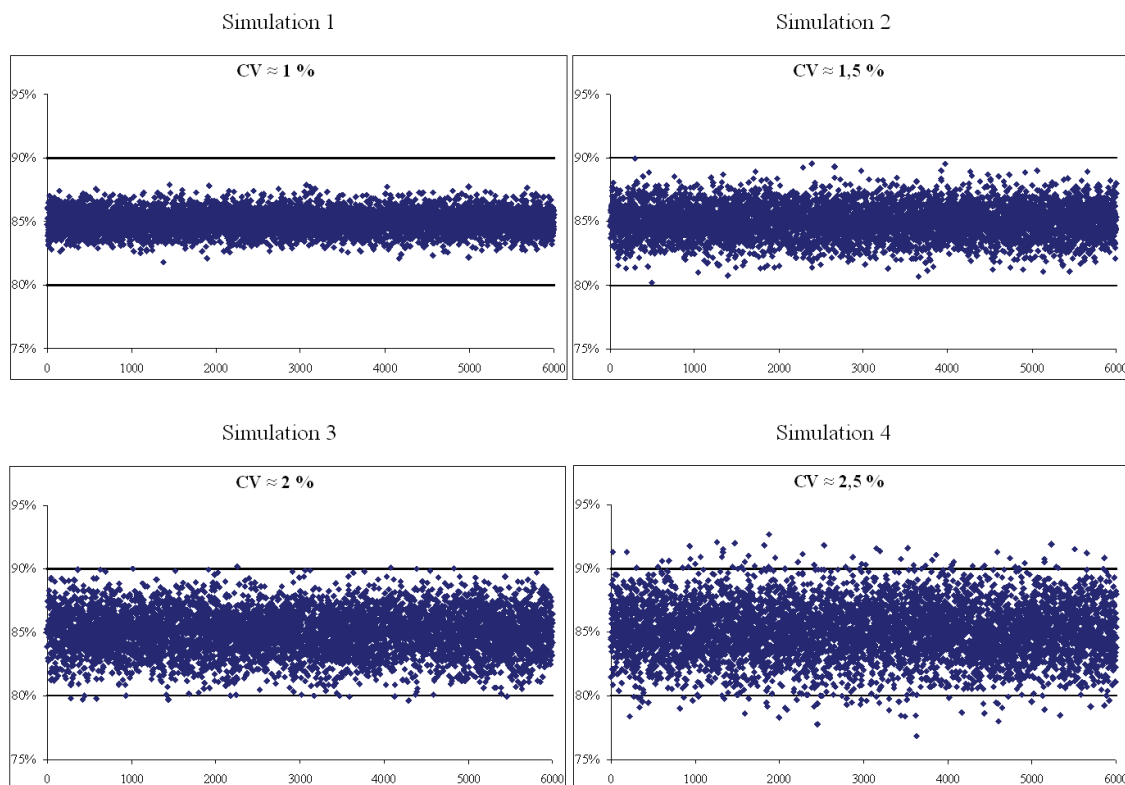


FIGURE 2.17 – Distribution de la composition des 6000 échantillons simulés pour des CV de 1%, 1,5%, 2% et 2,5 %. Les traits pleins en noirs correspondent aux limites acceptables pour les compositions des échantillons afin obtenir des plaques satisfaisant le cahier des charges.

• **Détermination du nombre d'échantillons à prélever. :**

Le tableau 2.10 présente le nombre d'échantillons potentiels en fonction des différentes tailles des mélangeurs (remplis à 50% en volume).

Tableau 2.10 – Nombre d'échantillons potentiels de 0,07 g en fonction de la taille du mélangeur utilisé.

	Turbula T 2F	Turbula T 10B	Turbula T 50A
Masse de mélange	0,420 kg	3,570 kg	11,550 kg
Nombre d'échantillons potentiels	6 000	51 000	165 000

Le nombre d'échantillons à analyser doit être suffisamment important pour minimiser les erreurs associées à la sélection des échantillons. Cependant, comme aucune méthode d'analyse en ligne n'est possible, et au vu du nombre d'échantillons potentiels au sein du mélange, un échantillonnage exhaustif n'est pas envisageable. Il s'agit donc pour nous de

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

déterminer le nombre minimum d'échantillons qui permet de distinguer un mélange ayant un CV de 2,5 % (mélange non acceptable) d'un mélange avec un CV de 2 % (mélange acceptable).

Lorsqu'on prélève  $n$  échantillons parmi  $Z$  échantillons potentiels, la variance estimée ( $s^2$ ) sur ces  $n$  échantillons a peu de chance d'être égale à la variance vraie ( $\sigma^2$ ) des  $Z$  échantillons. Plus le nombre d'échantillons prélevé est grand, plus la probabilité d'avoir une variance mesurée proche de la variance vraie est importante. D'après Poirier (1992), l'intervalle d'incertitude de la variance estimée peut être déterminée d'après la loi du  $\chi^2$  pour un nombre  $n$  d'échantillons au risque  $\alpha$  par :

$$I_{1-\alpha}(s^2) = \left[ \frac{\sigma^2}{n-1} * \chi_{\alpha/2}^2; \frac{\sigma^2}{n-1} * \chi_{1-\alpha/2}^2 \right] \quad (2.5)$$

La figure 2.18 présente l'évolution des intervalles d'incertitudes de la variance mesurée pour un nombre d'échantillons prélevés évoluant entre 10 et 100, pour des valeurs  $\sigma = 1,7\%$  ( $CV \approx 2\%$ ) et  $\sigma = 2,1\%$  ( $CV \approx 2,5\%$ ) au risque  $\alpha = 90\%$ .

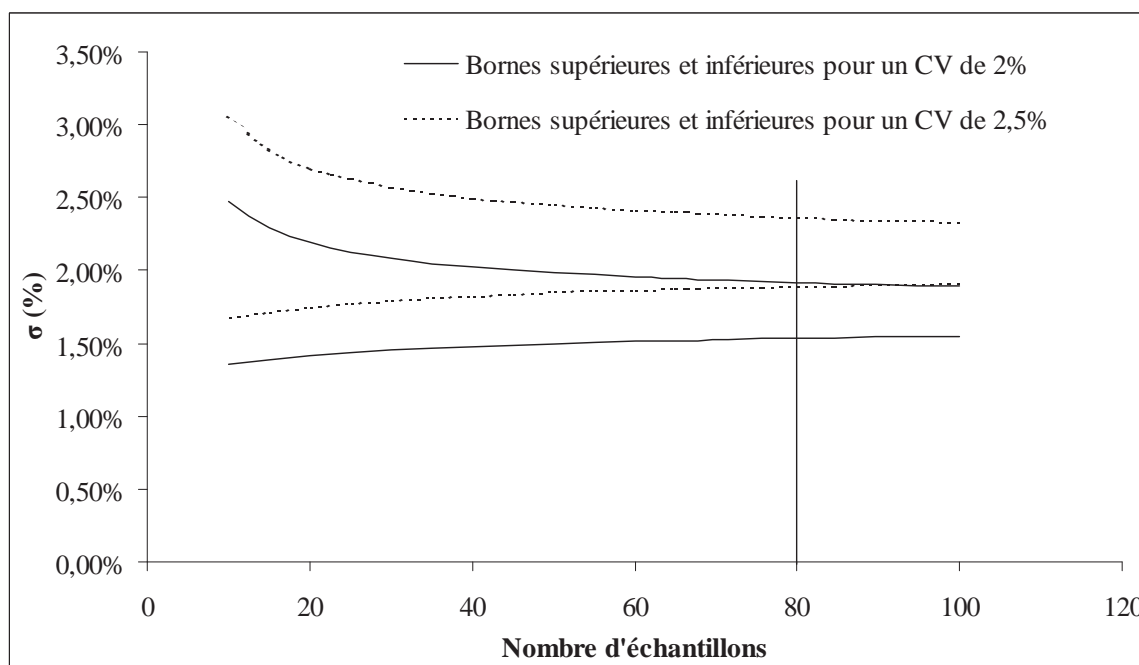


FIGURE 2.18 – Représentation des bornes supérieures et inférieures des intervalles au sein desquelles les CV mesurés ont une probabilité de 95% de s'y trouver, pour des valeurs de  $CV_{vraie}$  de 2% et 2,5%.

Ces courbes mettent en évidence que le prélèvement de 100 échantillons est nécessaire pour que les intervalles des CV mesurés ne se chevauchent absolument pas. Cependant, l'intervalle évolue très peu entre 80 et 100 échantillons prélevés. Ce faible gain de précision ne justifie donc pas une augmentation de 20% des temps d'analyse.

De même l'intervalle d'incertitude sur la moyenne estimée peut être déterminé par l'équation 2.6, où  $t_\alpha$  qui dépend du risque  $\alpha$  et du nombre d'échantillons  $n$  est donné par la table de Student.

$$I_{1-\alpha}(x_m) = \left[ \mu - \frac{t_\alpha * \sigma}{\sqrt{n}}; \mu + \frac{t_\alpha * \sigma}{\sqrt{n}} \right] \quad (2.6)$$

Pour 80 échantillons prélevés, et :

- $\sigma = 1,7\%$  soit  $CV \approx 2\%$  on trouve  $I_{90\%} = [84,68\%; 85, 32\%]$
- $\sigma = 2,1 \%$  soit  $CV \approx 2,5\%$  on trouve  $I_{90\%} = [84,55\%; 85, 45\%]$

Ainsi le prélèvement de 80 échantillons permet une estimation de la moyenne dans les exigences du cahier des charges pour les plaques bipolaires composites. Ce nombre de 80 échantillons a donc été retenu. Toutefois, pour prendre en compte les incertitudes liées à l'échantillonnage, les CV mesurés seront toujours représentés avec l'intervalle de confiance à 90% pour la variance vraie.

### 2.3.2.3 Méthode d'analyse de la qualité du mélange composite

La méthode choisie doit permettre l'analyse d'un grand nombre d'échantillon (80) avec une précision de  $\pm 1\%$  sur la teneur des échantillons. Le principe de la méthode que nous avons développé ici repose sur la combustion d'un des deux constituants du mélange.

La polymérisation de la résine avec le catalyseur et le durcisseur commence aux environs de  $130^\circ \text{C}$  et est complètement achevée à  $200^\circ \text{C}$  (les courbes de DSC sont présentées en annexe E, page 213).

L'analyse thermogravimétrique (ATG) consiste en la mesure de la variation de masse d'un échantillon en fonction de la température, sous azote ou sous air. Des ATG ont été réalisées pour un échantillon connu de matrice (résine, catalyseur et durcisseur) et un échantillon de graphite sous air, les résultats sont présentés sur la figure 2.19. Pour un temps supérieur à 60 min, la totalité de la matrice a été brûlée sans cendre résiduelle. Pour le graphite, il a également été observé une légère perte de masse de l'ordre de 0,4%.

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

Les isothermes d'adsorption de vapeur d'eau (DVS) ont permis de montrer que cette perte de masse était probablement liée à la présence d'eau adsorbée en surface.

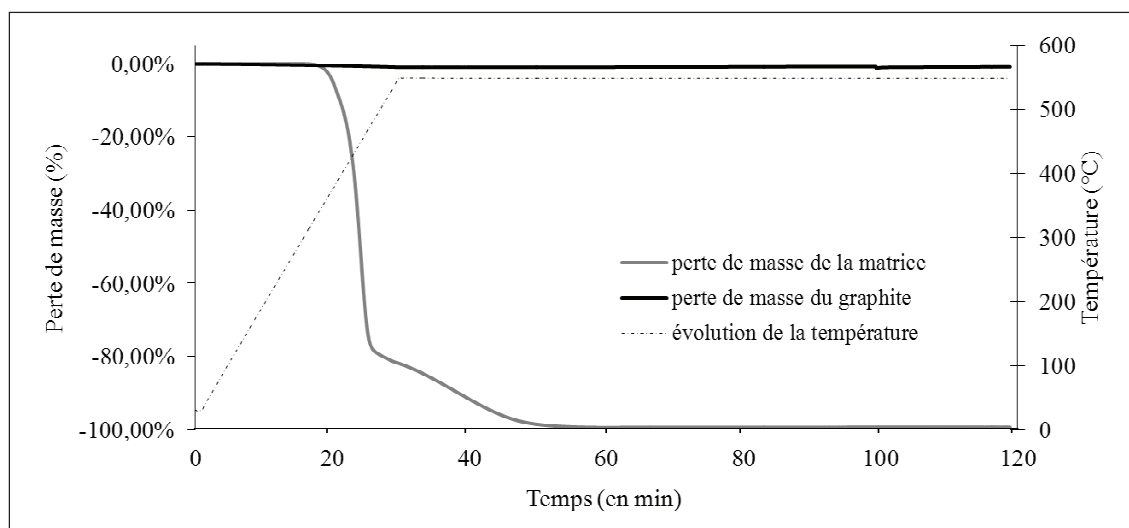


FIGURE 2.19 – Évolution de la perte de masse d'un échantillon de matrice et du graphite en fonction de la température et du temps, pour une pente de 18 ° C par min.

La combustion des échantillons est réalisée au sein d'un four de laboratoire dont la plage de température d'utilisation est comprise entre 30 ° C et 3000 ° C. Les échantillons sont disposés dans des creusets en céramique préalablement tarés. La masse des échantillons est relevée et les échantillons sont disposés au sein du four. Le cycle du four se décompose en deux étapes : une montée en température d'une durée de 20 min puis un palier à 550°C pendant 1 h 30.

Le temps de cycle a été surestimé par rapport aux résultats de l'ATG (masse d'échantillons d'environ 15 mg) afin de tenir compte de la différence de masse entre les échantillons utilisés pour l'ATG et ceux prélevés pour l'étude du mélange composite. Au sortir du four, les échantillons sont refroidis à température ambiante afin d'être à nouveau pesés.

La teneur en graphite ( $T_g$ ) est déterminée à partir de la différence entre la masse initiale des échantillons ( $m_e$ ) et celle après combustion ( $m_g$ ), en intégrant un facteur correctif pour tenir compte de la perte de masse de 0,4% de l'eau adsorbée en surface du graphite. La figure 2.20 schématise le protocole opératoire utilisé.



$$T_g = \frac{m_g * (1 + 0,4\%)}{m_e} \quad (2.7)$$

Cette procédure permet l'analyse des 80 échantillons prélevés pour l'analyse d'un mélange en trois jours. La durée d'analyse des échantillons est donc acceptable. La figure 2.20 résume ce protocole opératoire.

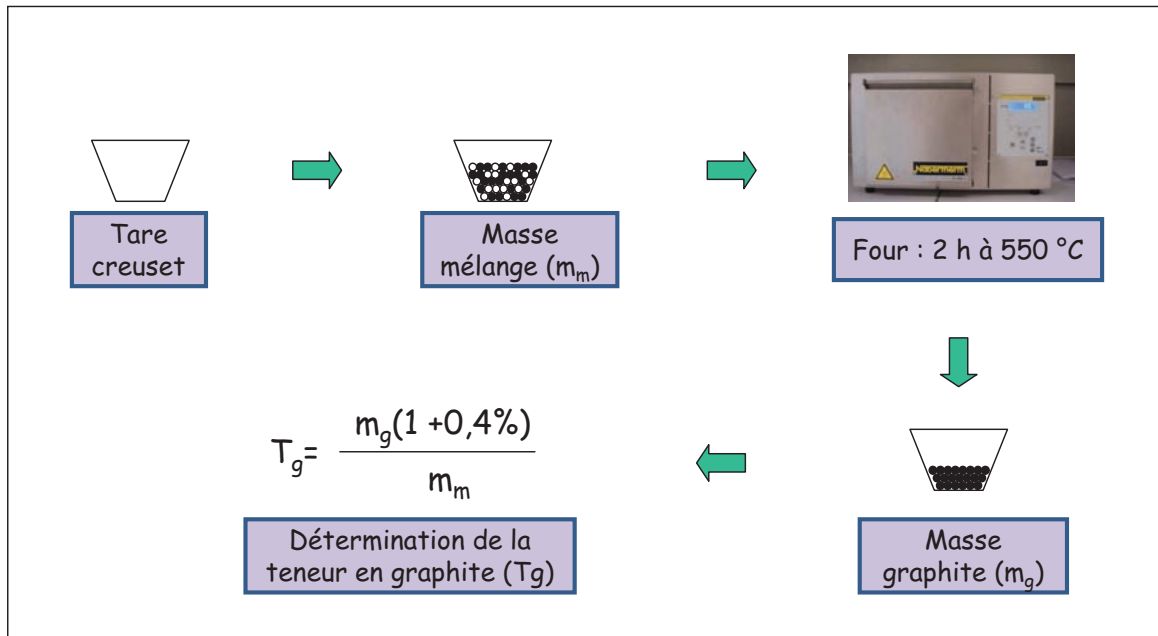


FIGURE 2.20 – Protocole pour la détermination de la composition des échantillons du mélange composite.

L'erreur associée à la détermination de la teneur en graphite par ce protocole a été évaluée à 0,7% pour 100 échantillons de compositions connues. Cette erreur est donc inférieure à celle demandée dans le cahier des charges.

#### 2.3.2.4 Procédure de prélèvement des échantillons

La méthode de prélèvement retenue est une méthode de prélèvement dynamique s'appuyant sur les travaux de Massol-Chaudeur (2000) pour l'analyse de mélanges faiblement dosés. En sortie du mélangeur, la poudre est déversée via une goulotte vibrante et un entonnoir sur une bande transporteuse, un variateur de vitesse permettant de régler la vitesse de la bande. Les échantillons sont prélevés au moyen de racks (voir figure 2.21) préalablement disposés sur la bande. La position des racks est déterminée de manière

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

aléatoire grâce à une macro développée sous excel afin de sélectionner les échantillons selon une loi d'intégration au hasard (Voir chapitre 1, section 1.3.3.2, page 38)

La vitesse de la bande et l'amplitude des vibrations permet d'ajuster la masse des échantillons à 0,07g ( $\pm 30$  mg).

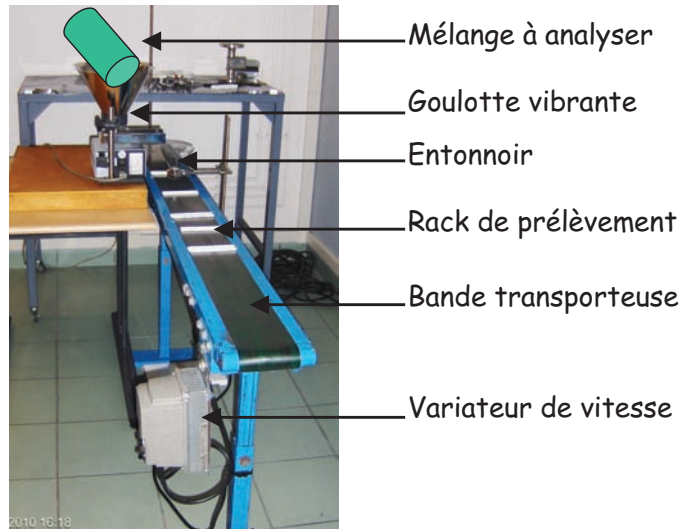


FIGURE 2.21 – Dispositif pour le prélèvement d'échantillons pour le mélange composite.

- **Influence du dispositif de prélèvement sur la qualité du mélange :**

Afin d'étudier l'influence du dispositif de prélèvements des échantillons, un essai en absence d'opération de mélange a été réalisé : la cuve du mélangeur a été remplie avec 15% de matrice et 85% de graphite et vidangée directement sur la bande transporteuse. La qualité du mélange a alors été analysée et le coefficient de variation obtenu comparé au CV théorique correspondant à un état de mélange parfaitement ségrégué.

Si l'on prend l'exemple du mélange réalisé en T 2F, l'ensemble du mélange peut être divisé en 6000 échantillons théoriques de 0,07 g. En l'absence de mélange 5100 échantillons auront une teneur en graphite égale à 1, et 900 échantillons, une teneur en graphite égale à 0. Ainsi la variance vraie de ce mélange est donc égale à

$$\sigma = \sqrt{\frac{5100 * (1 - 0,85)^2 + 900 * (0 - 0,85)^2}{6000}} = 37,5\% \quad (2.8)$$

Soit un CV d'environ 42%. Le coefficient de variation obtenu lors de l'essai "absence de mélange" est égal à 16,03% ce qui correspond à une réduction de CV de plus de 60%. La vidange de la cuve et la goulotte vibrante permettant une répartition homogène du mélange sur la bande transporteuse, influence donc de manière significative l'état de mélange et ceux de manière encore plus marqué pour des mélanges dont la qualité n'est pas bonne.

Lorsque la qualité du mélange s'améliore, nous avons montré à la section 2.1.4 que ce système particulière est plutôt stable. L'influence du dispositif de prélèvement est donc plus limitée.

De plus, la vidange de la cuve est essentielle pour l'utilisation du produit et nous avons montré au chapitre 1, section 1.3.3.2 que les erreurs induites par un prélèvement au sein de la cuve étaient également très importante et pouvaient pouvant aller jusqu'à plus de 300%.

Enfin l'utilisation de la goulotte vibrante est également nécessaire pour obtenir des échantillons de masse reproductible et ainsi avoir des résultats cohérents par rapport à l'échelle d'observation définie pour le mélange composite. Ce même dispositif ayant été utilisé pour l'étude de tout les mélanges composites, son influence est identique pour tous les essais et les comparaisons entre les différentes essais sont fiables.

### **• Adaptation de la méthode de prélèvement pour les mélanges réalisés en T 50A :**

Pour des raisons pratiques et sécuritaires, il n'était pas envisageable de vidanger la totalité de la poudre contenu dans le T 50A sur la bande transporteuse. La poudre a donc été vidée à la pelle et répartie en 8 lots de masse identique. Trois de ces lots ont été sélectionnés selon un processus aléatoire et le prélèvement de 80 échantillons répartis sur les 3 lots a été réalisé avec le dispositif de prélèvement décrit ci-dessus.

La figure 2.22 schématise le protocole opératoire utilisé pour l'analyse du mélange composite.

## 2.3 Méthode d'analyse de la composition des mélanges

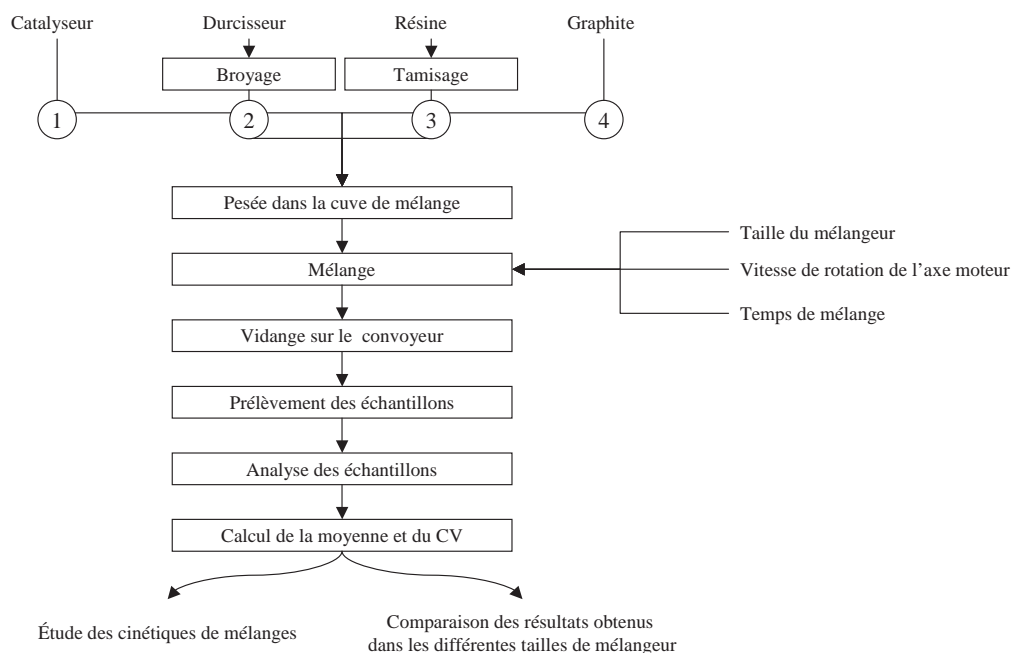


FIGURE 2.22 – Protocole suivi pour l'analyse de la qualité des mélanges composites.

### • Exemples de distribution de compositions obtenue lors de l'analyse de mélange

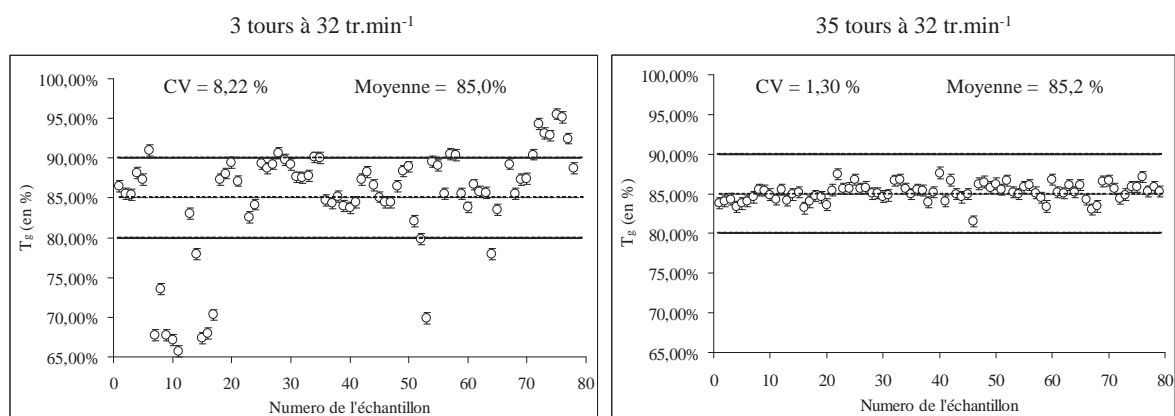


FIGURE 2.23 – CV obtenus pour 3 tours et 35 tours, à 32 tr.min<sup>-1</sup>.

La figure 2.23 illustre deux distributions de la composition de 80 échantillons prélevés et analysés selon ce protocole. À gauche, le mélange a été obtenu après 3 tours à 32 tr.min<sup>-1</sup> a un CV de 8,2% et ne satisfait donc pas les critères d'acceptation du mélange.

À droite, le mélange obtenu pour 35 tours, toujours à  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  a un CV égal à 1,30% et une moyenne de 85,2% et répond donc tout a fait aux critères d'acceptation. On remarque d'ailleurs que tous les échantillons sont bien compris entre 80% et 90%.

### 2.3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes attachés à caractériser les systèmes particulaires utilisés dans ces travaux. Nous avons également chercher à quantifier l'écoulement des différents produits.

Pour chaque système particulaire, nous avons mis en place un protocole permettant l'analyse de la qualité du mélange, en nous appuyant, pour les mélanges modèles sur une méthode par analyse d'image et pour les mélanges composites sur le prélèvement de 80 échantillons et l'analyse de leurs compositions par combustion de la matrice polymérique.

Grâce à ces méthodes, nous avons pu estimer la qualité de différents mélanges réalisés dans les trois tailles Turbula, pour différents temps de mélange et construire les cinétiques de mélanges qui seront présentées dans le chapitre suivant.

# Chapitre 3

## Aspects dynamiques du mélange dans les mélangeurs de type Turbula®

### Description du contenu

---

<b>3.1</b>	<b>Modélisation du mélangeur Turbula®</b>	<b>118</b>
<b>3.2</b>	<b>Dynamique de mélange pour les mélanges modèles</b>	<b>130</b>
<b>3.3</b>	<b>Dynamique de mélange pour les mélanges composites</b>	<b>145</b>

---

Le mécanisme du mélangeur Turbula® est un des rares mécanismes tridimensionnels ayant trouvé une application industrielle. Son principe repose sur une chaîne de Bricard 6R, c'est à dire un mécanisme surcontraint à 6 liaisons pivots.

Bien que très largement utilisé en recherche et en industrie, son mouvement a été peu étudié dans la littérature. Nous pouvons toutefois citer les travaux de Brat (1969) et Yu (1980) qui expliquent son mécanisme d'un point de vue géométrique en se basant sur la théorie des chaînes octaédriques de Bricard et l'étude de Wohlhart (1981) qui a permis d'établir les équations régissant le mouvement du centre de gravité de la cuve du mélangeur.

Cependant, si ces études permettent sans doute aux mécaniciens une meilleure compréhension du mécanisme en lui-même, elle ne permettent pas à l'ingénieur d'appréhender les trajectoires des produits au sein de la cuve. Dans l'objectif d'identifier les mécanismes de mélange et de ségrégation responsables de l'état de mélange et pour la prédire en fonction des propriétés de la poudre, les performances du mélangeur, la connaissance de cette dynamique est indispensable.

Dans le chapitre 1, section 1.4.3 (page 63) nous avons présenté les différents régimes d'écoulement observables au sein d'un mélangeur à tambour rotatif et les mécanismes de mélange et de ségrégation associés en fonction des propriétés des produits mélangés. Nous allons chercher dans le présent chapitre à appliquer un raisonnement similaire afin de comprendre les aspects dynamiques du mélange dans les mélangeurs de type Turbula® pour les systèmes particuliers présentés au chapitre 2. Ce travail s'est appuyé à la fois sur une modélisation des mélangeurs sous le logiciel de CAO Solidworks et sur l'étude expérimentale des cinétiques de mélange et des calculs d'échelle de ségrégation.

### 3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

Chacune des trois tailles de mélangeur a été modélisée sous le logiciel de CAO Solidworks®. Le mélangeur a été simplifié pour ne conserver que les éléments ayant une influence sur le mouvement de la cuve. Ainsi, pour chaque échelle, les mélangeurs ont été construits à partir de :

- 2 axes de rotations,
- 2 étriers,
- 1 cuve avec 4 accroches permettant la fixation aux étriers.
- 2 socles au sein desquels les axes de rotations peuvent tourner. Ces socles représentent les points d'ancrage au bâti du mélangeur.

Le panier de mélange, dont le seul but est de maintenir la cuve n'a pas été modélisé. Chaque élément est conçu de manière indépendante. La figure 3.1 présente des mises en plans des différents éléments utilisés pour la modélisation du Turbula® T 2F. Les dimensions des éléments du T 10B et T50A sont consultables en annexe (voir annexe F).

Les éléments sont assemblés entre eux en spécifiant les contraintes qui les lient (voir figure 3.2). À part pour les deux socles qui sont fixes, l'ensemble des liaisons sont de type pivot.

#### 3.1.1 Décomposition du mouvement du Turbula®

En spécifiant un des deux axes de rotation comme axe moteur, les mouvements des 3 mélangeurs ont été simulés pour chaque vitesse standard de leur gamme respective (voir au chapitre 2, le tableau 2.5, page 93). À partir de ces simulations, le mouvement du

### 3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

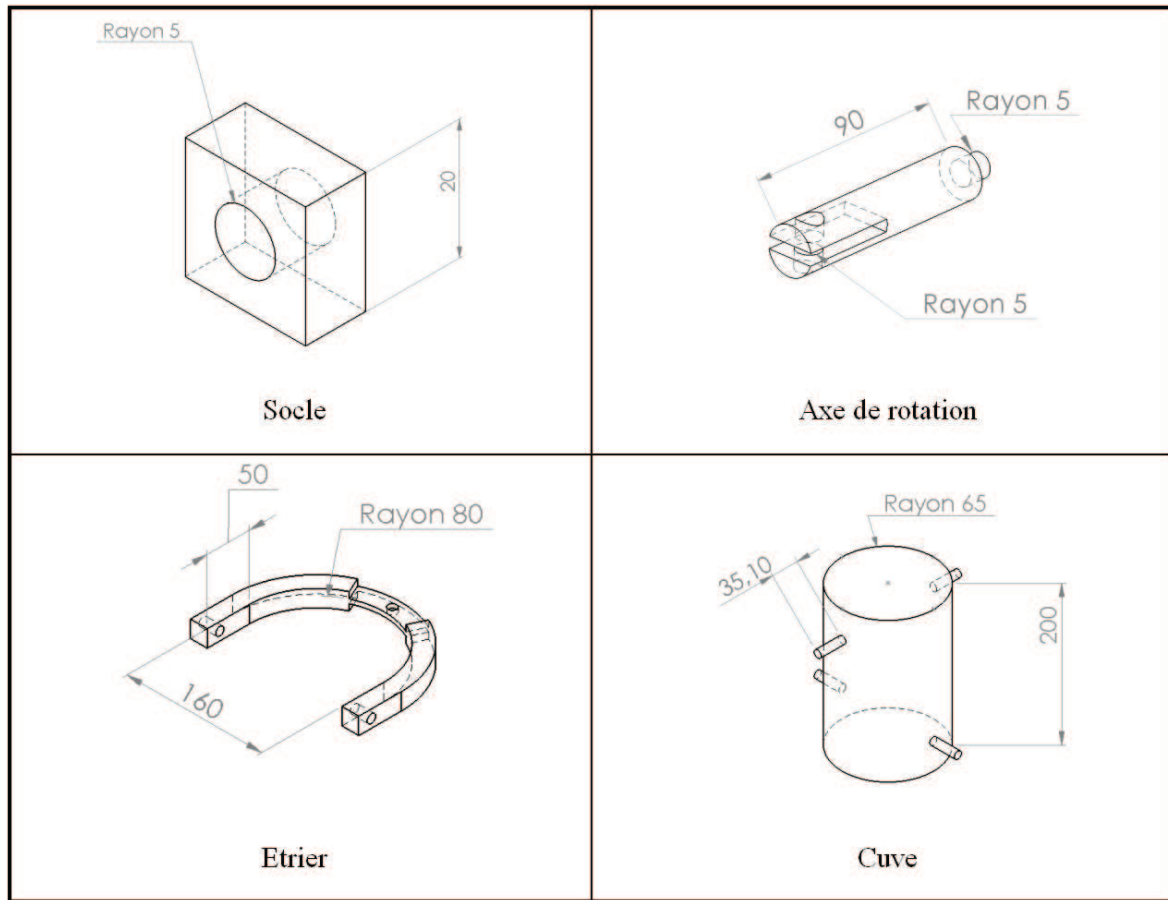


FIGURE 3.1 – Représentation des différents éléments et de leurs principales cotes utilisées pour la modélisation du T 2F.

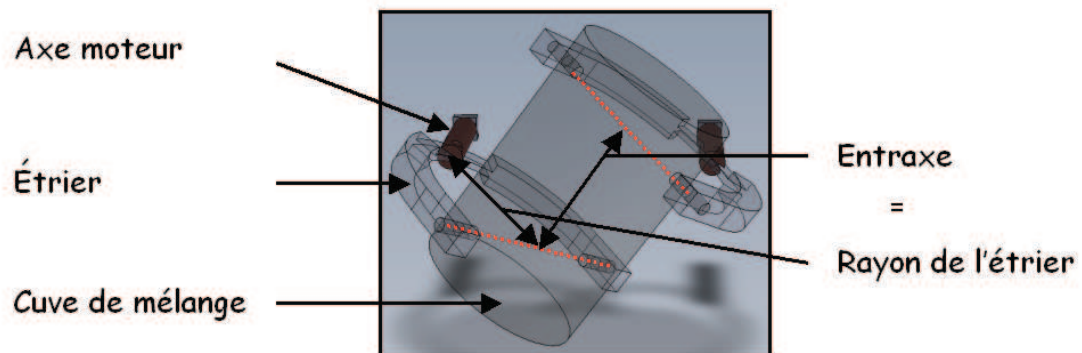


FIGURE 3.2 – Mélangeur T 2F construit sous Solidworks.



mélangeur a été décomposé (voir figure 3.3). Les flèches blanches donnent une indication sur le sens de rotation de la cuve aux différentes étapes du mouvement.

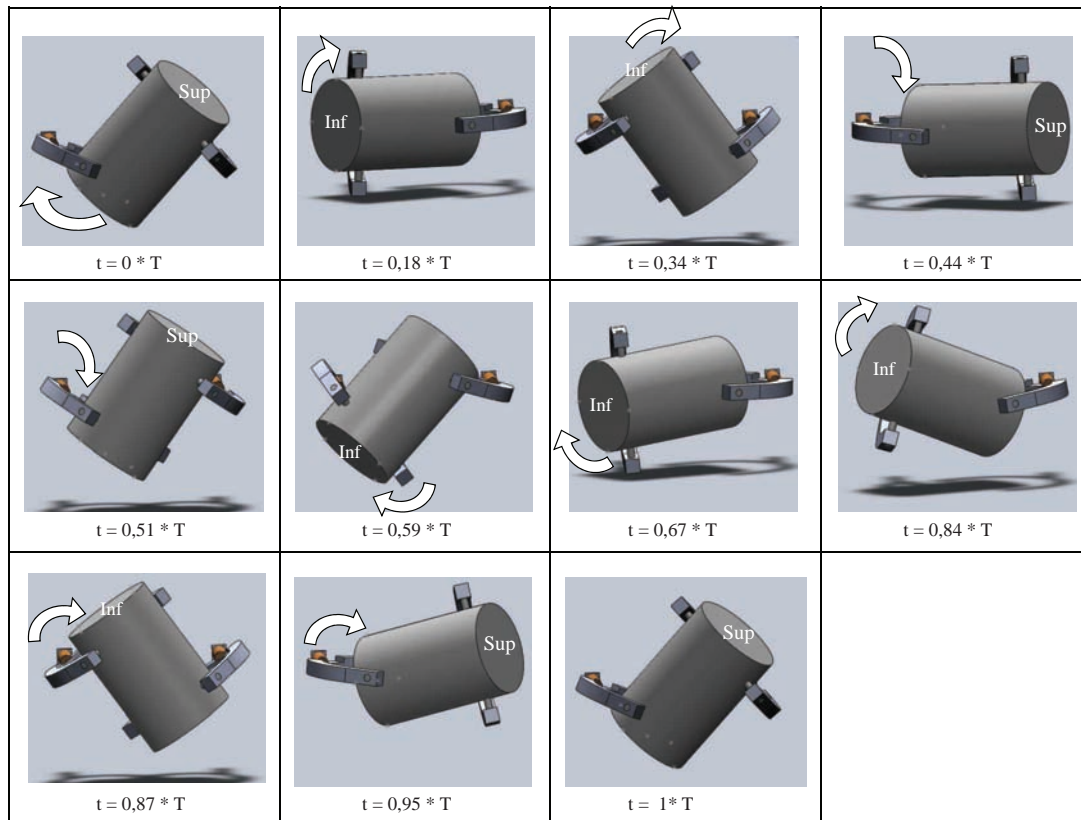


FIGURE 3.3 – Décomposition du mouvement du Turbula® sur une période.

Chaque position du mélangeur a été exprimée en fonction de la période du mouvement qui correspond à un tour complet de l'axe moteur.

Le mouvement principal de la cuve est un mouvement de rotation. Les phénomènes d'inversion apparaissent lorsque la cuve se retourne soit vers  $t=0,43*T$ ,  $t=0,51*T$ ,  $t=0,87*T$  et  $t=1*T$ . Notons aussi la présence des mouvements de translation aux alentours de  $t=0,18*T$ ,  $t=0,44*T$ ,  $t=0,67*T$  et  $T=0,95*T$ .

### 3.1.2 Profils des vitesses et accélérations

Les amplitudes des vitesses et accélérations linéaires ont été extraites pour 5 points situés en bas de cuve (voir figure 3.4). Ces points correspondent au fond du lit de poudre. Lors de l'opération de mélange, la poudre est "renversée" : les particules se trouvant en bas du lit de poudre se retrouvent alors en haut et vice-versa. Ces points représentent

### 3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

---

donc les vitesses et accélérations que peuvent subir typiquement des particules au sein du mélangeur.

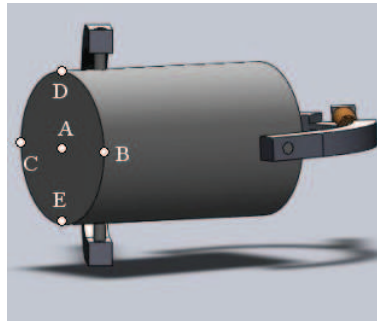


FIGURE 3.4 – Positions des points A, B, C , D et E.

Les courbes de la figure 3.5 présentent, pour le T 2F, les profils de vitesse et d'accélération de ces points en fonction du temps pour une vitesse de rotation de  $22 \text{ tr.min}^{-1}$ . Afin de faciliter la lecture des graphiques, seules 4 positions ont été repérées sur les courbes :  $0,18 * T$ ,  $0,44 * T$ ,  $0,87 * T$  et  $T$ .

Les courbes obtenues sont périodiques, la période coïncidant avec la durée d'une rotation de l'axe moteur. Pour les points B/C et D/E, les courbes associées aux vitesses et accélérations présentent un décalage temporel d'une demi période traduisant la symétrie de ces points par rapport à un plan coupant la cuve en 2 demi-cylindres (point B symétrique au point C et point D symétrique au point E).

Sur la majorité des profils, on remarque la présence d'une ligne de base entre  $0,30$  à  $0,45 \text{ m.s}^{-1}$  pour les vitesses, et vers  $1,5 \text{ m.s}^{-2}$  pour les accélérations. Quelques pics (2 à 4 suivant les profils) remarquables par leur intensité se détachent de ces lignes de base, l'amplitude de ces pics étant variable suivant le point considéré.

À titre d'exemple sur les profils des vitesses obtenues au point D et E, la vitesse passe de  $0,30 \text{ m.s}^{-1}$  à  $0,65 \text{ m.s}^{-1}$  et l'accélération de  $1,5$  à  $3,5 \text{ m.s}^{-2}$  en une demi-seconde (voir figure 3.5-3a et 3b). Ces pics correspondent à des positions spécifiques du mélangeur : les vitesses maximales sont atteintes pour  $0,44 * T$  et  $0,95 * T$ , lors de mouvement de translation et les accélérations maximales sont obtenues lorsque le mélangeur bascule vers  $0,34 * T$ ,  $0,51 * T$ ,  $0,87 * T$  et  $1 * T$ , donc lors des mouvements d'inversion

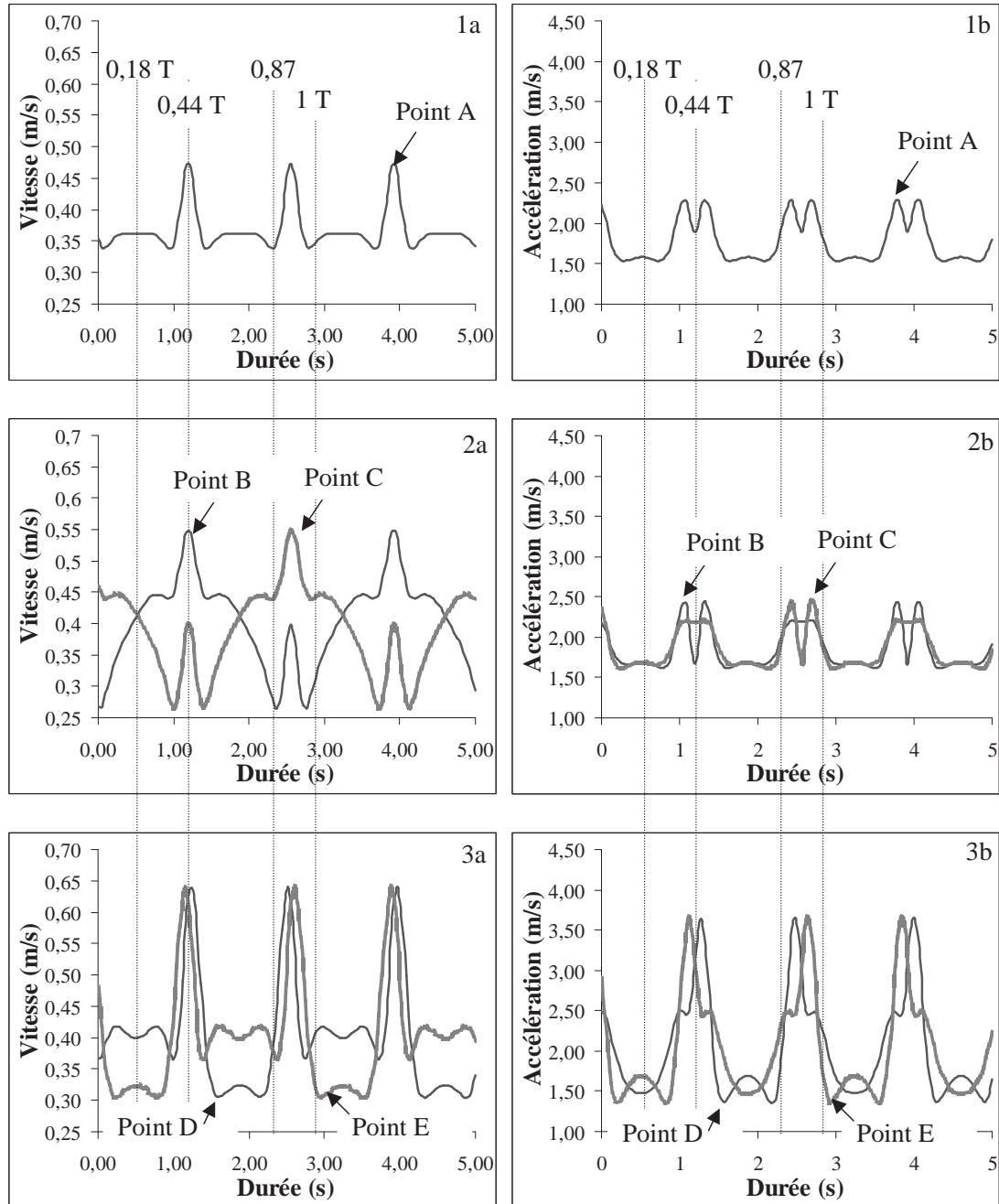


FIGURE 3.5 – Profils des vitesses et accélérations linéaires pour les points A, B, C, D et E de la cuve du mélangeur T 2F à  $22 \text{ tr.min}^{-1}$ .

### 3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

Durant les mouvements de rotation, nous nous situons sur la ligne de base des différents profils (exception faite du profil 3.5-2a), les vitesses et accélérations sont quasi-similaires, favorisant les mouvements d'ensemble de particules et donc à priori les mécanismes de convection.

Au moment des inversions ou des retournements du mélangeur, les vitesses et les accélérations sont différentes suivant les points considérés et l'on peut donc s'attendre à l'apparition de mécanismes de cisaillement. Ces mécanismes peuvent également apparaître aux points B et C durant toute la période de rotation. En effet, ces profils ne présentant pas de ligne de base, les vitesses des point B et C ne sont quasiment jamais similaires à celles des autres points.

#### 3.1.3 Tableaux récapitulatifs des vitesses et accélérations

Les tableaux 3.1 à 3.3 présentent les vitesses et accélérations, moyennes et maximales, extraites aux points A, B/C, D/E pour les trois tailles de mélangeurs.

Tableau 3.1 – Valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations des points A, B/C, D/E dans le T 2F pour les différentes vitesses de l'axe moteur.

	Vitesses moyennes en m.s <sup>-1</sup>			Vitesses maximales en m.s <sup>-1</sup>		
	Point A	Point B/C	Point D/E	Point A	Point B/C	Point D/E
22 tr.min <sup>-1</sup>	0,37	0,40	0,41	0,47	0,55	0,64
32 tr.min <sup>-1</sup>	0,54	0,58	0,59	0,69	0,79	0,93
46 tr.min <sup>-1</sup>	0,77	0,84	0,86	0,98	1,13	1,34
67 tr.min <sup>-1</sup>	1,13	1,20	1,24	1,44	1,66	1,94
96 tr.min <sup>-1</sup>	1,61	1,76	1,77	2,04	1,99	2,79
	Accélération moyennes en m.s <sup>-2</sup>			Accélération maximales en m.s <sup>-2</sup>		
	Point A	Point B/C	Point D/E	Point A	Point B/C	Point D/E
22 tr.min <sup>-1</sup>	1,80	1,88	2,08	2,29	2,44	3,65
32 tr.min <sup>-1</sup>	3,82	3,98	4,42	4,84	5,15	7,72
46 tr.min <sup>-1</sup>	7,92	8,24	9,12	10,0	10,6	15,7
67 tr.min <sup>-1</sup>	16,8	17,5	19,5	21,3	22,6	33,6
96 tr.min <sup>-1</sup>	34,7	35,9	40,1	43,5	46,3	69,1

Tableau 3.2 – Valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations des points A, B/C, D/E dans le T 10B pour les différentes vitesses de l’axe moteur.

	Vitesses moyennes en m.s <sup>-1</sup>			Vitesses maximales en m.s <sup>-1</sup>		
	Point A	Point B/C	Point D/E	Point A	Point B/C	Point D/E
15 tr.min <sup>-1</sup>	0,45	0,49	0,51	0,58	0,68	0,81
23 tr.min <sup>-1</sup>	0,69	0,82	0,76	0,89	1,04	1,24
32 tr.min <sup>-1</sup>	0,97	1,05	1,09	1,24	1,45	1,71
44 tr.min <sup>-1</sup>	1,33	1,43	1,49	1,70	1,99	2,36

	Accélération moyennes en m.s <sup>-2</sup>			Accélération maximales en m.s <sup>-2</sup>		
	Point A	Point B/C	Point D/E	Point A	Point B/C	Point D/E
15 tr.min <sup>-1</sup>	1,50	1,58	1,76	1,92	2,06	3,18
23 tr.min <sup>-1</sup>	3,54	3,71	4,14	4,51	4,84	7,44
32 tr.min <sup>-1</sup>	6,85	7,18	8,00	8,73	9,36	14,27
44 tr.min <sup>-1</sup>	13,0	13,6	15,1	16,5	17,6	27,1

Les ordres de grandeur de ces vitesses et accélérations sont similaires dans les différentes tailles de mélangeur. Cependant, si l’axe moteur tourne à la même vitesse dans les trois mélangeurs, les vitesses et accélérations des points A, B/C et D/E seront différentes. Prenons l’exemple de la vitesse  $N=32 \text{ tr.min}^{-1}$ , les vitesses et accélérations sont d’autant plus importantes que la taille du mélangeur est grande : 0,54/0,97/1,53 pour le point A dans les Turbula® T 2F/T 10B et T 50A).

Pour maintenir constants ces deux paramètres, il faudrait diminuer la vitesse de rotation de l’axe moteur au fur et à mesure que la taille du mélangeur augmente. Ce point sera discuté plus en détails, lorsque nous aborderons la problématique du changement d’échelle (chapitre 4).

Les valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations évoluent de la même manière au sein des différentes tailles de mélangeur. Dans la suite de ces travaux, nous avons choisi de comparer les différentes tailles de mélangeurs sur la base des valeurs maximales : ce sont en effet elles qui sont responsables des plus fortes variations de vitesse et d’accélération. Cependant, le rapport entre vitesses (et accélérations) moyennes et maximales est constant pour un même point ( $\approx 0,78$  pour les points A, et B/C et  $\approx 0,55$

### 3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

---

pour les points D/E ), l'utilisation des vitesses (et accélérations) moyennes conduirait aux mêmes comparaisons.

Tableau 3.3 – Valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations des points A, B/C, D/E dans le T 50A pour les différentes vitesses de l'axe moteur.

	Vitesses moyennes en $m.s^{-1}$			Vitesses maximales en $m.s^{-1}$		
	Point A	Point B/C	Point D/E	Point A	Point B/C	Point D/E
16 $tr.min^{-1}$	0,76	0,82	0,85	0,97	1,12	1,31
20 $tr.min^{-1}$	0,96	1,03	1,06	1,21	1,41	1,64
25 $tr.min^{-1}$	1,19	1,29	1,32	1,51	1,75	2,06
32 $tr.min^{-1}$	1,53	1,65	1,69	1,94	2,23	2,62
40 $tr.min^{-1}$	1,91	2,07	2,11	2,42	2,81	3,27
	Accélération moyennes en $m.s^{-2}$			Accélération maximales en $m.s^{-2}$		
	Point A	Point B/C	Point D/E	Point A	Point B/C	Point D/E
16 $tr.min^{-1}$	2,69	2,81	3,10	3,40	3,68	5,47
20 $tr.min^{-1}$	4,21	4,39	4,84	5,33	5,76	8,57
25 $tr.min^{-1}$	7,92	8,24	9,12	10,0	10,6	15,7
32 $tr.min^{-1}$	10,7	11,2	12,4	13,6	14,7	21,8
40 $tr.min^{-1}$	16,8	17,6	19,3	21,3	23,0	34,3

#### 3.1.4 Forces responsables de l'état du mélange

##### 3.1.4.1 Mélange axial et mélange radial au sein de la cuve

Pour obtenir une bonne dispersion des produits au sein du mélangeur, celui-ci doit permettre à la fois un mélange axial et un mélange radial (voir figure 3.6). Ces mélanges sont obtenus grâce aux mouvements des particules dans ces deux directions.

D'après le principe fondamental de la dynamique, le déplacement des particules est lié à l'ensemble des forces auxquelles elles sont soumises, à savoir :

- les forces de gravité,
- les forces d'inertie,
- les forces de collisions,
- les forces de frottements entre elles et contre les parois,

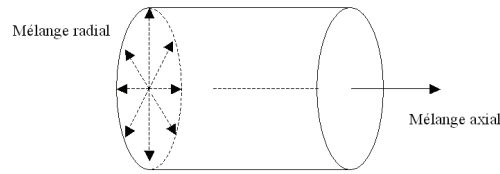


FIGURE 3.6 – Illustration des directions de mélanges pour un mélange axial et longitudinal.

Les deux derniers types de forces sont difficilement estimables au sein d'un lit de poudre et sont fonction de la nature des produits. Nous considérerons donc uniquement ici les forces de gravité et les forces d'inertie engendrées par le mouvement du mélangeur.

Au sein du Turbula®, les forces d'inertie ( $F_c$ ) sont principalement centrifuges et s'expriment par :

$$\vec{F}_c = m * \vec{a} \quad (3.1)$$

avec  $m$ , la masse de poudre considérée et  $\vec{a}$ , l'accélération.

On supposera, pour cette approche, que les accélérations sur la cuve sont du même ordre de grandeur que celles des particules situées près des parois du mélangeur. Les vecteurs des forces d'inertie auxquelles sont soumises les particules sont proportionnels aux vecteurs accélération.

Pour les points A, B/C et D/E, des pics ont été observés sur les profils d'accélération aux temps  $t=0,34*T$ ,  $0,51*T$ ,  $0,87*T$  et  $1*T$ . Les vecteurs accélération associés ont été représentés sur la figure 3.7 pour les points A, B et D. Ceux des points C et E n'ont pas été tracés car ils sont identiques à ceux obtenus pour les point B et D à une demi période près.

Les vecteurs au point A se trouvent toujours dans le plan du fond de la cuve, et sont dirigés vers l'extérieur de la cuve. Les particules se trouvant au centre du lit de poudre devraient pouvoir gagner la périphérie de celui-ci sans trop de difficulté.

Pour le point B, à  $t=0,34*T$  et  $t= 1*T$ , et le point D à  $t = 0,34*T$  et  $t=0,51*T$ , les vecteurs accélération sont également dans le plan de la cuve, avec une direction vers le centre de celle-ci. Les particules situées en périphérie du lit de poudre peuvent ainsi regagner le centre de celui-ci si la cohésion du lit n'est pas trop importante.

3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

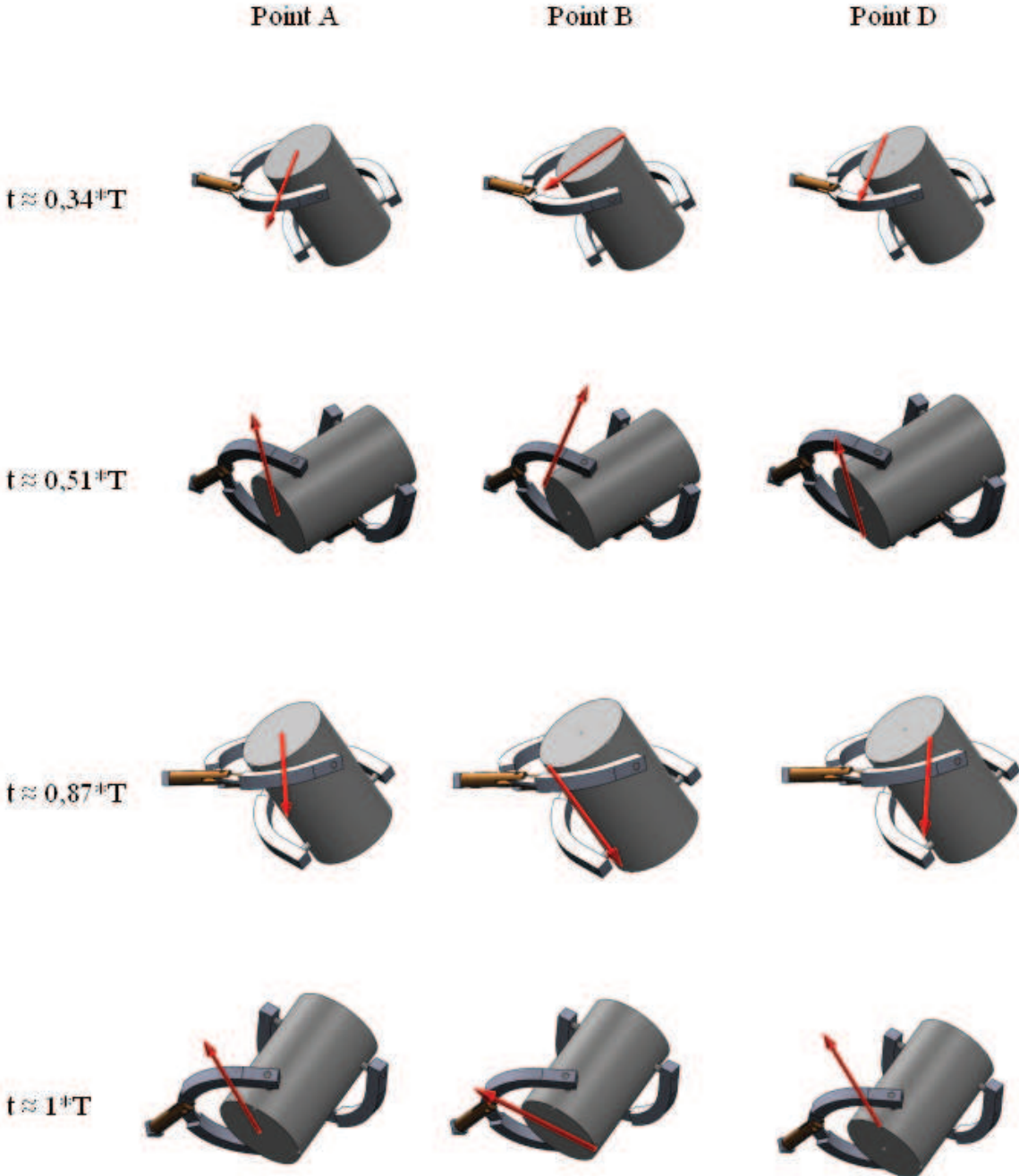


FIGURE 3.7 – Vecteurs accélération aux points A, B et D pour les positions présentant des accélérations maximales.



Le mélange axial quant à lui ne semble poser aucune difficulté. En effet, au cours d'une période, le mélangeur se retourne et les produits sont renversés (temps  $t=0,34*T$  et  $t=0,87*T$  sur la figure 3.3) : ils peuvent donc se mouvoir aisément dans la direction axiale.

Le mouvement du Turbula® est censé permettre une bonne dispersion des produits dans les directions axiales et radiales. Ces remarques vont dans le sens des travaux de Marigo et al. (2012) qui ont observé, lors de simulations DEM, que le mélangeur Turbula® permettait un très bon mélange dans ces deux directions (cf chapitre 1). Cependant, dans le cas où le système de poudre est fortement cohésif, ou lorsque le taux de remplissage du mélangeur est trop important, il est possible que les forces de cohésion ou de collision gênent le mouvement des particules.

### 3.1.4.2 Définition de régimes d'écoulement au sein du Turbula®

Nous avons vu au chapitre 1 (section 1.4.3, page 63) que les régimes d'écoulement au sein des tambours rotatifs sont déterminés sur la base du nombre de Froude ( $\omega^2 * R/g$ , voir équation 1.20 où,  $\omega * R$  représente la vitesse linéaire de la face courbe de la cuve, en contact avec les particules).

Le nombre de Froude traduit en fait le rapport entre les forces d'inertie et les forces de gravité. Au sein du Turbula®, il peut être déterminé par :

$$Fr = \frac{\text{forces d'inertie}}{\text{forces de gravité}} = \frac{m * a}{m * g} = \frac{a}{g} \quad (3.2)$$

avec

- $a$  : accélération du mélangeur au point considéré
- $g=9,81 \text{ m.s}^{-2}$  : accélération de la pesanteur
- $m$  : masse de l'ensemble des particules de poudre présents dans la cuve

Afin de conserver une méthodologie similaire à celle utilisée pour les mélangeurs à tambour rotatif, nous avons cherché à estimer les nombres de Froude de manière globale, c'est à dire à l'échelle de l'ensemble des particules présentes dans la cuve. Lors de l'opération de mélange, la poudre est renversée plusieurs fois : les particules se trouvant plutôt en bas du lit de poudre se retrouvent alors en haut et vice-versa.

À chaque retournement du mélangeur, le lit de poudre est en contact avec la face inférieure de la cuve. Il nous a donc semblé judicieux de calculer le nombre de Froude à partir des accélérations calculées pour cette face.

### 3.1 Modélisation du mélangeur Turbula®

Nous avons mis en évidence à la section précédente que les accélérations varient en fonction du point suivi. Parmi tous les points A, B/C, D/E précédemment étudiés, nous avons choisi d'utiliser les accélérations au point A. Ce point représente en effet le centre de gravité de la face inférieure de la cuve.

Les nombres de Froude ainsi calculés pour les différentes vitesses N de l'arbre moteur dans chaque mélangeur, ont été reportés dans le tableau 3.4 .

Tableau 3.4 – Évolution du nombre de Froude dans les mélangeurs Turbula® selon la vitesse, N, de l'axe moteur.

Turbula® T 2F		Turbula® T 10B		Turbula® T 50A		Forces responsables du mélange
N (en tr.min <sup>-1</sup> )	Fr	N (en tr.min <sup>-1</sup> )	Fr	N(en tr.min <sup>-1</sup> )	Fr	
22	0,2	15	0,2	16	0,3	gravité
32	0,5	23	0,5	20	0,5	
46	1,0	32	0,9	25	0,8	gravité et
		44	1,7	32	1,4	
67	2,2			40	2,2	inertie
96	4,5					inertie

Le nombre de Froude évolue entre 0,2 et 4,5. Un nombre de Froude inférieur à 1 traduit la prépondérance des forces de gravité. À l'inverse, un nombre de Froude supérieur à 1 traduit une prépondérance des forces d'inertie.

Trois régimes semblent se dégager selon la vitesse N de l'arbre moteur :

**Pour N faible** soit  $\leq 32$  tr.min<sup>-1</sup> (T 2F),  $\leq 23$  tr.min<sup>-1</sup> (T 10B),  $\leq 20$  tr.min<sup>-1</sup> (T 50A) : Le nombre de Froude reste inférieur ou égal à 0,5 et les principales forces responsables de l'état de mélange sont les forces de gravité.

**Pour N moyen** soit  $46 \leq N \leq 67$  tr.min<sup>-1</sup> (T 2F),  $32 \leq N \leq 44$  tr.min<sup>-1</sup> (T 10B),  $25 \leq N \leq 40$  tr.min<sup>-1</sup> (T 50A) : l'état de mélange obtenu résulte d'une action combinée des forces de gravité et des forces d'inertie.

**Pour N élevé** :  $N = 96$  tr.min<sup>-1</sup> (T 2F). Les forces d'inertie prédominent et le régime est alors essentiellement collisionnel, si la poudre y est sujette, un phénomène ségrégation par percolation des fines pourra sans doute y être observé.

Nous chercherons dans la suite de ce chapitre à identifier les mécanismes de mélange et de ségrégation pouvant apparaître dans chacun de ces régimes pour le mélange modèle 1 et le mélange composite.

## 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles

Les mélanges modèles sont constitués de lactose et de semoule de blé. Le lactose est un produit cohésif mais la présence de semoule, produit à écoulement libre, améliore nettement ses propriétés d'écoulement. De ce fait, la coulabilité de ce système particulaire se situe entre un produit cohésif et un produit à écoulement libre. D'autre part, la caractérisation de ce système particulaire a mis en évidence de fortes différences en terme de taille de particules pouvant engendrer des phénomènes de ségrégation (voir chapitre 2, section 2.1.5, page 89).

La matière première utilisée pour la réalisation de ces mélanges est disponible à moindre coût et peut être recyclée. De ce fait, la réalisation d'un grand nombre d'essais a été possible et nous avons pu construire des courbes cinétiques de mélanges en suivant l'évolution du coefficient de variation (CV) en fonction du nombre de tours dans le Turbula® T 2F, et dans le Turbula® T 10B . Nous avons montré au chapitre 1 que ces courbes peuvent servir de support pour l'appréciation des mécanismes régissant le mélange.

La composition des échantillons a été déterminée par analyse d'image selon la méthodologie présentée au chapitre 2 qui permet un échantillonnage exhaustif. Nous avons donc également pu tracer les fonctions d'autocorrélation qui sont un outil supplémentaire pour identifier les mécanismes responsables de l'état de mélange.

### 3.2.1 Cinétique de mélange

#### 3.2.1.1 Reproductibilité des essais

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à la reproductibilité des essais, aussi bien pour des temps de mélanges courts (3, 4 et 6 tours de mélange) que pour des temps plus longs (500 tours).

### 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles

Pour un nombre de tours et une vitesse donnés, chaque manipulation a été réalisée deux fois. Si les valeurs de CV obtenues étaient très différentes, la manipulation a de nouveau été répétée. La moyenne et l'écart-type des différents CV obtenus ont été reportés dans le tableau 3.5.

La détermination de la composition des échantillons par analyse d'image permet un échantillonnage exhaustif. Il n'existe donc pas d'erreur de sélection et de prélèvement des échantillons. Seule une erreur de découpe existe mais celle-ci, du fait de la méthodologie utilisée est réduite. Les écarts-types observés sont donc liés soit à la méthode d'analyse (erreur d'étalonnage), soit à l'obtention de mélanges dont la qualité varie, soit à une combinaison des deux.

Les essais réalisés n'ont été validés que si la moyenne des échantillons du mélange est égale à la teneur réelle ( $\pm 1\%$ ) des constituants (voir chapitre 2, section 2.3.1), la méthode d'analyse n'induit donc que très peu d'erreur. Les différences observées dans les mesures des CV sont donc très probablement dues à un problème de reproductibilité entre les différents essais.

Tableau 3.5 – Moyennes et écarts-types des CV pour les différents essais de reproductibilité réalisés en T 2F pour les mélanges modèles.

Vitesse		3 tours	4 tours	6 tours	500 tours
22 tr.min <sup>-1</sup>	Nombre d'essais	2	3	5	2
	Moyenne	5,22%	5,13%	3,13%	2,33%
	Écart-type	8,5*10 <sup>-4</sup>	5,1*10 <sup>-3</sup>	2,6*10 <sup>-3</sup>	1,4*10 <sup>-3</sup>
32 tr.min <sup>-1</sup>	Nombre d'essais	5	3	4	2
	Moyenne	4,40%	5,66%	3,10%	2,16%
	Écart-type	4,7*10 <sup>-3</sup>	2,4*10 <sup>-3</sup>	3,0*10 <sup>-3</sup>	7,0*10 <sup>-4</sup>
46 tr.min <sup>-1</sup>	Nombre d'essais	4		4	
	Moyenne	5,40%		2,71%	
	Écart-type	4,7*10 <sup>-3</sup>		3,2*10 <sup>-3</sup>	
67 tr.min <sup>-1</sup>	Nombre d'essais	2	4	4	2
	Moyenne	3,77%	2,64%	2,49%	2,46%
	Écart-type	2,4*10 <sup>-3</sup>	4,9*10 <sup>-3</sup>	6,9*10 <sup>-4</sup>	1,3*10 <sup>-3</sup>
96 tr.min <sup>-1</sup>	Nombre d'essais	2		2	2
	Moyenne	4,67%		2,75%	3,07%
	Écart-type	8,2*10 <sup>-4</sup>		2,4*10 <sup>-3</sup>	2,0*10 <sup>-4</sup>

Les écart-types des CV sont globalement plus importants pour de faibles nombres de tours. Ainsi, pour 500 tours, ils sont tous inférieurs à  $1,4 \cdot 10^{-3}$ . Il semblerait donc que le coté aléatoire de l'erreur s'estompe avec le nombre de tours, aboutissant à une certaine organisation, reproductible au sein du mélange.

Nous pouvons supposer que les nombreuses rotations du mélangeur permettent à la fois d'aérer et de réorganiser les produits au sein de la cuve. L'agencement et l'état de compacité initiaux des poudres pouvant différer d'un essai à l'autre suivant la manière dont a été remplie la cuve n'a alors plus de réel impact sur la qualité du mélange.

Afin de savoir si ces problèmes de reproductibilité influenceront la lecture des courbes cinétiques, nous avons reporté sur la figure 3.8 les valeurs de CV obtenues pour les essais identiques répétés à 3, 4 et 6 tours pour les vitesses de  $22 \text{ tr.min}^{-1}$  (figure a) et de  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  (figure b).

Ces deux figures mettent clairement en évidence la dispersion importante des CV. Néanmoins, pour quasiment tous les essais (exceptés ceux réalisés à 3 et 4 tours pour la vitesse de  $22 \text{ tr.min}^{-1}$ ), les plages des valeurs de CV ne se superposent pas. Nous pouvons donc considérer que les valeurs mesurées sont distinctes. Les problèmes de reproductibilité ne devraient pas influencer la lecture et l'interprétation des courbes cinétiques.

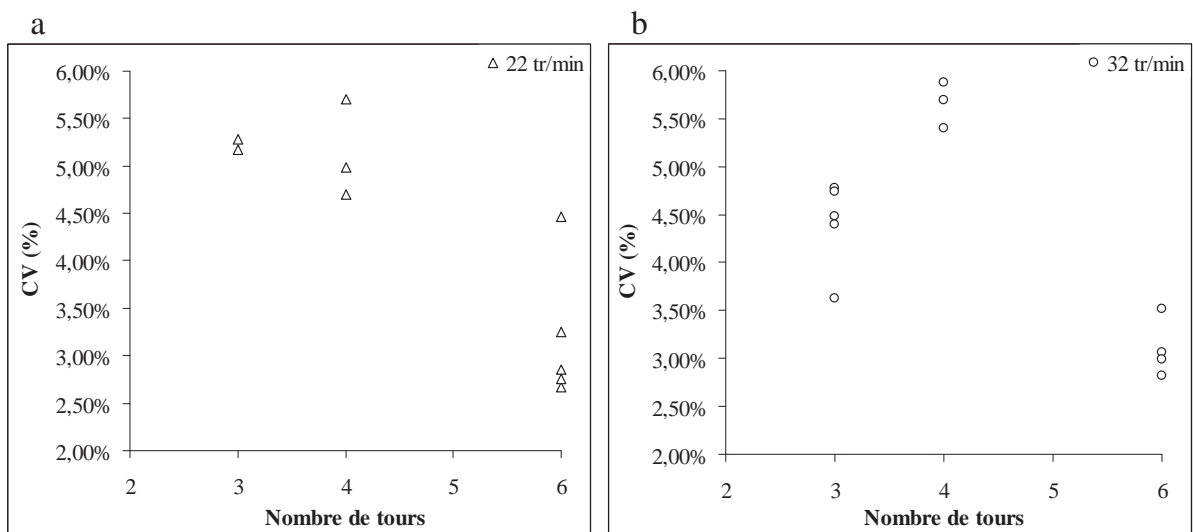


FIGURE 3.8 – CV obtenus à 3, 4 et 6 tours pour les vitesses de  $22 \text{ tr.min}^{-1}$  (figure a) et de  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  (figure b).

### 3.2.1.2 Cinétique en Turbula® T 2F

Afin de faciliter la lecture, les courbes ont été coupées en deux parties distinctes : une première partie concerne les nombre de tours faibles (figure 3.9) et une seconde partie les nombres de tours plus importants (figure 3.10). Lorsque plusieurs essais ont été réalisés pour un temps de mélange identique, le CV utilisé pour la construction de la courbe correspond à la moyenne des valeurs de CV mesurées lors des différents essais.

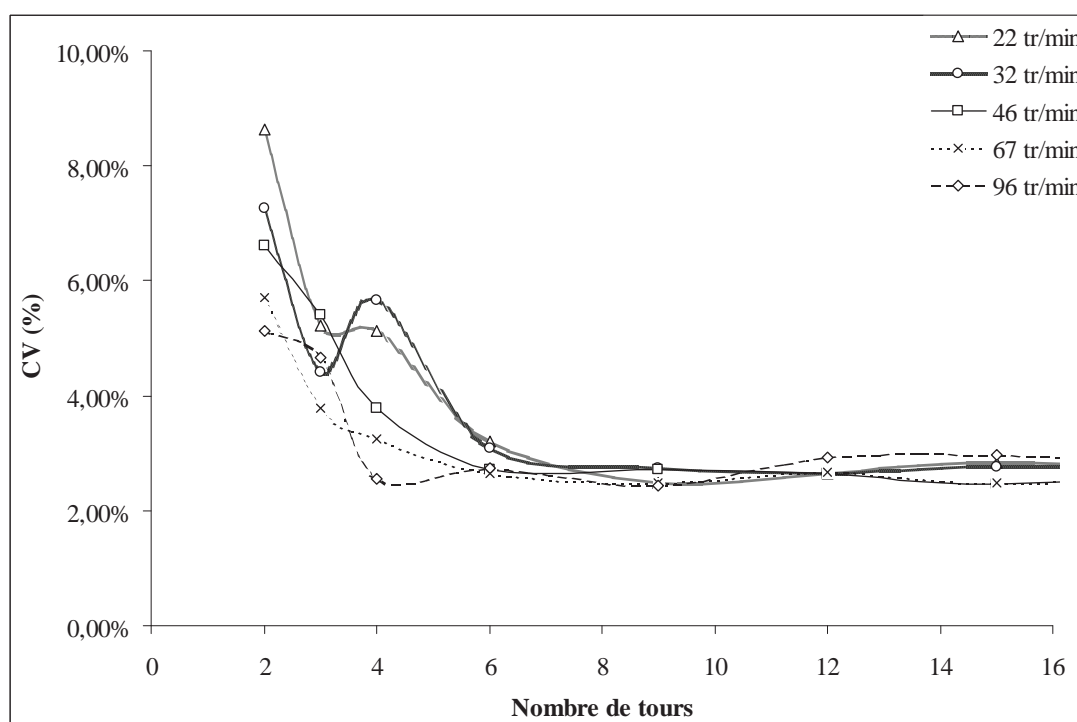


FIGURE 3.9 – Cinétique de mélange (mélange modèle 1) en Turbula® T 2F pour des nombres de tours inférieurs ou égal à 15.

Le CV théorique pour un mélange totalement ségrégué constitué de 15 % de produit A (ici la semoule) et de 85 % de produit B (ici le lactose) est environ égal à 42% (voir chapitre 2, section 2.3.2.4, page 112). Cependant la déverse des échantillons sur la bande transporteuse induit déjà une diminution de la valeur de CV.

L'évaluation de la qualité des mélanges par analyse d'image est fiable pour des compositions d'échantillons en semoule comprises entre 5% et 25% (voir section 2.3.1, page 98). Le point  $t=0$ , correspondant à la mesure du CV obtenu pour un essai réalisé en l'absence de mélange et déversé sur le convoyeur directement après le remplissage de la cuve n'a pas pu être réalisé. En effet, lors de cet essai, les compositions de certains

échantillons sont bien supérieures à 25 %. Le point de départ des courbes cinétiques est donc 2 tours.

Lors de la réalisation du mélange, la cuve est insérée dans le mélangeur, la vitesse du mélangeur est sélectionnée puis l'ordre de démarrage est donné. Le mélangeur part alors de sa position d'origine et accélère pour atteindre la vitesse spécifiée. Le T 2F ne disposant pas d'un système de freinage, il continue de tourner après l'ordre d'arrêt pendant un temps plus ou moins long avant de s'arrêter.

La vitesse du mélangeur n'est ainsi pas constante sur la durée de l'essai. Elle est composée d'une phase d'accélération, d'une phase où la vitesse est constante et d'une phase de décélération. De fortes vitesses du mélangeur conduiront à des accélérations plus fortes et des phases de décélération plus longues (le mélangeur ayant plus "d'élan"). Pour des nombres de tours faibles, les phases d'accélération et de décélération auront un impact sur la qualité du mélange obtenu. À titre d'exemple, pour les essais réalisés à la vitesse de  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  la phase où la vitesse du mélangeur est constante est inexistante pour les 2 premiers tours.

Sur la figure 3.9, on remarque qu'à deux tours la vitesse du mélangeur a un fort impact sur le CV du mélange, les fortes vitesses conduisant à des valeurs de CV plus faibles.

Nous avons montré au chapitre 1, section 1.32 (page 55), que lors des premiers temps de mélange, ce sont les mécanismes de convection qui permettent une diminution rapide de la qualité du mélange. Les mécanismes de convection semblent donc plus importants aux fortes vitesses, sans doute renforcés par les phases d'accélération et de décélération.

Sur la figure 3.10, à 22 tours, l'ensemble des courbes passe par un même point, la vitesse a donc peu d'impact sur la qualité du mélange. 22 tours pourrait être considéré comme le nombre de tours optimal qui permet, quelle que soit la vitesse du mélangeur d'aboutir à un mélange de qualité identique (Voir chapitre 1, section 1.5.2, 71).

À 500 tours, la valeur de CV minimale est obtenue pour la vitesse de  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  et la valeur maximale pour  $96 \text{ tr.min}^{-1}$ . Des essais réalisés à 780 tours à  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  ont abouti aux mêmes valeurs de CV que celles obtenues à 500 tours. On peut donc considérer que 500 tours correspond à un temps de mélange repère où l'état de mélange obtenu est stable.

## 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles

---

- **Vitesses de rotation faibles :**

Pour les vitesses  $N = 22$  et  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  on observe sur la figure 3.9, entre 2 et 6 tours, que le CV décroît plus fortement que pour les vitesses supérieures, puis remonte légèrement entre 3 et 4 tours, avant de diminuer à nouveau créant une "vague" sur la courbe.

Pour ces vitesses, le nombre de Froude calculé à la section 3.1.4.2 est inférieur à 1. Au sein d'un mélangeur à tambour rotatif, pour  $Fr < 1$  et  $f = 50 \%$ , les poudres seraient dans un régime d'écoulement de "cascading" (voir figure 1.41, page 67) pouvant induire pour un système à écoulement libre une compétition entre des mécanismes de mélange par convection et de ségrégation par roulement sur la pente.

Bien que le mouvement du Turbula<sup>®</sup> soit différent, on peut supposer les poudres sont ici dans un régime d'écoulement quasi-similaire au "cascading". Ainsi il est possible que lors des mouvements de rotation de la cuve, les particules aient tendance à rouler sur la pente formée par les parois du mélangeur ou sur la surface libre de la poudre.

Du fait des fortes différences de taille entre les grains de semoule et les particules de lactose, des phénomènes de ségrégation par roulement sur la pente peuvent apparaître. Ces phénomènes rentrent alors en compétition avec les mécanismes de mélange par convection et induisent "l'effet de vague" observé sur la courbe.

Entre 12 et 35 tours, les oscillations observées entre 2 et 6 tours perdurent sur les deux courbes cinétiques (voir figure 3.10).

Pour des temps de mélange plus longs, l'importance des phases d'accélération et de décélération se fait moins sentir car la durée de la phase où le mélangeur tourne à vitesse constante est beaucoup plus importante. Si l'on se réfère à la courbe cinétique présentée au chapitre 1, les mécanismes de mélange sont générés par la présence de cisaillement entre les couches de poudre. Les mécanismes de ségrégation par roulement sur la pente existent toujours et une compétition entre les mécanismes de mélange et les mécanismes de ségrégation pourrait expliquer ces oscillations.

À 500 tours, le CV pour ces deux vitesses ont encore diminué. Les valeurs sont d'ailleurs plus faibles que celles obtenues pour des vitesses plus fortes (46, 67 et  $96 \text{ tr.min}^{-1}$ ). Les mécanismes de mélange les plus efficaces sont alors les mécanismes de diffusion et ceux-ci permettent la réalisation d'un mélange plus intime.

Ces résultats sont en accord avec les travaux de Marigo et al. (2011), (voir chapitre 1, section 1.4, page 54) qui ont étudié sur la base de simulations DEM, le mélange de billes



de rayon égal à 1mm, en Turbula®. Au sein de ce système particulière, il existe très peu de forces de cohésion, les propriétés de coulabilité de ce produit et celles des mélanges modèles ici étudiés sont assez similaires. Ils ont montré que les plus faibles vitesses conduisaient à des valeurs de CV plus faibles.

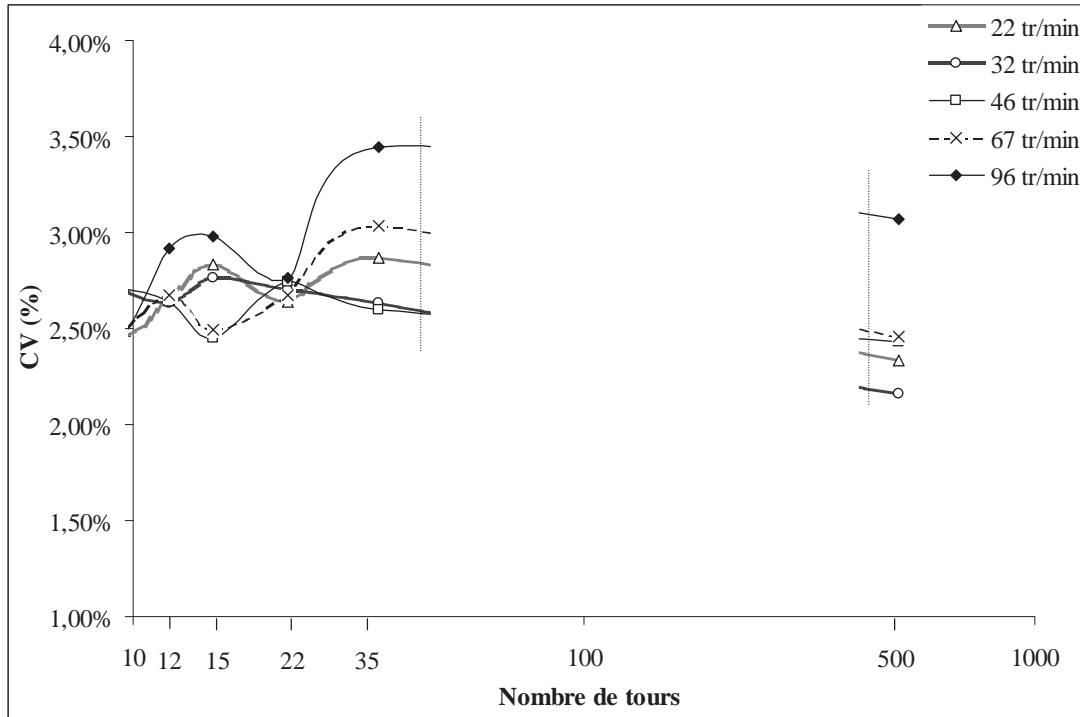


FIGURE 3.10 – Cinétique de mélange (mélange modèle 1) en Turbula® T2F pour des nombres de tour supérieurs à 12.

• **Vitesses de rotation intermédiaires :**

Pour les vitesses  $N= 46$  et  $67 \text{ tr.min}^{-1}$ , l'effet de vague observé aux faibles vitesses n'est pas visible et d'une manière générale les courbes obtenues présentent très peu d'oscillations.

Les nombres de Froude associés à ces vitesses sont compris entre 1 et 2,5. Le régime correspondant au sein d'un mélangeur à tambour rotatif, serait un régime de cataracte. Ce régime a tendance à entraîner des mécanismes de ségrégation par trajectoire. On peut aisément imaginer que ceux-ci sont accentués lors des retournements de la cuve, les particules de poudres pouvant alors être projetées.

## 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles

---

Dans les premiers temps du mélange, nous avons montré que l'importance des mécanismes de convection augmentait avec la vitesse  $N$  de l'axe moteur du fait de plus fortes accélérations, allant sans doute jusqu'à compenser voire dépasser les phénomènes de ségrégation, ce qui se traduit par une diminution plus régulière de la valeur des CV.

Pour des temps de mélanges élevés, on peut supposer que les mécanismes de diffusion compensent juste les mécanismes de ségrégation par roulement et par trajectoire et l'on n'arrive donc pas obtenir un mélange d'une qualité égale à celle obtenues aux plus faibles vitesses. Notons d'ailleurs que les deux valeurs de CV obtenues pour ces vitesses sont très proches.

### • Vitesse de rotation élevée

Pour  $N = 96 \text{ tr.min}^{-1}$ , on retrouve un peu la même tendance qu'aux vitesses plus faibles avec une valeur de CV relativement stagnante entre 2 et 3 tours.

À partir de 35 tours, on observe un phénomène de démélange qui conduit à l'obtention de la valeur de CV la plus élevée à 500 tours.

Il a été observé au sein des mélangeurs à tambour rotatif que de très fortes vitesses (régime de collisionnel) pouvaient faire "vibrer" le mélange et engendrer des phénomènes de ségrégation par percolation des fines. Ceux-ci entrent en compétition, dans les premiers temps du mélange avec les mécanismes de convection, puis pour des temps de mélange plus longs avec les mécanismes de diffusion. Pour ce système particulière, l'effet de la ségrégation est plus important et le mélange obtenu pour cette vitesse est moins intime.

Il est intéressant de noter que le nombre de Froude calculé pour  $N = 96 \text{ tr.min}^{-1}$  au sein du Turbula® T 2F est égal à 4,5. En se référant à la figure 1.41 (page 67), on se trouve alors à la limite des domaines de "cataracting" et de "centrifuging", qui correspondent typiquement au régime collisionnel.

### 3.2.1.3 Cinétique en Turbula® T 10B

Les courbes cinétiques de mélange (figure 3.11), en T 10B ont été tracées pour les vitesses  $N = 15, 23$  et  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ .

On remarque ici aussi, la présence d'un "effet de vague" assez marqué pour la vitesse de  $16 \text{ tr.min}^{-1}$  et un peu moins marqué pour  $23 \text{ tr.min}^{-1}$ . Ceci est à rapprocher des ob-

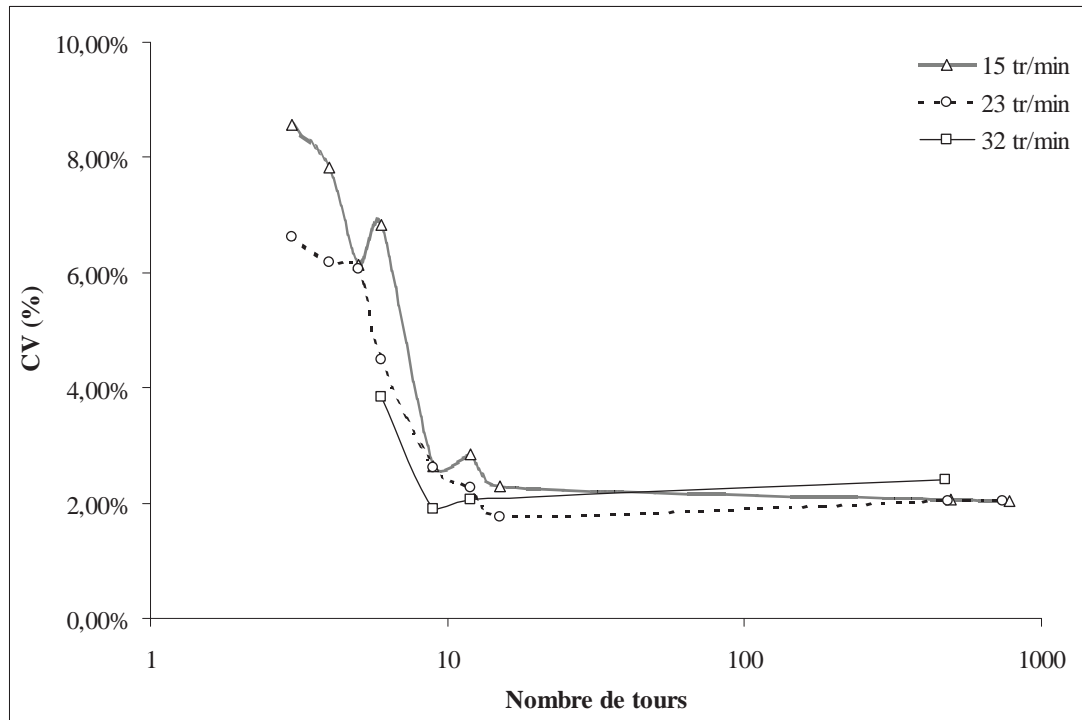


FIGURE 3.11 – Cinétique de mélange (mélange modèle 1) en Turbula® T10B pour les vitesses  $15 \text{ tr.min}^{-1}$ ,  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ .

servations réalisés en T 2F pour les vitesses  $N = 22$  et  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ .

En T 10B, les nombres de Froude calculés pour les vitesses  $N = 16$  et  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  sont inférieurs à 1, et l'on peut supposer que l'on se trouve alors dans un régime d'écoulement proche du "cascading". Ainsi, comme pour le T 2F, nous pouvons expliquer cet effet de vague par la compétition entre des mécanismes de convection et de ségrégation par roulement sur les parois et/ou trajectoires.

À 500 tours, les valeurs de CV obtenues pour les vitesses  $16 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  sont identiques et plus faibles que celle obtenue à  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ . Ces observations sont ici aussi assez similaires à celles réalisées en T 2F : pour un nombre de tours élevé, les plus faibles vitesses conduisent aux valeurs de CV les plus faibles. L'augmentation de la vitesse de l'axe moteur ayant tendance à engendrer des mécanismes de ségrégation par percolation des fines.

## 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles

---

Les valeurs obtenues à 500 tours, sont stables, les essais réalisés à 780 tours n'ayant pas entraîné de modification du CV.

### 3.2.2 Utilisation de la fonction d'autocorrélation

La fonction d'autocorrélation permet de décrire l'état d'un mélange en s'appuyant sur l'étude des corrélations entre les compositions des échantillons. Selon Gyenis (1999) il est possible de relier les informations issues de l'autocorrélogramme aux principaux mécanismes ayant abouti à cet état de mélange (cf. Chapitre 1 , section 1.4.2, pages 62). En effet les profils des fonctions d'autocorrélation dans les premiers temps de mélange sont très différents suivant que les mécanismes de mélange soient convectifs ou diffusifs. Lorsque l'état de mélange se rapproche d'un mélange aléatoire (obtenu en général pour des temps de mélange plus longs), il n'existe plus de lien entre les échantillons et les fonctions d'autocorrélation ont toute un profil identique.

**Remarque :** Le calcul des coefficients de la fonction d'autocorrélation est possible pour le mélange modèle 1 car l'échantillonnage a été exhaustif.

#### 3.2.2.1 Étude des fonctions d'autocorrélation en T 2F

Nous avons calculé et tracé les fonctions d'autocorrélation pour les différentes vitesses dans le T 2F, à 2 tours (figure 3.12) et 6 tours (figure 3.13). Afin de faciliter la discussion nous avons regroupé les courbes obtenues en fonction des différents régimes d'écoulement présentés à la section 3.1.4.2.

La barre en pointillés sur le graphique, représente la limite, ( $\epsilon$ ), fonction du nombre d'échantillons, en dessous de laquelle, les  $R(r)$  peuvent être considérés comme nul. La valeur de  $r$  pour laquelle la fonction d'autocorrélation passe en dessous de la barre est  $r_0$ , exprimant l'absence de corrélation (voir chapitre 1, section 1.3.2.2, page 28).

Sur les figures 3.12 et 3.13, les valeurs de  $r_0$  décroissent pour quasiment toutes les vitesses lorsque la vitesse de rotation augmente. Les fortes vitesses favorisent donc l'obtention d'un mélange à une échelle plus fine.

Les mécanismes de convection engendrent le déplacement de grands ensembles de particules et conduisent à un mélange plus "grossier". Les valeurs de  $r_0$  associées donc a priori plus importantes. Au contraire de faibles valeurs de  $r_0$  traduisent l'absence de

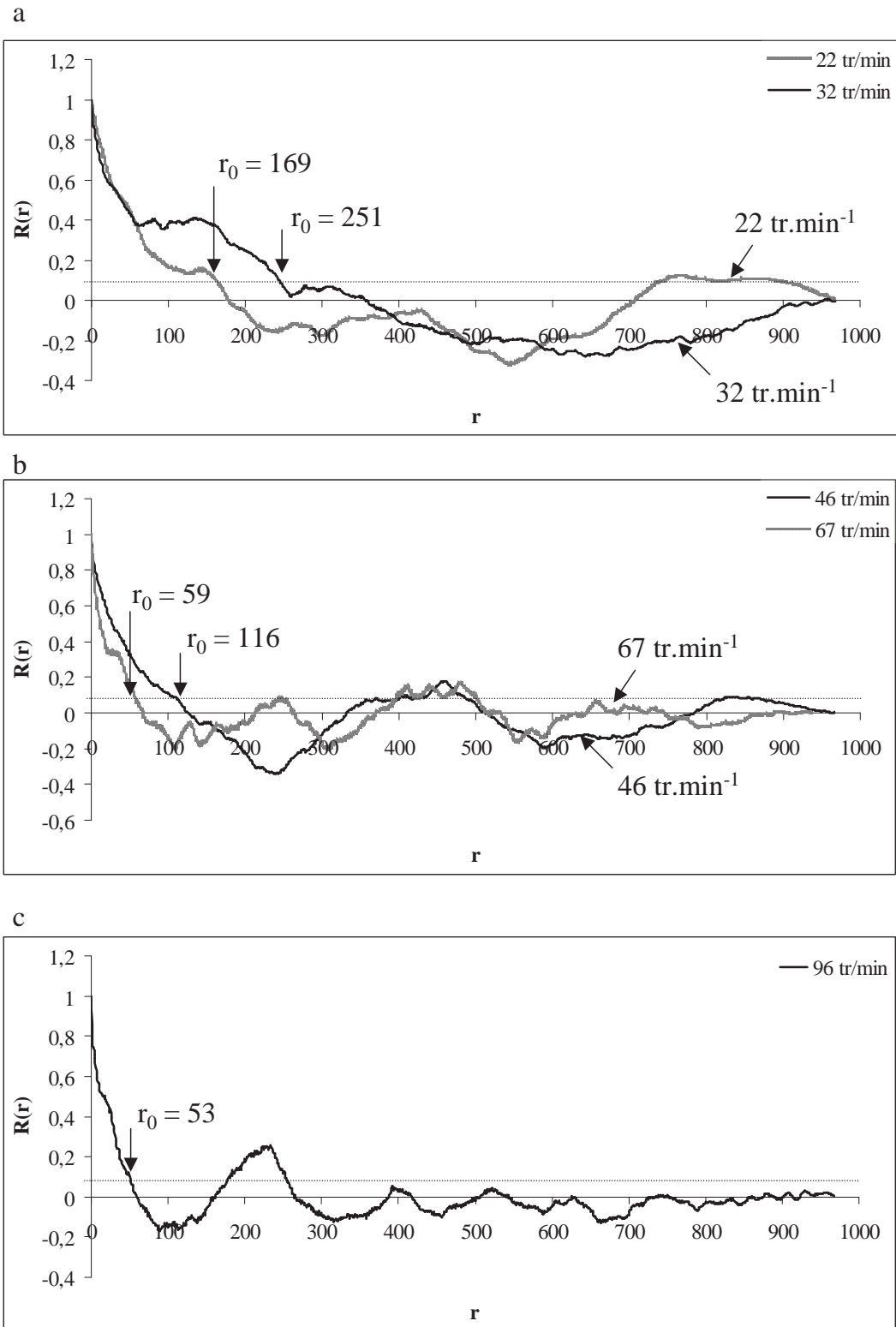
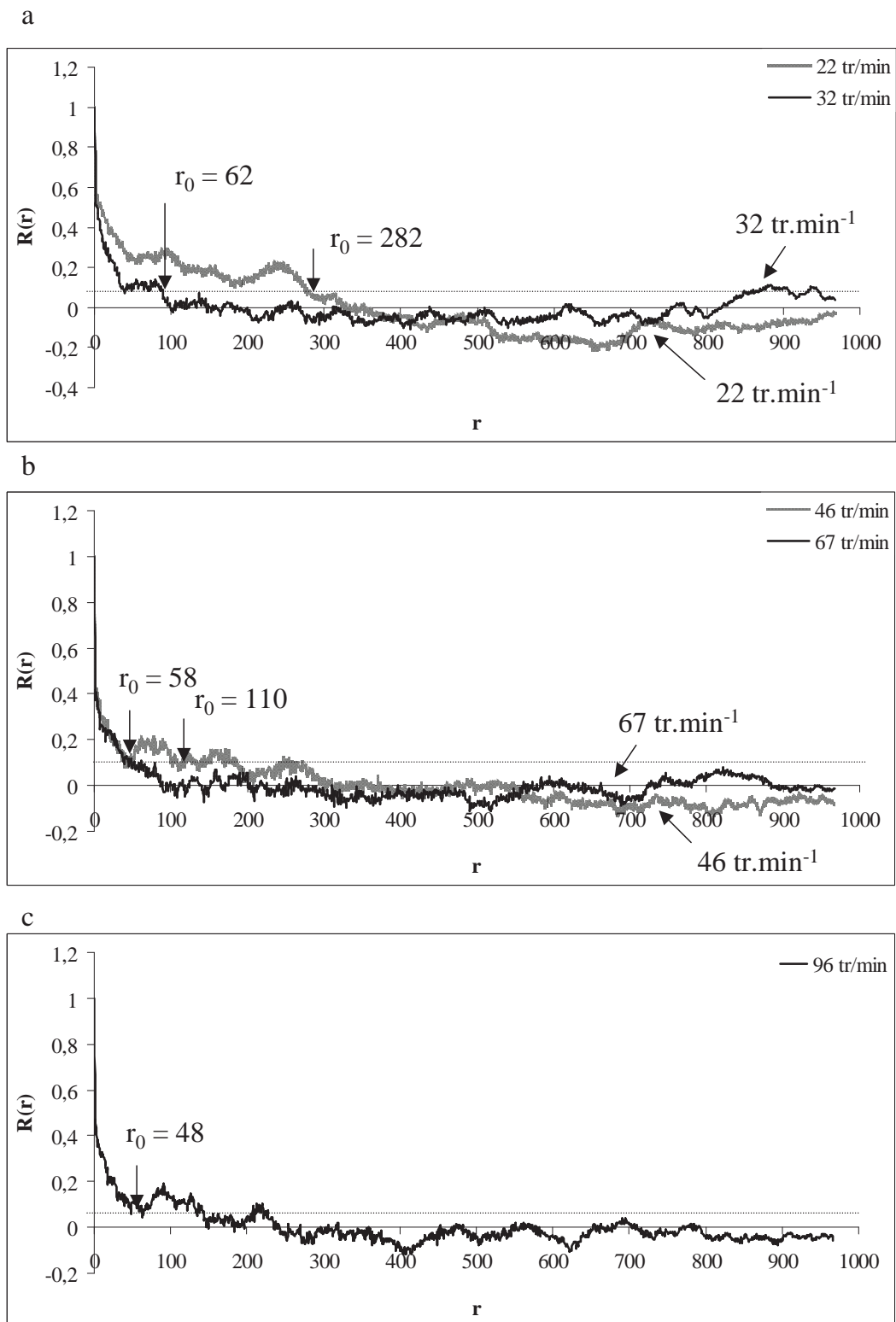


FIGURE 3.12 – Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 2F, pour 2 tours aux différentes vitesses.

### 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles



corrélation dans des voisinages plus proches et sont donc être liées à un mélange "fin", tel qu'obtenu par des mécanismes de diffusion.

On peut donc imaginer qu'aux fortes vitesses, les mécanismes de diffusion jouent un rôle plus important dans la qualité du mélange atteinte. Ceci reste cohérent avec les observations réalisées à la section 3.2.1.2 où nous avons rapproché la vitesse de  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  du régime collisionnel dans les mélangeurs à tambour rotatif, régime favorisant les mécanismes de diffusion.

Nous pouvons aussi remarquer qu'à 2 tours et 6 tours, pour une même vitesse, il existe peu de différences entre les valeurs de  $r_0$  obtenues. Pourtant entre 3 et 6 tours, pour toutes les vitesses, une nette diminution du CV (de près de 50 %) était observée lors de l'étude de la cinétique de mélange. La qualité du mélange s'est donc améliorée de manière macroscopique mais sa structure n'a peu ou pas changé.

L'augmentation de la valeur de  $r_0$  pour la vitesse de  $N = 22 \text{ tr.min}^{-1}$  peut éventuellement être mise en relation avec la présence des mécanismes de ségrégation par trajectoire et roulement sur la pente plus visible aux faibles vitesses.

Si les valeurs de  $r_0$  ont peu bougé, l'allure des autocorrélogrammes a bien changé entre 2 et 6 tours. Les profils à 6 tours, ont une allure beaucoup plus "plate", ils ne présentent quasiment plus de fortes oscillations au profit de très faibles oscillations dans des voisinages très proches donnant l'impression de la présence d'un "bruit" sur le signal. Des mécanismes de ségrégation ou de diffusion sont peut être responsable de cet effet mais il est difficile de se prononcer.

Lors de l'étude de la cinétique de mélange, il est apparu que la plus faible valeur de CV à 500 tours était obtenue pour la vitesse de  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  et la plus forte pour la vitesse de  $96 \text{ tr.min}^{-1}$ . Les fonctions d'autocorrélation associés à ces deux essais ont été représentées sur la figure 3.14.

L'allure des deux courbes est différentes. À  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ , la fonction d'autocorrélation s'annule pour un  $r_0$  faible et présente ensuite peu de variations. Selon Gyenis (1999), l'état de mélange est proche d'un état aléatoire.

À  $96 \text{ tr.min}^{-1}$ , l'autocorrélogramme présente d'abord une légère corrélation positive puis une légère corrélation négative traduisant l'apparition d'un certain ordre au sein du

### 3.2 Dynamique de mélange pour les mélanges modèles

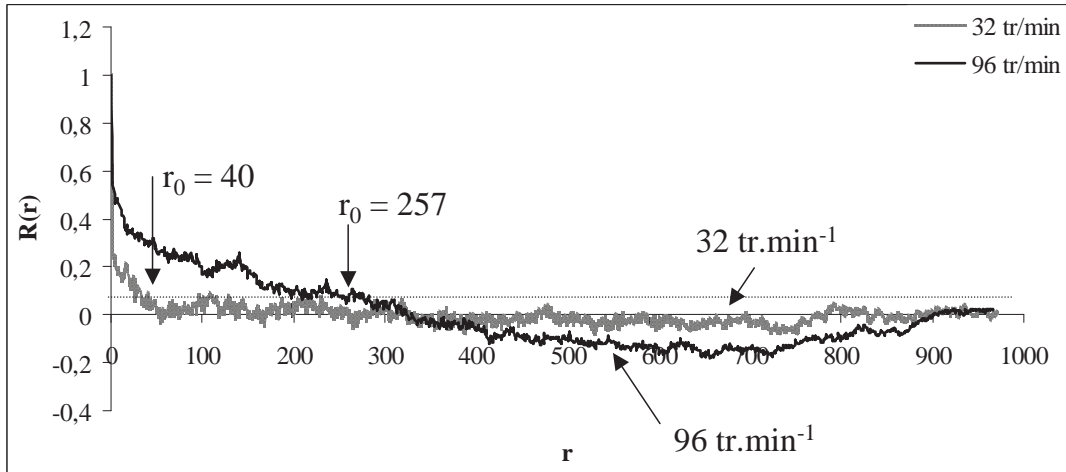


FIGURE 3.14 – Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 2F, pour 500 tours à  $32 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  et  $96 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ .

mélange qui est peut être relié au phénomène de ségrégation par percolation des fines évoqué précédemment.

#### 3.2.3 Étude des fonctions d'autocorrélation en T 10B

Les fonctions d'autocorrélation pour les essais réalisés dans le T 10B, ont également été tracées à 3 tours pour  $N = 16$  et  $23 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  (figure 3.15) et 6 tours pour  $N = 16$ ,  $23$   $32 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$  (figure 3.16).

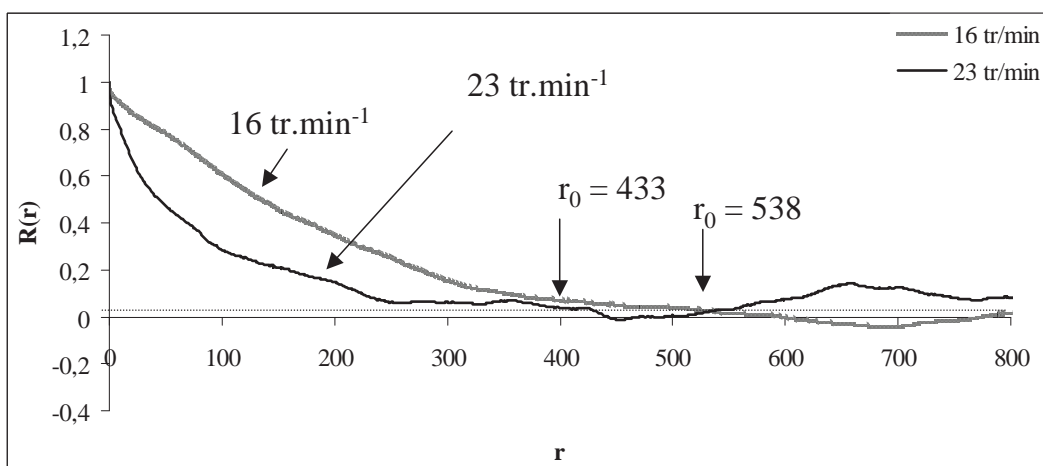


FIGURE 3.15 – Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 10B, pour 3 tours à  $16 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ ,  $23 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ .



Le nombre d'échantillons analysés pour les mélanges réalisés au sein du T 10B est supérieur à 8000. Il est donc possible de calculer la fonction d'autocorrélation ( $R(r)$ ) pour  $r$  variant de 0 à 8000. Cependant, les corrélations observées pour des valeurs de  $r$  très grandes n'ont pas de signification physique. Nous avons donc choisi de tracer les autocorrélogrammes pour  $r \leq 800$  afin de pouvoir les comparer avec ceux obtenus en T 2F.

Le nombre d'échantillons étant beaucoup plus élevé, la valeur ( $\epsilon$ ) en dessous de laquelle  $R(r)$  peut être considéré comme nul est beaucoup plus faible que pour les autocorrélogrammes obtenus dans le T 2F ( $\epsilon \approx 0,07$  en T 2F et  $\epsilon \approx 0,02$  en T 10 B) ce qui explique que les barres d'erreurs soient beaucoup plus faibles sur les figures 3.15 et 3.16.

Les valeurs de  $r_0$  à 3 tours pour les vitesses  $N = 16$  et  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  sont relativement élevées, faisant penser à un effet plus important des mécanismes de convection.

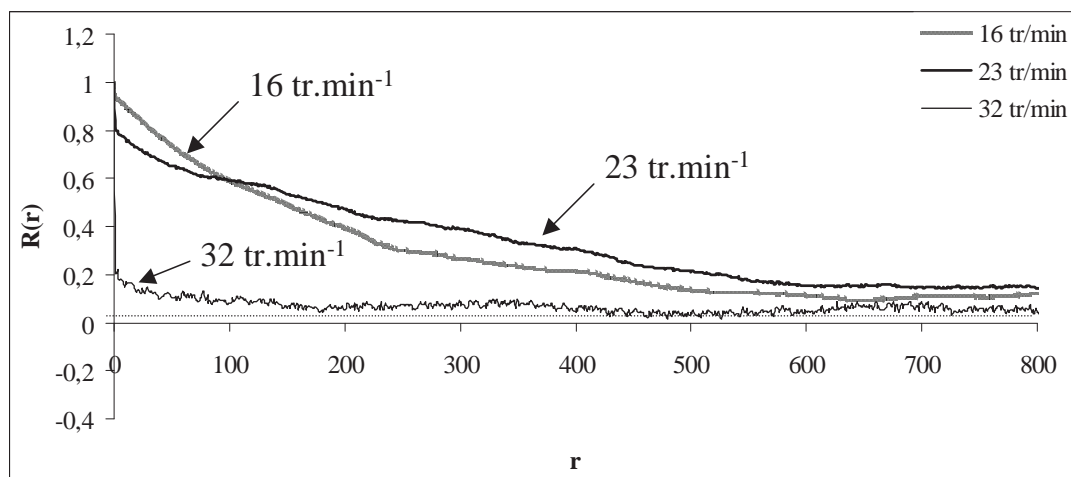


FIGURE 3.16 – Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 10B, pour 3 tours à  $16 \text{ tr.min}^{-1}$ ,  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ .

À 6 tours (figure 3.16), les fonctions d'autocorrélation ne sont jamais passées en dessous de la barre d'erreur, le calcul de  $r_0$  n'a donc pas été possible. Les mécanismes de ségrégation sont peut être responsables d'une certaine organisation du mélange se traduisant donc par une autocorrélation positive entre les échantillons. La fonction d'autocorrélation associée à la vitesse de  $N = 32 \text{ tr.min}^{-1}$ , bien que ne s'annulant pas non plus sur la plage considérée (le  $r_0$  calculé se situe aux alentours de 1700) est bien en-dessous de celles obtenues pour les vitesses  $N = 16$  et  $23 \text{ tr.min}^{-1}$ , mais il est difficile d'en donner une

### 3.3 Dynamique de mélange pour les mélanges composites

---

interprétation physique.

L'analyse des autocorrélogrammes s'est avérée particulièrement délicate. La présence simultanée de différents mécanismes de mélange et de ségrégation n'a pas permis de nous rapprocher des travaux réalisés dans la littérature. Ceux-ci étaient en effet basés sur des simulations de mécanismes purement diffusifs ou purement convectifs et en l'absence de ségrégation (travaux de Gyenis (1999) et Schofield (1970), voir chapitre 1, section 1.3.2.2, page 28).

### 3.3 Dynamique de mélange pour les mélanges composites

Les mélanges composites sont réalisés à partir d'une matrice de polymère thermodurcissable et de graphite, deux produits cohésifs. Ce mélange est a priori peu sujet à la ségrégation : les forces interparticulaires limitant les mouvements individuels des particules (voir chapitre 2, section 2.1.5, page 89).

#### 3.3.1 Cinétique en Turbula® T 2F

Au vu des quantités de poudres disponibles et du temps de manipulation, l'ensemble des vitesses et des nombres de tours n'a pu être balayé comme pour le mélange modèle. La vitesse de 32 tr.min<sup>-1</sup> avait été utilisée lors de tests préliminaires d'homogénéisation par les partenaires du projet MaSCoTe. Cette vitesse a donc été étudiée en détail et nous a servi de référence. Des essais à 22 tr.min<sup>-1</sup> et 96 tr.min<sup>-1</sup> ont également été réalisés.

Pour plus de lisibilité, les courbes cinétiques ont également été découpées en deux parties, une consacrée aux temps de mélange courts jusqu'à 35 tours (figure 3.17) et une consacrée au temps de mélange plus longs jusqu'à 1000 tours (figure 3.19).

Pour des temps de mélange longs, plusieurs essais ont été réalisés au même nombre de tours et à la même vitesse. L'ensemble des valeurs a alors été reporté sur la figure 3.19, ce qui permettra de discuter d'essais réalisés dans les mêmes conditions.

- **Évolution des CV pour des nombres de tours faibles :**

Le point de départ de la courbe correspond à l'essai réalisé en l'absence de mélange : la cuve a été remplie avec les constituants du mélange et vidangée directement sur la bande

transporteuse. Une discussion détaillée des résultats obtenus pour cet essai a été effectuée au chapitre 2, section 2.3.2.4 (page 112).

Les barres d'erreurs indiquent l'intervalle de confiance pour le CV vrai à une fiabilité de 90% (voir chapitre 2, section 2.3.2.2, page 108), elles représentent donc l'erreur statistique induite par la procédure d'échantillonnage. Plus la valeur du CV est élevée, plus les barres d'erreurs sont importantes.

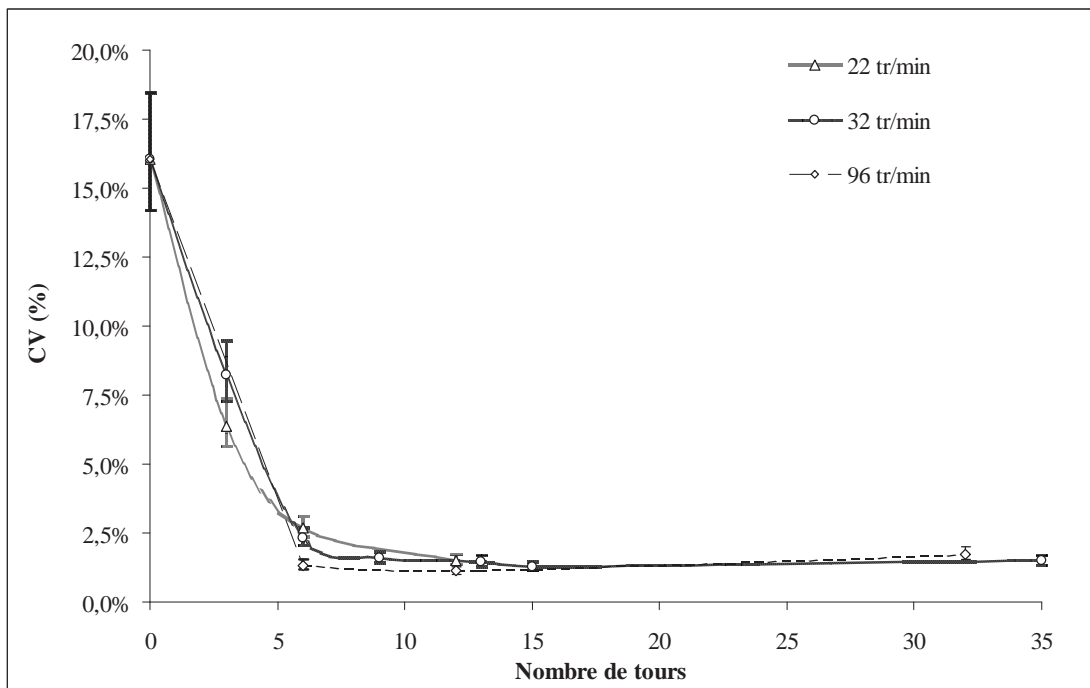


FIGURE 3.17 – Cinétique de mélange pour les mélanges composites en Turbula® T2F pour des nombres de tours inférieurs à 35.

Les profils de ces courbes correspondent à l'allure d'une cinétique classique de mélange décrite au chapitre 1, 1.32 (page 55). On distingue les 3 zones caractéristiques de la courbe, avec une diminution très rapide du CV pour des nombres de tours inférieurs à 6, due aux mécanismes de convection, puis une diminution plus lente caractérisant une efficacité plus importante des mécanismes de cisaillement jusqu'à atteindre la valeur de CV minimale aux alentours de 12 tours, identique quelle que soit la vitesse  $N$  en entrée. 12 tours peut donc être considéré comme le nombre de tours optimal pour l'obtention du mélange.

### 3.3 Dynamique de mélange pour les mélanges composites

Au delà de 12 tours, on observe des évolutions très faibles du CV autour de la valeur minimale traduisant probablement une légère compétition entre les mécanismes de mélange par diffusion et de ségrégation par percolation.

Un zoom de la figure 3.17 entre 1 et 15 tours a été réalisé sur la figure 3.18 afin de pouvoir comparer plus finement les évolutions des CV selon les différentes vitesses.

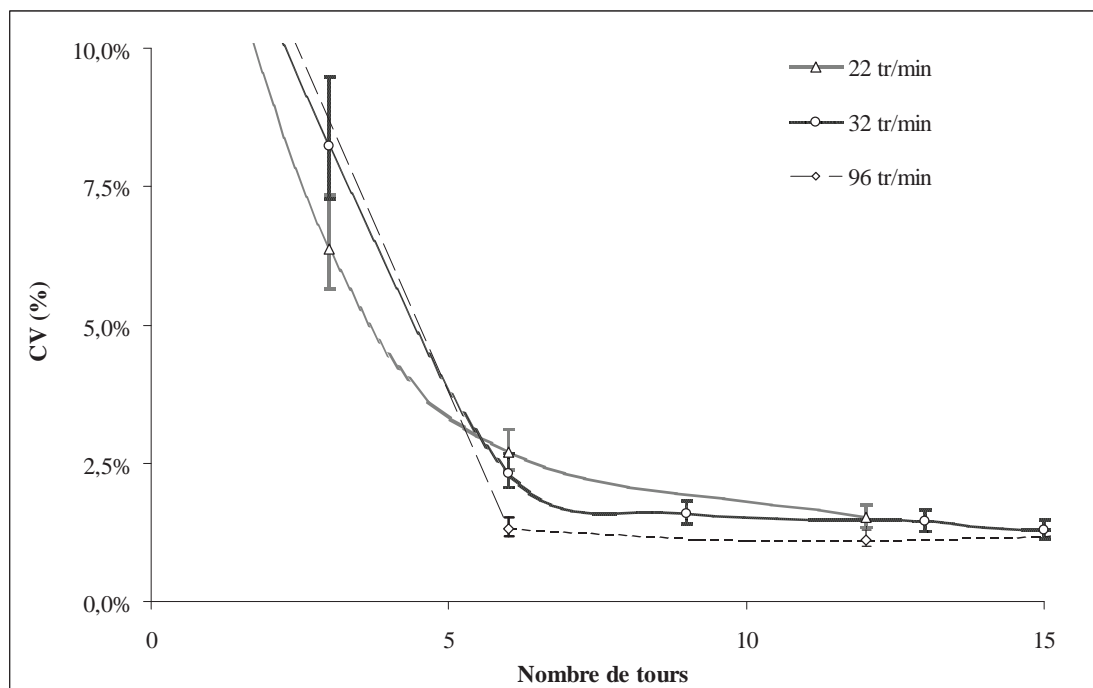


FIGURE 3.18 – Cinétique de mélange obtenu pour les mélanges composites en Turbula<sup>®</sup> T 2F pour des nombres de tours compris entre 1 et 15.

À trois tours, on remarque que la plus faible valeur de CV est obtenue pour la vitesse la plus faible ( $22 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$ ). Ces observations sont en accord avec les résultats de Losada Martin et al. (2004) sur des produits cohésifs. Ces auteurs observent dans les premiers temps du mélange une diminution plus importante de la variance pour  $N = 22 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$  que pour  $N = 46 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$  (voir Chapitre 1, figure 1.37 page 61).

Ces assertions sont cependant à moduler car quel que soit le nombre de tours considéré, les barres d'erreurs pour ces essais se superposent et il est difficile de distinguer les CV obtenus pour ces deux vitesses. Il est donc également possible que ces vitesses, corres-

pendant à un même régime (nombre de Froude  $< 0,5$ , assimilable au régime "cascading" en mélangeur à tambour rotatif), conduisent à une qualité de mélange similaire.

À  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  et pour 6 tours, la valeur du CV est bien en dessous de celles obtenues à  $22$  et  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ . La tendance semble se confirmer pour l'essai réalisé à 12 tours bien que les valeurs de CV deviennent alors très faibles et très proches les unes des autres. Nous pouvons donc supposer que la prépondérance et l'efficacité plus importante des mécanismes de diffusion aux fortes vitesses favorisent l'obtention d'un mélange plus intime.

**•Évolution des CV pour des nombres de tours élevés :**

Les CV obtenus lors d'essais réalisés à  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  et à  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  pour des nombres de tours élevés ont été représentés sur les figures 3.19-a et 3.19-b.

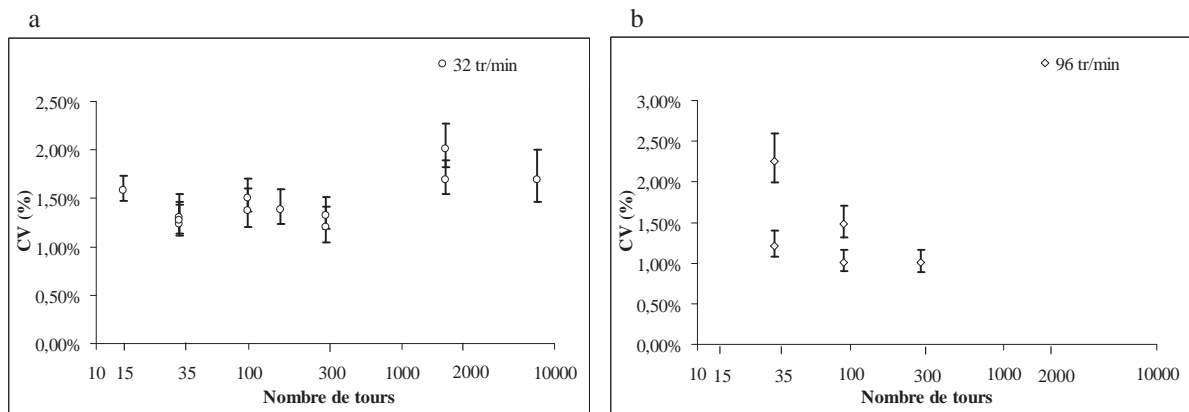


FIGURE 3.19 – CV obtenus pour des temps de mélange longs, à  $32 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  (mélange composite).

Sur la figure 3.19-a, les valeurs de CV semblent remonter légèrement entre 320 tours et 1920 tours avant de se stabiliser (aucune évolution n'est réellement observée entre 1920 et 7680 tours). Ceci peut laisser supposer l'apparition d'un léger phénomène de ségrégation à cette vitesse. Cependant nous sommes toujours à la limite de la superposition des barres d'erreurs et donc à la limite de la distinction des CV.

Pour les essais réalisés à  $96 \text{ tr.min}^{-1}$ , les CV continuent de diminuer lorsque le nombre de tours augmente, et ces valeurs restent toujours en dessous de celles obtenues pour  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ .

Dans la littérature, il a été observé dans les mélangeurs à tambour rotatif que les fortes vitesses permettent la désolidarisation des blocs de particules pour des systèmes cohésifs, favorisant ainsi les mécanismes de diffusion. Si les systèmes particuliers sont peu sujets à

### 3.3 Dynamique de mélange pour les mélanges composites

---

la ségrégation, un mélange plus intime est alors obtenu. Les mécanismes de diffusion aux faibles vitesses sont moins efficaces car les forces de cohésion limitent les déplacements des particules. Nous observons ici un phénomène similaire pour le mélange composite.

#### • Reproductibilité des essais

Les quantités de poudre disponibles et les temps de manipulation n'ont pas permis de répéter tous les essais. Nous avons choisi de comparer uniquement des essais réalisés pour des nombres de tours élevés, ceux-ci correspondant plus aux cas industriels où les temps de mélanges sont de l'ordre de quelques minutes (ce qui équivaut à des nombres de tours compris entre 35 à 300 suivant les vitesses considérés).

À  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ , Les barres d'erreurs se superposent pour tous les essais (voir figure 3.19-a). Les mélanges ont donc des qualités similaires.

À  $96 \text{ tr.min}^{-1}$ , des écarts entre les valeurs de CV, non dûs à la procédure d'échantillonnage apparaissent. Lorsque le temps de mélange augmente, l'écart semble se réduire (figure 3.19-b). La méthode d'analyse utilisée étant très précise, ces écarts sont très probablement le fruit d'une différence de qualité entre les mélanges. À cette vitesse les mécanismes de diffusion sont plus efficaces particulièrement pour des temps de mélange longs.

A 35 tours, les déplacements singuliers de particules dus aux mécanismes de diffusion ont été moins nombreux qu'à 100, voire à 300 tours. En fonction des particules qui se sont alors déplacées, l'état de mélange obtenu peut être légèrement différent.

Pour des nombres de tours plus élevés, le nombre de déplacements augmente considérablement, on peut alors imaginer que toutes les particules se sont déplacées de nombreuses fois dans toutes les directions. L'état de mélange obtenu est aléatoire réduisant l'écart entre les CV lors des différents essais

#### 3.3.2 Cinétique en Turbula® T 10 B

Les courbes cinétiques de mélange en T 10B ont été tracées aux vitesses  $15 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  pour des nombres de tours inférieurs à 35 (figure 3.20). Ces vitesses correspondent à un nombre de Froude  $< 0,5$  pour lequel a priori les mécanismes de convection sont les plus efficaces pour homogénéiser les produits.

L'allure globale des courbes est similaire à celles obtenues dans le T 2F (figure 3.17). Nous pouvons toutefois noter une petite différence avec les courbes de la figure 3.17 : à 6 tours, les barres d'erreurs entre les essais réalisés à  $15 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  ne se chevauchent pas, laissant supposer que la qualité du mélange obtenu à  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  est

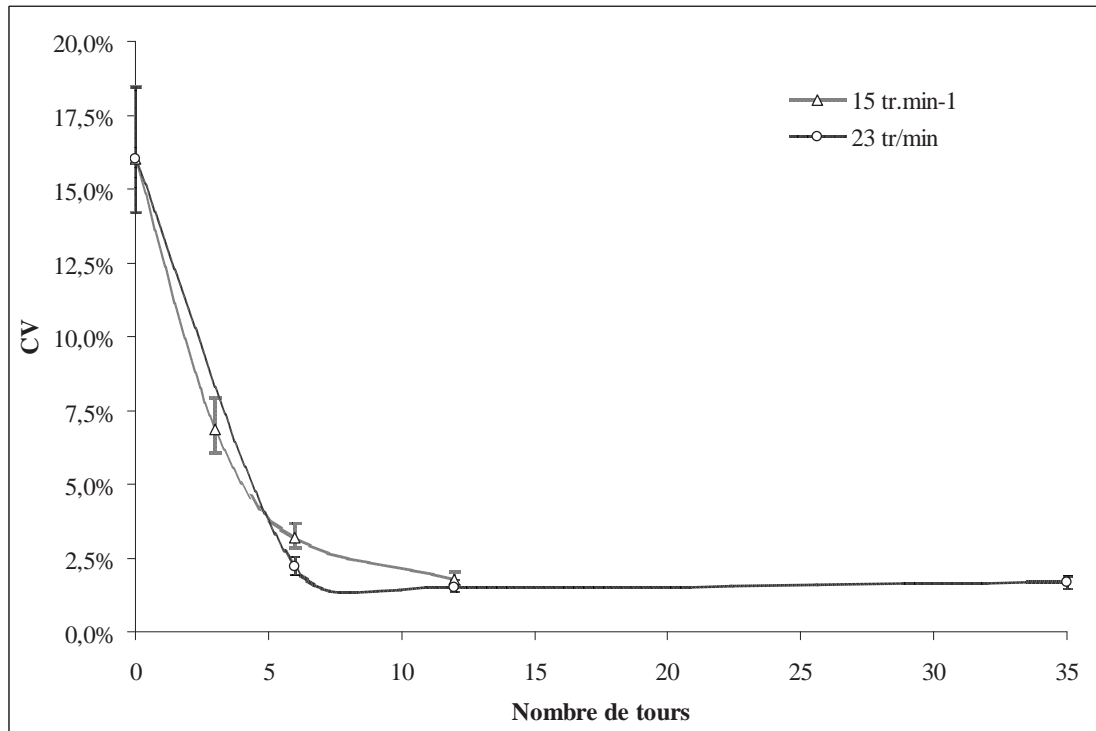


FIGURE 3.20 – Cinétique de mélange en Turbula® T 10B, à 15 tr.min<sup>-1</sup> et 23 tr.min<sup>-1</sup>.

supérieure. Cette assertion doit cependant être modulée car les valeurs des CV restent très proches.

Il faut également garder à l'esprit que les mélangeurs T 2F et T 10B n'ont pas la même inertie. Nous avons montré lors de l'étude des mélanges modèles que les phases d'accélération et de décélération lors du lancement du mélangeur et de son arrêt avaient un impact sur la qualité du mélange pour les nombres de tours faibles. La durée et l'amplitude de ces phases ne sont pas comparables dans les deux tailles de mélangeur et peuvent conduire à des CV différents.

### 3.3.3 La qualité des mélanges face aux critères industriels

Nous avons montré au chapitre 2, 2.3.2.2, (page 107) que les deux critères conditionnant la conformité du mélange par rapport au cahier des charges sont :

- Un CV inférieur à 2,5% , traduisant le fait que les échantillons sont distribués normalement dans un intervalle [80% ;90%],
- Une moyenne de la composition des échantillons comprise entre 84% et 86 %.

### 3.3 Dynamique de mélange pour les mélanges composites

Sur les figures 3.17, 3.19 et 3.20 un CV inférieur à 2,5% est obtenu pour un nombre de tours supérieur à 9 quelles que soient la vitesse et la taille du mélangeur. Le temps de mélange optimal a été estimé à 12 tours (soit environ 33 s à 22 tours.min<sup>-1</sup>). Pour des temps de mélanges longs, les CV obtenus pour la vitesse de 96 tr.min<sup>-1</sup> sont inférieurs, (comme par exemple pour 960 tours soit 10 min) mais le faible gain en terme de qualité de mélange ne justifie peut-être pas une telle dépense énergétique.

Les figures 3.21 et 3.22 présentent les moyennes mesurées ainsi que l'intervalle de confiance pour la moyenne vraie, déterminée à partir des tests de Student (voir chapitre 2, section 2.3.2.2; page 108) pour les différents essais réalisés en Turbula® T 2F et T 10 B.

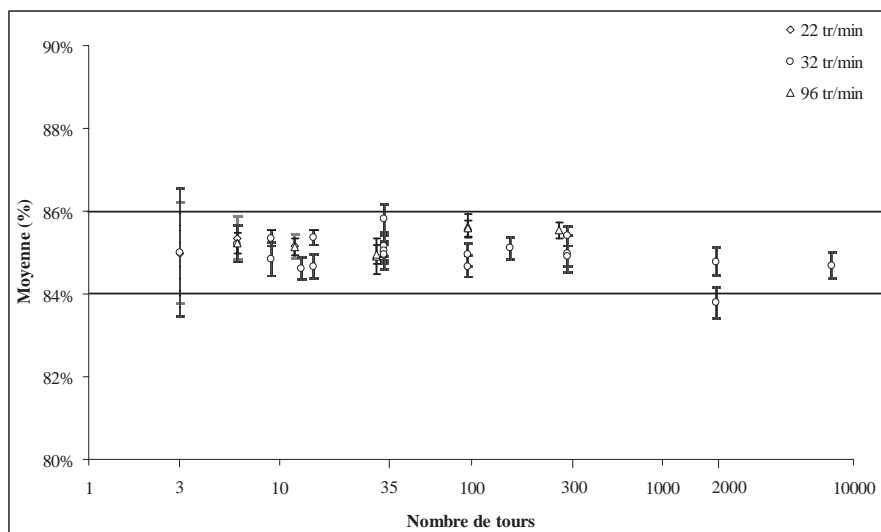


FIGURE 3.21 – Moyennes mesurées des échantillons prélevés pour différents temps de mélange à 22 tr.min<sup>-1</sup>, 32 tr.min<sup>-1</sup> et 96 tr.min<sup>-1</sup> en T 2F (mélange composite).

Les moyennes mesurées et les barres d'erreurs associées sont situées entre 84% et 86% lorsque le nombre de tour est supérieur à 3 pour toutes les vitesses. Seul un mélange obtenu pour 1920 tours à la vitesse 32 tr.min<sup>-1</sup> a une moyenne légèrement inférieure à 84%.

Les Turbula® T 2F et T 10 B, permettent donc l'obtention rapide (temps de mélange inférieur à 9 tours) de très bons mélanges. Dans le chapitre suivant nous comparerons les



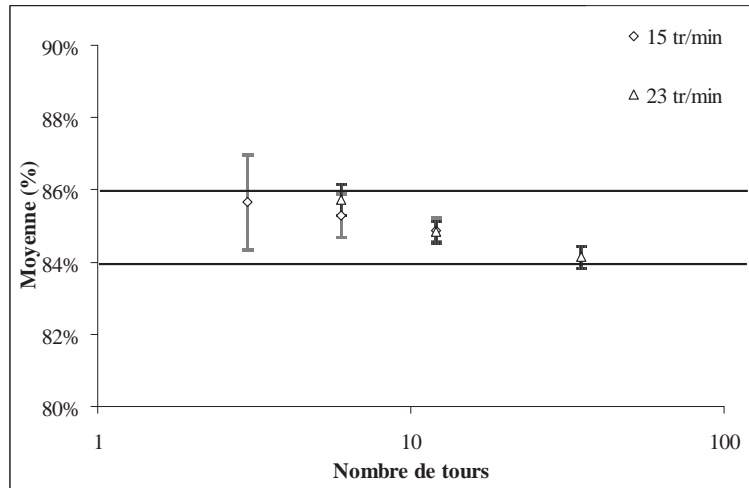


FIGURE 3.22 – Moyennes mesurées des échantillons prélevés pour différents temps de mélange à  $15 \text{ tr.min}^{-1}$ ,  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  en T 10B (mélange composite).

qualités de mélange obtenues à l'échelle laboratoire, pilote et industrielle (T 50A) afin de proposer un temps de mélange utilisable pour la fabrication de plaques composites à l'échelle industrielle.

### 3.3.4 Conclusion

La simulation Solidworks® des différentes tailles de mélangeur, nous a permis d'une part de mieux comprendre le fonctionnement du mélangeur et son efficacité. Celle-ci a été confirmée lors de l'étude expérimentale où nous avons montré que le mélangeur Turbula® permet l'obtention très rapide de mélanges de grande qualité quelle que soit la vitesse du mélangeur et le système particulaire.

En nous appuyant sur des études cinétiques et des fonctions d'autocorrélation, nous avons déterminé les principaux mécanismes responsables de l'état de mélange pour les différentes vitesses. Les tableaux 3.6 et 3.7 résument nos observations pour chacun des systèmes particuliers.

Nous avons également mis en évidence que pour un même régime, les mécanismes de mélange et de ségrégation en T 2F et T 10B sont à priori similaires. Ces hypothèses pourraient être levées par l'étude de simulations DEM.

### 3.3 Dynamique de mélange pour les mélanges composites

Tableau 3.6 – Résumé des principales observations réalisées en Turbula® T 2F et T 10B pour les mélanges modèles.

	Vitesses	Nombre de Froude	Hypothèses pour des nbres de tours faibles	Hypothèses pour des nbres de tours élevés
T2F	22 32	Fr < 0,5 roulement et cascade	compétition entre des mécanismes de convection et de ségrégation par roulement	Valeurs les plus faibles de CV Mécanismes probables de diffusion
T10B	15 23			
T2F	46 67	0,9 < Fr < 2,5 cataracte	Mécanismes initiaux plus importants de convection Mécanismes de ségrégation par trajectoire	Valeurs moyennes de CV. Équilibre entre des mécanismes de diffusion et de ségrégation
T10B	32			
T2F	96	Fr = 4,5 collisionnel	Mécanismes de diffusion surement prépondérants	Ségrégation due à une percolation des fines

Tableau 3.7 – Résumé des principales observations réalisées en Turbula® T 2F et T 10B pour les mélanges composites.

	Vitesses tr.min <sup>-1</sup>	Nombre de Froude	Hypothèses pour des nbres de tours faibles	Hypothèses pour des nbres de tours élevés
T2F	22 32	Fr < 0,5 roulement/ cascade	Présence de mécanismes de convection. Pas ou peu ségrégation	Valeurs de CV plus élevés qu'aux vitesses les plus fortes. Faible efficacité des mécanismes de diffusion
T10B	15 23			
T2F	96	Fr = 4,5 collisionnel	Mécanismes de convection et/ou de diffusion	Particules désolidarisées, mécanismes de diffusion efficaces

Dans le chapitre suivant, nous comparons, en terme de qualité de mélange obtenue, les différentes tailles de mélangeurs Turbula® sur la base des principes de similarités cinématique et dynamique présentées au chapitre 1.

# Chapitre 4

## À la recherche de critères pour le changement d'échelle des mélangeurs Turbula®

### Description du contenu

---

<b>4.1</b>	<b>Similitudes géométriques . . . . .</b>	<b>155</b>
<b>4.2</b>	<b>Similitudes cinématiques et dynamiques . . . . .</b>	<b>158</b>
<b>4.3</b>	<b>Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs . . . . .</b>	<b>166</b>
<b>4.4</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>176</b>

---

La diversité des facteurs influençant les écoulements granulaires et la difficulté à les quantifier rend l'analyse dimensionnelle des mélangeurs de poudres délicate. Les relations d'extrapolation se basent donc plutôt sur le principe des similitudes (cf chapitre 1, section 1.6.1, page 71 ). Pour des mélangeurs présentant des similitudes géométriques, on cherche à définir un critère cinématique ou dynamique qui sera conservé lors du changement d'échelle.

### 4.1 Similitudes géométriques

La vitesse de rotation des axes constitue l'actionneur principal des mélangeurs Turbula®. Toutefois, les vitesses et les accélérations que peuvent subir des particules au sein du mé-

lange sont également dépendantes des dimensions caractéristiques de la cuve (longueur et diamètre).

La spécificité du mouvement repose sur une égalité de longueur entre l'entraxe et le rayon de l'étrier (cf figure 3.2, page 119). Si cette égalité n'est pas respectée, le mélangeur ne peut être mis en mouvement sans rupture d'une des liaisons. Il s'agit donc d'une des dimensions caractéristiques du Turbula<sup>®</sup>, la longueur et le diamètre de la cuve constituant les autres dimensions caractéristiques.

Pour chaque taille de mélangeur étudiée, les valeurs de ces dimensions ont été reportées dans le tableau 4.1. Pour le T 10B et le T 50A, les rapports entre les dimensions à l'échelle considérée et celles du T 2F ont été calculés. Une erreur relative,  $e$ , définie par l'étendue (différence entre la valeur maximale :  $V_{max}$  et minimale :  $V_{min}$  des trois rapports) divisée par la moyenne ( $\bar{V}$ ) a également été déterminée afin de pouvoir comparer les différents mélangeurs entre eux. Une valeur de  $e$  nulle traduira une homothétie parfaite entre les mélangeurs.

Tableau 4.1 – Dimensions caractéristiques des Turbula<sup>®</sup> T 2F, T 10B et T 50A.

	Turbula T 2F	Turbula T 10 B		Turbula T 50 A	
			T 10B/T 2F		T 50A/T 2F
Volume de la cuve	2 l	17 l	8.5	55 l	27.5
Entraxe	125 mm	225 mm	1,80	360 mm	2,88
Diamètre de la cuve	130 mm	252 mm	1,93	370 mm	2,84
Longueur de la cuve	200 mm	360 mm	1,80	565 mm	2,83
Moyenne des rapports			1,84		2,81
Erreur relative			7,1 %		2,5 %

D'après le tableau 4.1, les rapports obtenus sont proches et les erreurs relatives associées restent acceptables. Les mélangeurs semblent donc bien présenter une similitude géométrique complète entre eux. Toutefois, pour le T 10B, on peut remarquer que le rapport associé au diamètre de la cuve est plus élevé. Notons que si un récipient de diamètre différent est inséré dans le panier de mélange, cette distorsion pourra être beaucoup plus importante et la similitude géométrique entre les deux mélangeurs sera alors très limitée.

## 4.1 Similitudes géométriques

Entrop (1978) a proposé une relation, pour les mélangeurs de type Nauta<sup>®</sup> reliant le nombre de tours optimal  $N^*t_m$  au rapport entre les dimensions caractéristiques du mélangeur (voir équation 1.26 au chapitre 1, page 71).

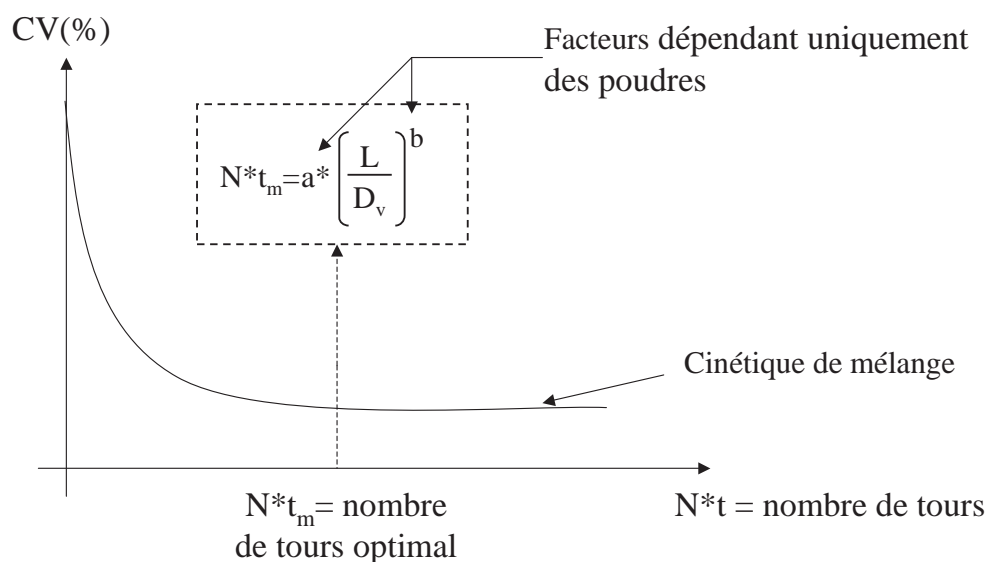


FIGURE 4.1 – Détermination du temps optimal de mélange et relation d'Entrop (1978) pour les mélangeur de type Nauta<sup>®</sup>.

Ainsi pour un système particulière donné, si les mélangeurs Nauta<sup>®</sup> présentent des similitudes géométriques, le nombre de tour optimal, déterminé à partir des cinétiques de mélange, est identique (voir figure 4.1).

Nous avons déterminé que le nombre de tour optimal, pour le mélange composite était de 12 tours, dans le T 2F et dans le T 10B, une relation similaire à celle d'Entrop semble donc applicable au Turbula<sup>®</sup> entre ces deux tailles de mélangeurs. Nous n'avons pas pu réaliser suffisamment d'essais en T 50A pour déterminer le nombre de tour optimal à cette échelle et valider la relation.

Pour le mélange modèle, la détermination du nombre de tour optimal est plus délicate, les produits étant sujets à la ségrégation, les courbes cinétiques présentent de nombreuses fluctuations et pour les plus fortes vitesses l'état du mélange se dégradent avec le nombre de tours. Nous avons mentionné qu'éventuellement 22 tours pouvait être considéré comme un nombre de tour optimal, l'état de mélange alors atteint ne dépendant pas de la vitesse (voir chapitre 3, section 3.2.1.2, page 134). Cependant les essais à l'échelle pilote n'ont pas

été réalisés pour ce nombre de tours car nous avons préféré étudier les temps de mélange plus longs et vérifier si le phénomène de ségrégation observé à l'échelle laboratoire se confirmait à l'échelle pilote. La relation n'a donc pas pu être vérifiée pour le mélange modèle 1.

## 4.2 Similitudes cinématiques et dynamiques

### 4.2.1 Définition des critères cinématique et dynamique

Dans la littérature relative aux mélangeurs de poudre, les similitudes cinématiques sont la plupart du temps associées à des vitesses de particules identiques au sein de la cuve. Pour avoir accès à ces informations, les auteurs utilisent par exemple des méthodes de calcul par éléments discrets (Nakamura et al., 2009), ou des mesures de vitesse par analyse d'image (Alexander et al., 2002). Au sein du mélangeur Turbula<sup>®</sup>, la mesure de la vitesse des particules avec les systèmes granulaires utilisés n'était pas envisageable. Nous avons donc choisi de définir un critère cinématique basé sur une égalité des vitesses maximales au point A<sup>1</sup>, en faisant l'hypothèse que les particules proches de ce point ont des vitesses similaires.

Le critère dynamique est, la plupart du temps, relié à des nombres de Froude identiques au sein du mélangeur. À partir des simulations réalisées sous Solidworks, nous avons pu calculer des nombres de Froude, au point A pour chaque vitesse et taille de mélangeur. Nous considérerons donc que deux mélangeurs présentent des similitudes dynamiques si les nombres de Froude au point A sont égaux.

L'évolution des vitesses maximales et les nombres de Froude au point A avec la vitesse (N) de l'axe moteur ont été tracées respectivement sur les figures 4.2 et 4.3 pour les 3 mélangeurs.

Dans chaque taille de mélangeur, les vitesses maximales au point A sont proportionnelles aux vitesses de l'axe moteur, N. Les équations de chacune des droites obtenues ont été reportées sur la figure 4.2. De même, les nombres de Froude sont proportionnels à N<sup>2</sup> (figure 4.3).

---

1. Pour rappel, le point A correspond au centre du disque de la face inférieure de la cuve, voir figure 3.4, 121

## 4.2 Similitudes cinématiques et dynamiques

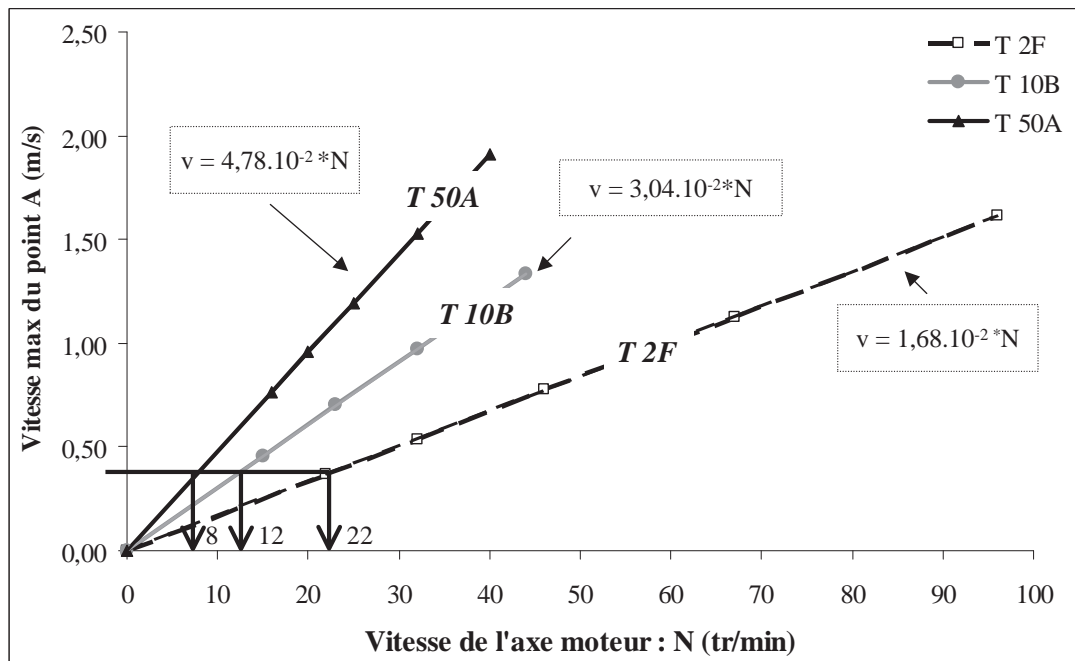


FIGURE 4.2 – Évolution de la vitesse maximale au point A avec la vitesse de l'axe moteur pour les différentes tailles de mélangeur.

Ces résultats ne sont pas surprenants. En effet les seuls paramètres pouvant influencer les vitesses et accélérations (d'où découlent le nombre de Froude) au point A sont les dimensions caractéristiques des mélangeurs et de la vitesse  $N$  de l'axe moteur. Pour une même taille de mélangeur, les longueurs caractéristiques restent constantes, et seule la vitesse  $N$  a alors une influence sur les valeurs des vitesses et accélérations maximales.

Un raisonnement dimensionnel nous permet de déterminer que les coefficients directeurs des droites associés aux vitesses maximales ont pour dimension une longueur. Les équations de la figure 4.2 lient donc tout simplement une vitesse angulaire à une vitesse linéaire.

Pour les mélangeurs à tambour rotatif, le nombre de Froude est déterminé par  $Fr = \frac{R \cdot \omega^2}{g}$  où  $\omega^2$  est égal la vitesse de rotation de la cuve au carré. Les relations trouvées sur la figure 4.3 sont du même type et l'on peut supposer que le coefficient directeur de la droite correspond au rapport entre une longueur et la gravité  $g$ .

Cependant, du fait de la complexité du mouvement, il n'est pas évident de déterminer à quelle(s) dimension(s) de la cuve ces coefficients font référence. Il est toutefois intéressant de remarquer qu'en faisant les rapports des coefficients directeurs des différentes droites



( $a_{T2F}$ ,  $a_{T10B}$ ,  $a_{T50A}$  pour les vitesses maximales au points A et  $b_{T2F}$ ,  $b_{T10B}$ , et  $b_{T50A}$  pour les nombres de Froude maximums au point A) on retrouve les rapports géométriques calculés précédemment (voir tableau 4.1, page 156).

$$\frac{a_{T50A}}{a_{T2F}} = 2,84 \quad \text{et} \quad \frac{a_{T10B}}{a_{T2F}} = 1,81 \quad (4.1)$$

$$\frac{b_{T50A}}{b_{T2F}} = 2,8 \quad \text{et} \quad \frac{b_{T10B}}{b_{T2F}} = 1,8 \quad (4.2)$$

Avec

- $a_{T2F} = 1,68 \cdot 10^{-2}$  [m] et  $b_{T2F} = 5 \cdot 10^{-4}$  [m<sup>2</sup>]
- $a_{T10B} = 3,04 \cdot 10^{-2}$  [m] et  $b_{T10B} = 9 \cdot 10^{-4}$  [m<sup>2</sup>]
- $a_{T50A} = 4,78 \cdot 10^{-2}$  [m] et  $b_{T50A} = 1,4 \cdot 10^{-3}$  [m<sup>2</sup>]

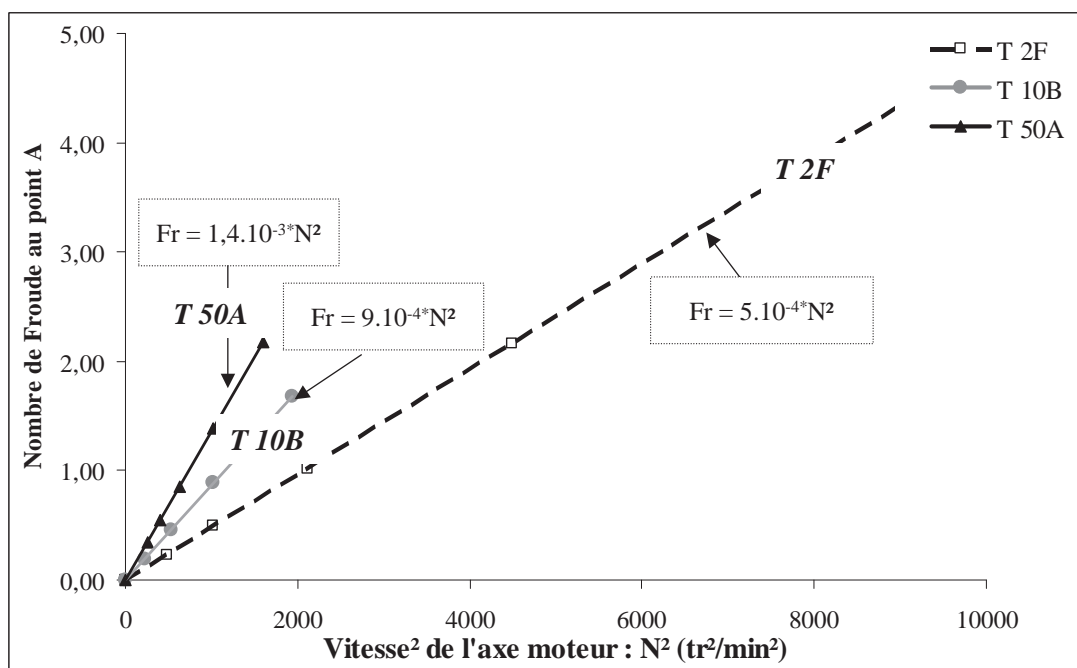


FIGURE 4.3 – Évolution du nombre de Froude au point A avec le carré de la vitesse de l'axe moteur pour les différentes tailles de mélangeur.

Les figures 4.2 et 4.3 mettent en évidence qu'il est possible d'obtenir des vitesses maximales ou des nombres de Froude identiques en fond de cuve pour des échelles différentes. À titre d'exemple, la vitesse maximale en bas de cuve obtenue en T 2F à  $N = 32 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$  est identique à celle obtenue en T 10B pour  $N = 18 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$  et à celle obtenue en T 50 A

## 4.2 Similitudes cinématiques et dynamiques

---

pour  $N = 11 \text{ tr.min}^{-1}$ . De même, le même nombre de Froude est obtenu dans le T 2F, le T 10B et le T 50 A pour des vitesses  $N$  respectivement égales à  $32 \text{ tr.min}^{-1}$ ,  $24 \text{ tr.min}^{-1}$ ,  $19 \text{ tr.min}^{-1}$ .

### 4.2.2 Comparaison des vitesses des mélangeurs selon les critères cinématique et dynamique

#### 4.2.2.1 Critère cinématique

À partir des équations de chacune des droites de la figure 4.2 nous avons déterminé pour chaque vitesse de la gamme du T 2F ( $N_{T2F}$ ), les vitesses équivalentes cinématiquement ( $N_{eq}^c$ ) pour le T 10B et le T 50A. Le même travail a été réalisé à partir des vitesses du T 10B ( $N_{T10B}$ ) pour déterminer les  $N_{eq}^c$  dans le T 50A (voir équations 4.3 à 4.5).

Les valeurs des  $N_{eq}^c$  obtenues ont été reportées dans les tableaux 4.2 et 4.3.

$$N_{eq}^c (\text{T2F/T10B}) = \frac{a_{T2F}}{a_{T10B}} * N_{T2F} \quad (4.3)$$

$$N_{eq}^c (\text{T 2F/T 50A}) = \frac{a_{T2F}}{a_{T50A}} * N_{T2F} \quad (4.4)$$

$$N_{eq}^c (\text{T 10B/T 50A}) = \frac{a_{T10B}}{a_{T50A}} * N_{T10B} \quad (4.5)$$

Pour chaque taille de mélangeur, il existe seulement 4 à 5 vitesses possibles. Nous ne pourrions donc pas utiliser exactement les vitesses équivalentes et l'on va devoir se rapprocher des vitesses effectivement disponibles dans les gammes. L'erreur relative entre la vitesse équivalente et la vitesse effective ( $N_{ef}$ ) la plus proche a été estimée de la manière suivante :

$$e_{eq-ef} = \frac{N_{eq} - N_{ef}}{N_{eq}} \quad (4.6)$$

Les valeurs théoriques des vitesses ont été arrondies à la valeur entière la plus proche mais les erreurs relatives ont été déterminées à partir des valeurs non arrondies.

Les erreurs relatives obtenues lors de la comparaison du T 2F - T 10 B sont assez importantes (tableau 4.2). Il n'existe donc que peu de points de comparaison entre ces deux mélangeurs selon le critère cinématique.

Tableau 4.2 – Correspondances des vitesses de l'axe moteur, N, des mélangeurs T 2F, T 10B, T 50A et erreurs associées selon un critère cinématique.

N en T 2F en tr.min <sup>-1</sup>	N en T 10B en tr.min <sup>-1</sup>			N en T 50A en tr.min <sup>-1</sup>		
	N <sub>eq</sub> <sup>c</sup>	N <sub>ef</sub>	erreur relative	N <sub>eq</sub> <sup>c</sup>	N <sub>ef</sub>	erreur relative
22	12	15	23,4%	8		
32	18	15	15,2%	11		
46	25	23	9,5%	16	16	1,0 %
67	37	32	13,6%	24	25	6,2%
96	53	44	17,1%	34	32	5,2%

Tableau 4.3 – Correspondances des vitesses de l'axe moteur, N, des mélangeurs T 10B et T 50A et erreurs associées selon un critère cinématique.

N en T 10B en tr.min <sup>-1</sup>	N en T 50A en tr.min <sup>-1</sup>		
	N <sub>eq</sub> <sup>c</sup>	N <sub>ef</sub>	erreur relative
15	10		
23	15	16	9,4%
32	20	20	1,7 %
44	28	25	10,6%

Par contre les erreurs relatives obtenues entre le T 10B et T 50A sont acceptables (inférieures ou égales à 10%) et celles entre le T 2F et le T 50A sont très faibles (inférieures à 6,5%). Ces mélangeurs présentent donc de nombreux points de comparaison cinématique ( tableaux 4.2 et 4.3).

#### 4.2.2.2 Critère dynamique

De même manière, à partir des droites de la figure 4.3 nous avons défini des vitesses dynamiquement équivalentes ( $N_{eq}^d$ ) selon les équations 4.7 à 4.9 (voir tableaux 4.2 et 4.3).

$$N_{eq}^d (T2F/T10B) = \sqrt{\frac{b_{T2F} * N_{T2F}^2}{b_{T10B}}} \quad (4.7)$$

$$N_{eq}^d (T2F/T50A) = \sqrt{\frac{b_{T2F} * N_{T2F}^2}{b_{T50A}}} \quad (4.8)$$

## 4.2 Similitudes cinématiques et dynamiques

$$N_{eq}^d (T10B/T50A) = \sqrt{\frac{b_{T10B} * N_{T10B}^2}{b_{T50A}}} \quad (4.9)$$

Tableau 4.4 – Correspondances des vitesses de l'axe moteur, N, des mélangeurs T 2F, T 10B et T 50A et erreurs associées selon un critère dynamique.

N en T 2F en tr.min <sup>-1</sup>	N en T 10B en tr.min <sup>-1</sup>			N en T 50A en tr.min <sup>-1</sup>		
	N <sub>eq</sub> <sup>d</sup>	N <sub>ef</sub>	erreur relative	N <sub>eq</sub> <sup>d</sup>	N <sub>ef</sub>	erreur relative
22	16	15	8,5%	13	16	21,6%
32	24	23	3,6%	19	20	4,5%
46	34	32	6,7%	28	25	9,1% %
67	50	44	11,9%	40	40	0,1%
96	72			57		

Tableau 4.5 – Correspondances des vitesses de l'axe moteur, N, des mélangeurs T 10B et T 50A et erreurs associées selon un critère dynamique.

N en T 10B en tr.min <sup>-1</sup>	N en T 50A en tr.min <sup>-1</sup>		
	N <sub>eq</sub> <sup>d</sup>	N <sub>ef</sub>	erreur relative
15	12		
23	18	16	13,3%
32	26	25	2,6 %
44	35	32	9,33%

À part pour la vitesse  $N = 22 \text{ tr.min}^{-1}$  (T 2F) où l'erreur relative lors de la comparaison avec la vitesse  $N = 16 \text{ tr.min}^{-1}$  dans le T 50A est très importante, les erreurs relatives restent acceptables et les mélangeurs présentent également plusieurs points de comparaison dynamique.

Remarquons que pour  $N = 96 \text{ tr.min}^{-1}$  dans le T 2F, il n'existe aucune vitesse dans le T 10B et le T 50A permettant une correspondance selon un critère dynamique. Cela signifie qu'il est impossible dans les mélangeurs T 10B et T 50A d'obtenir un régime d'écoulement similaire à celui observé en T2F pour cette vitesse. Nous avons montré au chapitre précédent que la vitesse de  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  augmentait l'efficacité des mécanismes de

diffusion pour les produits cohésifs. On peut donc se demander si les mélangeurs T 10B et T 50A permettront l'obtention d'un mélange aussi intime pour le mélange composite que le mélangeur T 2F.

De manière générale, pour les vitesses extrêmes des gammes (faibles ou fortes vitesses) il est souvent difficile de trouver des vitesses correspondantes dans les autres tailles de mélangeur, et ce quel que soit le critère retenu. Comme le nombre de valeurs dans chacune des gammes de vitesse est assez limité, nous ne pouvons être trop restrictif et nous considérerons que deux vitesses sont cinématiquement ou dynamiquement équivalentes si l'erreur relative reste inférieure ou égale à 15 %.

### 4.2.3 Définition de points de fonctionnement cinématiques et dynamiques

À partir des tableaux précédents, nous avons déterminé une plage de points de fonctionnement basés respectivement sur des correspondances cinématiques (PFC) et dynamiques (PFD) (voir tableau 4.6 et 4.7). Travailler à l'un de ces points signifie que la vitesse maximale ou le nombre de Froude au point A est quasi similaire quelle que soit la taille du mélangeur utilisé. Ces plages ont été construites de telle sorte que :

- L'erreur relative entre deux vitesses correspondant à un même point de fonctionnement doit être inférieure ou égale à 15 %
- Une vitesse ne peut apparaître qu'une seule fois dans chacune des plages (cinématique ou dynamique)

Tableau 4.6 – Points de fonctionnement des mélangeurs selon un critère cinématique.

	N en T 2F	N en T 10B	N en T 50A	Vitesse maximale au point A
PFC1	32 tr.min <sup>-1</sup>	15 tr.min <sup>-1</sup>		≈0,5 m.s <sup>-1</sup>
PFC2	46 tr.min <sup>-1</sup>	23 tr.min <sup>-1</sup>	16 tr.min <sup>-1</sup>	≈0,7 m.s <sup>-1</sup>
PFC3	67 tr.min <sup>-1</sup>	32 tr.min <sup>-1</sup>	20 tr.min <sup>-1</sup>	≈ 1,0 m.s <sup>-1</sup>
PFC4		44 tr.min <sup>-1</sup>	25 tr.min <sup>-1</sup>	≈ 1,3 m.s <sup>-1</sup>
PFC5	96 tr.min <sup>-1</sup>		32 tr.min <sup>-1</sup>	≈1,6 m.s <sup>-1</sup>

## 4.2 Similitudes cinématiques et dynamiques

Tableau 4.7 – Points de fonctionnement des mélangeurs selon un critère dynamique.

	N en T 2F	N en T 10B	N en T 50A	Froude maximum au point A
PFD1	22 tr.min <sup>-1</sup>	15 tr.min <sup>-1</sup>		≈0,2
PFD2	32 tr.min <sup>-1</sup>	23 tr.min <sup>-1</sup>	20 tr.min <sup>-1</sup>	≈0,3
PFD3	46 tr.min <sup>-1</sup>	32 tr.min <sup>-1</sup>	25 tr.min <sup>-1</sup>	≈0,7
PFD4	67 tr.min <sup>-1</sup>	44 tr.min <sup>-1</sup>	40 tr.min <sup>-1</sup>	≈1,4

Pour le critère cinématique, les comparaisons s'effectueront le plus souvent entre seulement deux tailles de mélangeur. Seuls les points PFC2 et PFC3 permettent une comparaison acceptable aux trois échelles.

La plage de fonctionnement construite à partir du critère dynamique permet quant à elle, une meilleure comparaison entre les 3 Turbula. Ainsi PFD2, PFD3 et PFD4 permettent une correspondances des vitesses pour chaque taille de mélangeur.

Nous avons voulu comparer les profils des vitesses et des accélérations obtenues dans les différentes tailles de mélangeurs pour des points de fonctionnement cinématique (voir figure 4.4 correspondant à PCF2) et dynamique (voir figure 4.5 correspondant à PDF3). Le temps a été adimensionnalisé ( $\tau$ ) en divisant  $t$  par la période du mouvement,  $T$ , c'est à dire la durée d'une rotation de l'axe moteur.

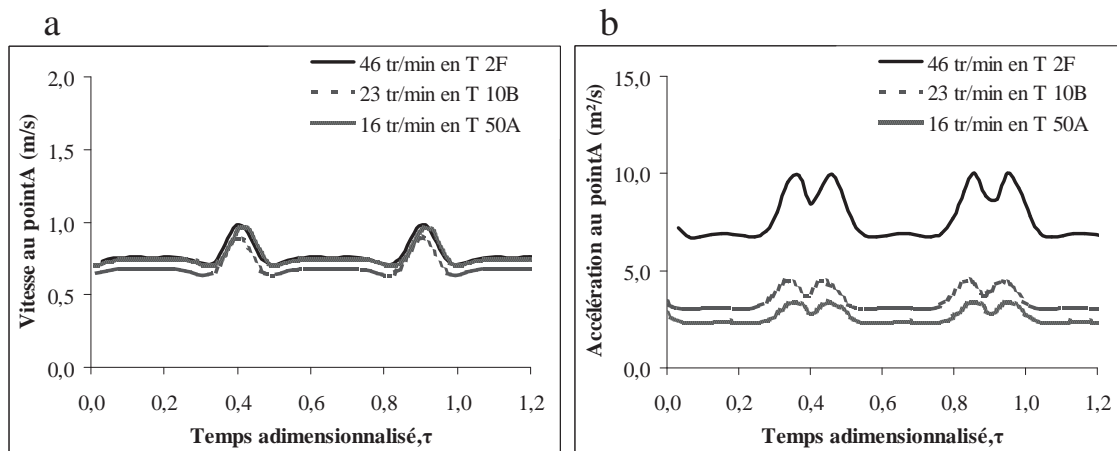


FIGURE 4.4 – Profil de vitesses et accélérations correspondantes cinématiquement (point de fonctionnement PFC2) dans les trois tailles de mélangeurs.

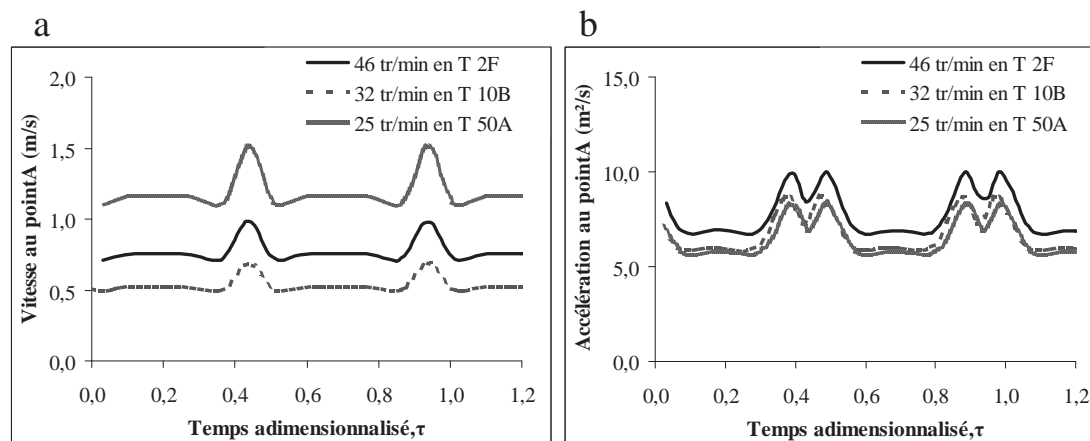


FIGURE 4.5 – Profil des vitesses et accélérations correspondantes dynamiquement (point de fonctionnement PFD3) dans les trois tailles de mélangeurs.

Ces figures mettent d'une part en évidence que pour une comparaison cinématique il existe une très bonne adéquation des profils des vitesses (figure 4.4-a) et que pour une comparaison dynamique il existe une très bonne adéquation des profils des accélérations (figure 4.5-b).

Par contre, les profils des accélérations et vitesses obtenus respectivement lors d'une correspondance cinématique (figure 4.4-b) et dynamique (figure 4.5-a) sont très différents : il est donc impossible de satisfaire en même temps aux critères cinématique et dynamique.

**Remarques :** Pour rappel les erreurs relatives entre les vitesses équivalentes dans les différentes tailles de mélangeurs ont été estimées à 10 % pour ces points de fonctionnement (voir section 4.2.2.1), les courbes présentant les différences les plus importantes étant celles pour lesquelles l'écart relatif entre les vitesses était le plus important.

### 4.3 Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs

L'enjeu du changement d'échelle pour des mélangeurs de poudre consiste à conserver une qualité de mélange identique quelle que soit la taille du mélangeur. Ainsi nous avons voulu comparer les CV obtenus aux différentes échelles pour des mêmes points de fonctionnement (cinématiques ou dynamiques).

### 4.3 Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs

---

Les 3 systèmes particuliers présentés au chapitre 2 (mélanges modèles réalisés à partir des lactoses 1 et 2 et mélange industriel) ont été utilisés dans ce chapitre. Compte tenu des contraintes expérimentales, seuls les essais suivants ont été réalisés :

- Mélange modèle 1 : Essais en T 2F et T 10 B pour les vitesses PFC1, PFC2, PFD1, PFD2, PFD3 et PFD4
- Mélange modèle 2 : Essais en T 2F et T 50 A pour les vitesses PFC4, PFD2, PFD3 et PFD4
- Mélange industriel : Essai en T 2F, T 10 B et T 50 A pour les vitesses PFC1, PFC2, PFD1 et PFD2

#### 4.3.1 Mélange modèle 1

Lors de l'étude des courbes cinétiques de mélange pour le mélange modèle 1 (chapitre 3), nous avons mis en évidence que les essais réalisés pour des nombres de tours faibles étaient moins reproductibles que ceux réalisés à des nombres de tours plus élevés. Nous avons également montré que lorsque le nombre de tours était suffisamment important (500 tours), le mélange atteignait un état stable et les CV obtenus étaient fonction de la vitesse N de l'axe moteur.

Afin de nous affranchir du problème de reproductibilité et d'étudier lequel des critères cinématique ou dynamique permettait d'obtenir des qualités de mélange similaires pour des vitesses équivalentes, nous avons choisi de nous baser sur les essais réalisés pour 500 tours.

La figure 4.6 présente les valeurs de CV obtenues aux différents points de fonctionnement cinématiques précédemment définis. Les valeurs des vitesses correspondantes ont été rappelées en-dessous des courbes. Nous avons également reporté les valeurs de CV obtenues dans les deux tailles de mélangeurs. Enfin un écart relatif entre ces deux valeurs a été calculé par :

$$\text{écart} = \frac{| CV_{T2F} - CV_{T10B} |}{1/2 * (CV_{T2F} + CV_{T10B})} \quad (4.10)$$

avec  $CV_{T2F}$  et  $CV_{T10B}$  les valeurs de CV obtenues respectivement dans le T 2F et le T 10B.



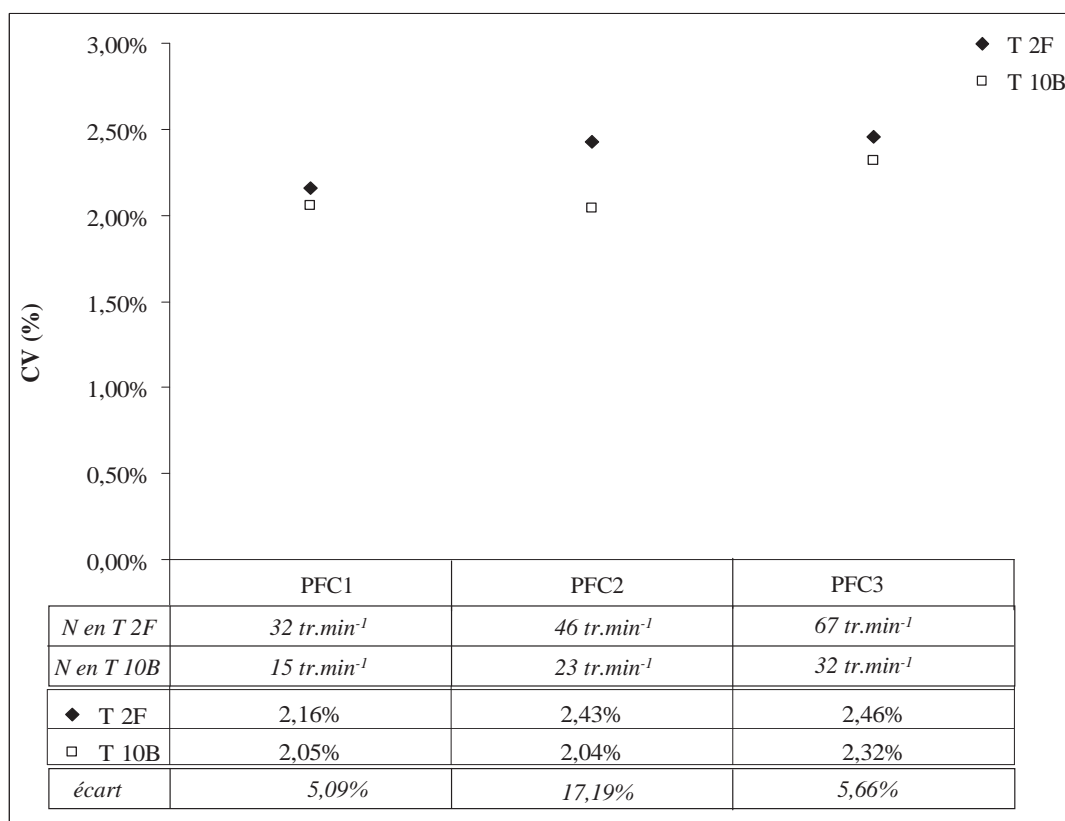


FIGURE 4.6 – CV obtenus aux points de fonctionnement cinématiques pour le mélange modèle 1, dans le T 2F et le T 10B après 500 tours.

On peut noter un écart significatif de plus de 17% entre les valeurs de CV obtenus dans le T 2F et le T 10B au point de fonctionnement PFC2, les écarts obtenus aux points PFC1 et PFC3 étant plus faibles (de l'ordre de 5 %).

Dans le chapitre 3, pour ce système particulière, nous avons défini 3 régimes d'écoulement au sein du mélangeur (voir tableau 3.6, page 153) et nous avons montré que les vitesses de l'axe moteur d'un même régime engendraient des mécanismes de mélange et de ségrégation similaires et aboutissaient à des valeurs de CV très proches.

Au point de fonctionnement PFC1, les vitesses de 32 tr.min<sup>-1</sup> en T 2F et 15 tr.min<sup>-1</sup> en T 10B correspondent à un même régime d'écoulement (régime de roulement). Il en va de même pour les vitesses de 67 tr.min<sup>-1</sup> en T2F et de 32 tr.min<sup>-1</sup> en T 10B au point de fonctionnement PFC3, correspondant toutes deux au régime de cataracte. Les valeurs de CV très proches obtenues à ces points de fonctionnement confirment que des mécanismes identiques conduisent à des qualités de mélange similaires dans les deux tailles de mélangeurs.

### 4.3 Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs

Au point de fonctionnement PFC2, La vitesse de  $46 \text{ tr.min}^{-1}$  en T 2F, correspond au régime de cataracte et la vitesse de  $23 \text{ tr.min}^{-1}$  au régime de roulement. Pour des nombres de tours important, ce sont essentiellement les mécanismes de diffusions qui sont efficaces, ceux ci permettent l'obtention d'un mélange intime, notamment pour le régime de roulement, d'où la valeur de CV plus faible obtenue en T 10B pour la vitesse de  $23 \text{ tr.min}^{-1}$ . Lorsque le régime de cataracte est atteint, les mécanismes de ségrégation notamment par trajectoires apparaissent et induisent un léger effet de démixage qui explique l'augmentation du CV.

Les valeurs des CV permettant une comparaison des mélangeurs sur la base du critère dynamique ont été reportées sur la figure 4.7. Pour chaque point de fonctionnement dynamique, les régimes dans chaque taille de mélangeur sont identiques.

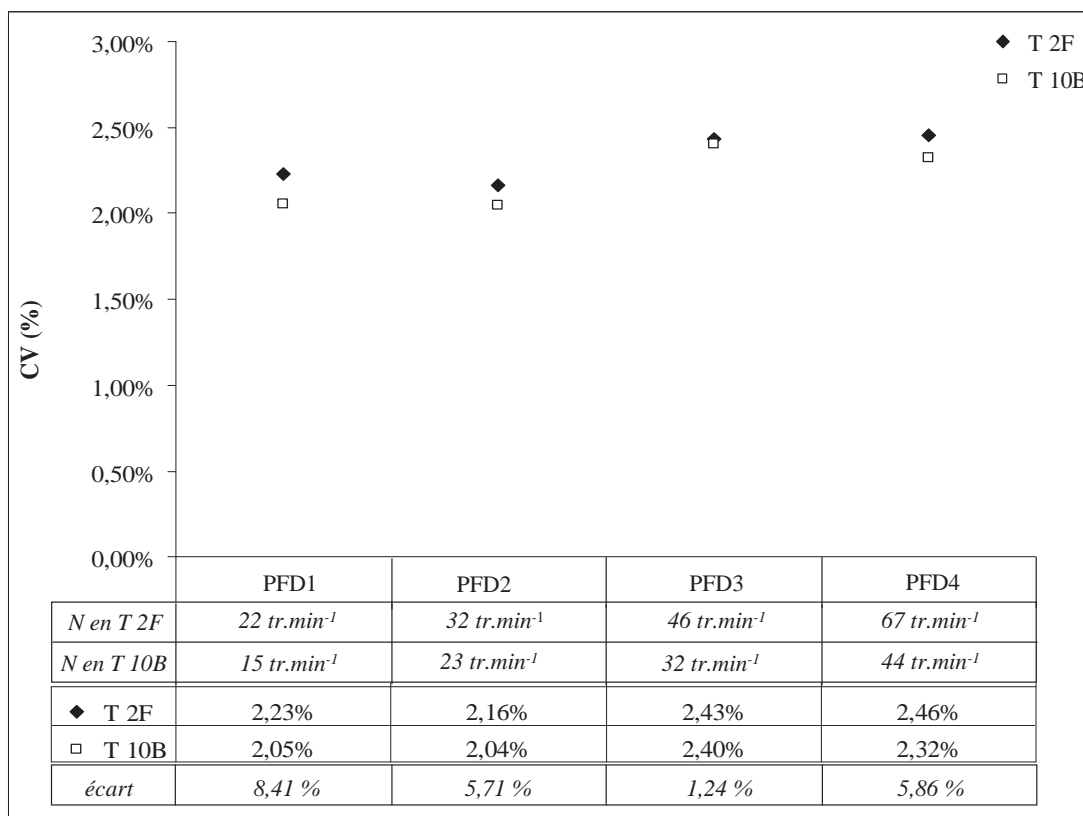


FIGURE 4.7 – CV obtenus aux points de fonctionnement dynamique(1, 2, 3 et 4) pour le mélange modèle 1 dans le T 2F et le T 10B après 500 tours.

Les écarts entre les différentes valeurs de CV sont assez faibles (inférieur à 8%). De plus, l'évolution des CV avec la vitesse est similaire dans les deux tailles de mélangeur, l'augmentation assez nette observée entre les points de fonctionnement PFD2 et PFD3

pouvant être expliquée par la transition entre le régime de roulement et le régime de cataracte. Les points de fonctionnement dynamiques correspondent à un même régime dans chaque taille de mélangeur.

Ainsi, pour le mélange modèle 1, dont les propriétés d'écoulement se rapprochent plus de celles d'un produit à écoulement libre, le critère dynamique semble plus adapté pour prédire la qualité du mélange lors du passage de l'échelle laboratoire (T 2F) à l'échelle pilote.

Toutefois, pour des essais réalisés à  $N_{eq}^d$  nous n'aboutissons pas à l'obtention de valeurs de CV identiques, les valeurs obtenues en T 10B, bien que très proches sont systématiquement inférieures à celles obtenues en T 2F.

### 4.3.2 Mélange modèle 2

Nous avons ici aussi comparé les essais réalisés dans le T 2F et le T 50A à différents points de fonctionnement, pour 500 tours (voir figure 4.8).

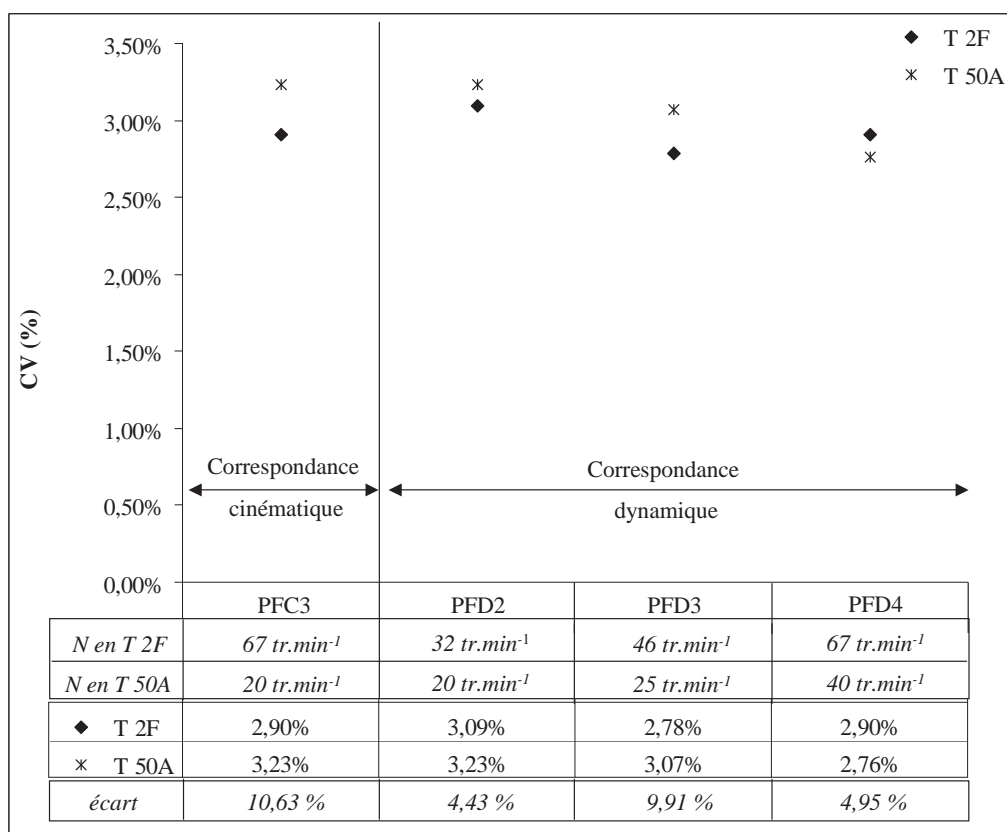


FIGURE 4.8 – CV obtenus après 500 tours aux points de fonctionnement cinématiques et dynamiques pour le mélange modèle 2 dans le T 2F et le T 50A.

### 4.3 Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs

---

La qualité des mélanges réalisés à partir du lactose 2 semble meilleure aux plus fortes vitesses ( $67 \text{ tr.min}^{-1}$  pour le T 2F et  $40 \text{ tr.min}^{-1}$  pour le T 10B). Pour ces mélanges la construction et l'étude des cinétiques n'a pas été possible car les essais réalisés n'ont pas été assez nombreux. Toutefois, nous avons montré au chapitre 2 (section 2.1.5, page 89) que les mélanges modèles réalisés à partir du lactose 2 sont beaucoup plus cohésifs que ceux réalisés avec le lactose 1, et auront a priori un comportement à rapprocher de celui du mélange composite.

La diminution des CV avec la vitesse est très probablement due à l'obtention d'un mélange plus intime grâce à une meilleure efficacité des mécanismes de diffusion aux fortes vitesses et une tendance moindre à la ségrégation (voir le tableau récapitulatif 3.7 page 153).

Le seul essai réalisé selon une correspondance cinématique (PFC3) conduit à un écart de l'ordre de 10 % sur les valeurs de CV. Il est donc difficile de juger ici de la pertinence de ce critère pour une éventuelle extrapolation des mélangeurs.

Pour le critère dynamique, on peut noter une diminution du CV, dans les deux tailles de mélangeur, correspondant au passage du régime de roulement au régime de cataracte (entre les points de fonctionnement PFD2 et PFD3). Cette diminution semble plus importante dans le T 2F.

Au point de fonctionnement PFD3, dans le T 50A, on observe une nouvelle diminution du CV laissant penser que les mécanismes de diffusion sont plus efficaces à cette vitesse et permettent ainsi l'obtention d'un mélange encore plus intime.

Cependant, du fait son caractère beaucoup plus cohésif, nous avons éprouvé de nombreuses difficultés lors de la vidange du mélange modèle 2 sur la bande transporteuse. Un dévoutage manuel de l'entonnoir a été régulièrement effectué pour permettre l'obtention d'une couche homogène de poudre sur la bande (voir chap 2 , section 2.3.1, page 103). On peut donc s'interroger sur l'influence de ces actions sur les CV mesurés. Il est ici difficile de conclure sur la pertinence de l'utilisation des critères cinématique et dynamique lors de l'extrapolation du T 2F au T 50A dans le cas du mélange modèle 2.

### 4.3.3 Mélange composite

Nous avons montré au chapitre 3 que les différentes vitesses des Turbula® T 2F et T 10B conduisaient à des états de mélange à peu près similaires lorsque le nombre de tours effectués par le mélangeur était supérieur à 12. La vitesse de 96 tr.min<sup>-1</sup> semblait toutefois permettre pour des nombres de tours élevés, l'obtention d'un mélange plus intime.

Nous avons donc choisi de comparer les CV obtenus dans les 3 tailles de mélangeurs pour des nombres de tours faibles : 6 (figure 4.9) et 12 tours (figure 4.10).

Nous avons volontairement écarté les essais réalisés à 3 tours car l'inertie due au démarrage du mélangeur perturbe trop la vitesse dans les premiers temps du mélange.

Les barres d'erreurs représentent l'erreur d'échantillonnage liée à la selection de 80 échantillons parmi 6000 pour le T 2F, 51 000 pour le T10B et 165 000 pour le T 50A.

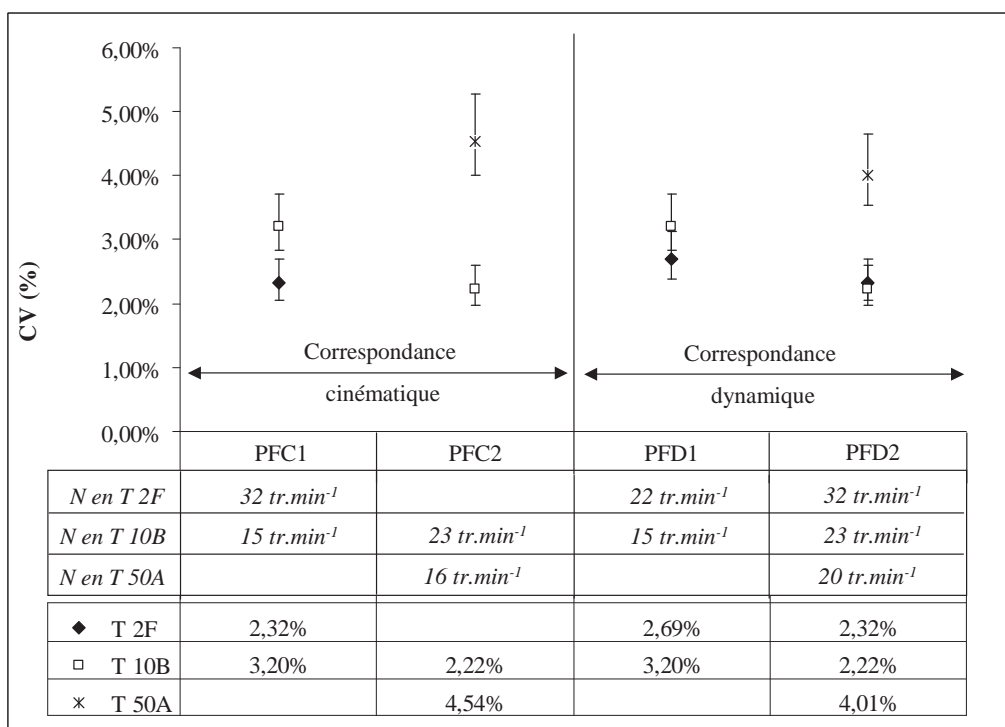


FIGURE 4.9 – CV obtenus aux points de fonctionnement cinématiques et dynamiques pour le mélange composite dans le T 2F, le T 10B et le T 50A, à 6 tours.

Nous n'avons pas calculé ici les écarts entre les valeurs de CV obtenues dans les différentes tailles de mélangeurs. En effet du fait de l'utilisation d'une procédure d'échan-

### 4.3 Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs

tillonnage, les valeurs de CV sont des valeurs estimées et les écarts calculés à partir de ces valeurs ne sont pas représentatifs de l'écart réel entre les CV vrais. Nous considérerons donc ici que deux essais sont distincts si aucun recouvrement des barres d'erreurs n'est observé.

En utilisant une correspondance cinématique, on remarque sur la gauche des figures 4.9 et 4.10, que les valeurs de CV obtenues sont différentes et qu'il n'y a aucun recouvrement des barres d'erreur. Les états de mélanges obtenus sont très probablement différents.

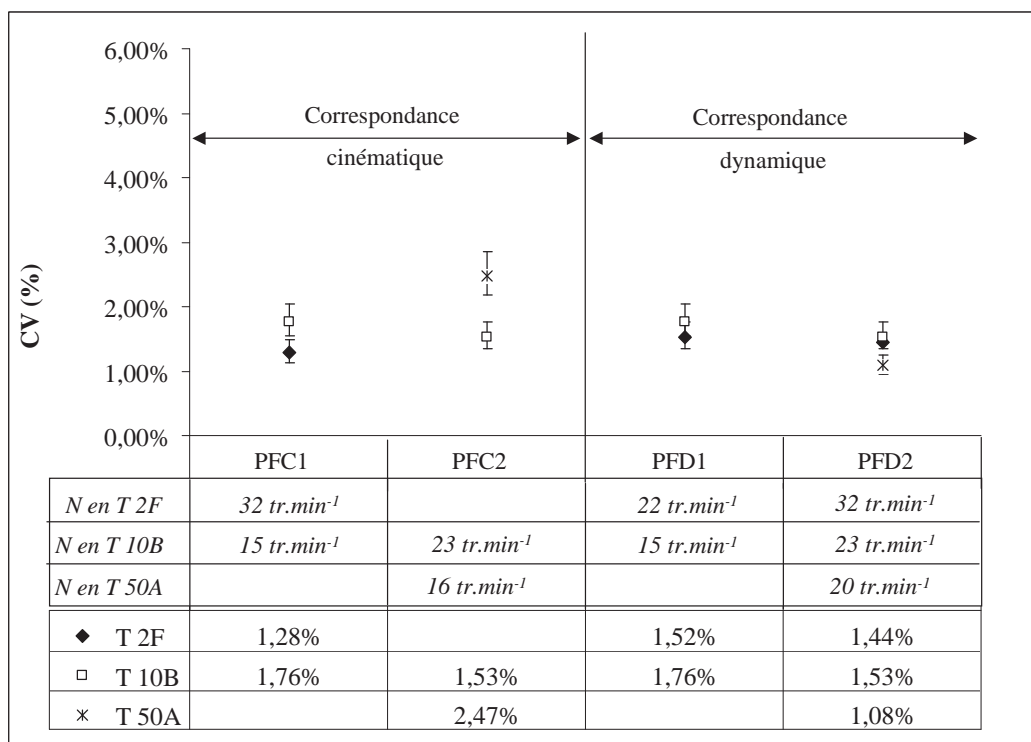


FIGURE 4.10 – CV obtenus aux points de fonctionnement cinématiques et dynamiques pour le mélange composite dans le T 2F, le T 10B et le T 50A, à 12 tours.

Par contre, pour les points de fonctionnement dynamiques, les valeurs de CV obtenues dans le T 2F et le T 10B sont très proches et on observe un fort recouvrement des barres d'erreurs. Les états de mélange peuvent être considérés comme identiques. Si l'on compare ces CV avec ceux obtenues en T 50A, on note une différence assez importante.

À 6 tours, la valeur du CV en T 50A pour le point de fonctionnement PFD2 est beaucoup plus élevée que celles obtenues en T 2F et T 10B (voir figure 4.9). Nous avons discuté au chapitre 3, de l'impact des phases d'accélération et de décélérations du mélangeur sur la qualité du mélange obtenue. L'amplitude des accélérations et la durée des phases est fonction de la taille du mélangeur, les accélérations aux plus fortes vitesses conduisant à des CV plus faibles. Il est possible que dans le T 50A, l'accélération du mélangeur au démarrage pour attendre la vitesse spécifiée soit moins forte que dans les mélangeurs T 2F et T 10B à cause de la masse de l'ensemble cuve + produit et que la durée de la phase d'accélération soit aussi plus longue.

À 12 tours, la phase d'accélération terminée, le régime d'écoulement est établi et la valeur de CV dans le T 50A est inférieure à celles obtenues dans le T 2F et le T 10B. Cette constatation va dans le même sens que les observations réalisées pour le mélange modèle 1, où les CV obtenus étaient systématiquement inférieurs dans le T 10B, pour des vitesses dynamiquement équivalentes. Il semblerait donc que l'efficacité du mélangeur augmente avec sa taille.

Afin de confirmer cette tendance nous avons réalisé un essai en T 50A, pour un temps de mélange long (300 tours) à la plus forte vitesse disponible ( $40 \text{ tr.min}^{-1}$ , PFD4), pour laquelle à priori les produits sont dans un régime d'écoulement de type cataracte. La valeur du CV mesuré lors de cet essai, ainsi que celle obtenue lors d'un essai dans le T 2F  $96 \text{ tr.min}^{-1}$  pour 300 tours ont été reportées dans le tableau 4.8.

Tableau 4.8 – Comparaison de CV obtenu pour des temps de mélange longs (300 tours) aux fortes vitesses en T 2F et T 50A.

	Valeur du CV mesurée	Intervalle de confiance pour le CV vraie
$96 \text{ tr.min}^{-1}$ en T 2F ( $> \text{PDF4}$ )	1,01 %	[0,89 % ; 1,17 %]
$40 \text{ tr.min}^{-1}$ en T 50A (PDF4)	0,79 %	[0,68%,0,89%]

Pour ces essais, la qualité du mélange dans le T 50A est ici aussi supérieure à celle obtenue pour une vitesse équivalente dynamiquement plus élevée dans le T 2F( $N_{eq}^d$ ), confirmant ainsi le fait qu'un mélangeur de plus grande taille permette l'obtention d'une mélange plus intime.

### 4.3 Comparaison des résultats obtenus dans les trois tailles de mélangeurs

---

Ces résultats vont dans le sens des travaux de Cleary and Sinnott (2008) commentés dans le chapitre 1 (section 1.6.4, page 75). Cette étude mettait en évidence pour des mélangeur en V, que pour un changement d'échelle uniquement basé sur l'utilisation du nombre de Froude, la qualité du mélange obtenue était supérieure dans le mélangeur de plus grande taille.

Pour les poudres cohésives (mélange composite et mélange modèle 2), ce phénomène peut éventuellement s'expliquer par l'augmentation de la surface libre (voir figure 4.11).

En effet pour les mélangeurs de plus grande taille, la surface libre est plus grande et les distances de chute ou de roulement pour les particules peuvent probablement conduire à plus de cisaillement au sein du mélangeur. Pour des poudres cohésives, les particules se trouvent alors désolidarisés, et les mécanismes de diffusion sont plus efficaces même pour des vitesses ne favorisant pas à première vue ce type de mécanisme.

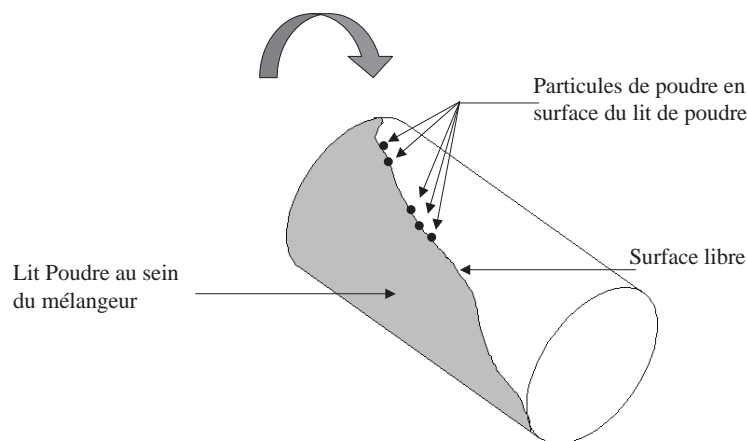


FIGURE 4.11 – Représentation schématique de l'intérieur de la cuve du mélangeur mettant en évidence la position du lit de poudre et la surface libre où les particules peuvent se mouvoir.

Cependant pour des poudres à écoulement libre, cela devrait également renforcer les mécanismes de ségrégation et conduire à une baisse de la qualité des mélanges ce qui n'est pas le cas pour le mélange modèle 1, lors du passage du T 2F au T 10B. Peut être que la différence de taille entre ces deux mélangeurs n'est pas suffisante pour mettre en évidence cette potentielle augmentation de la ségrégation. Des essais en T 50A avec les mélanges modèle 1, qui n'ont pas pu être réalisés dans le cadre de cette thèse, pourraient éventuellement permettre d'éclairer ce point.



**Remarque :** Dans cette étude, nous avons conservé constant le taux de remplissage dans les 3 cuves. On peut s'interroger si il n'aurait pas fallu au contraire l'augmenter afin de conserver une similitude des surface libres entre les différentes tailles de mélangeurs. En tout cas cela confirme que le taux de remplissage est un critère important dans l'extrapolation des mélangeurs de poudre 1.4.3.2, page 66).

## 4.4 Conclusion

Une étude géométrique des trois tailles de mélangeurs Turbula® commercialisée par la société WAB a permis de montrer que, lorsque les cuves de tailles maximales étaient utilisées, le principe de similitude géométrique était vérifié.

À partir de la modélisation des trois tailles de Turbula® réalisée sous Solidworks et de la simulation de leurs mouvements, nous avons défini un critère cinématique (vitesse en fond de cuve identique dans les trois tailles de mélangeur) et un critère dynamique (nombre de Froude identique). Ces critères ont été testés pour 3 systèmes particuliers aux propriétés d'écoulement différentes.

Quel que soit le système particulière, il semblerait que l'extrapolation sur la base d'un critère cinématique ne permette pas d'obtenir la même qualité de mélange, pour des temps d'opération identiques, dans les 3 tailles de mélangeurs.

L'utilisation du critère dynamique conduit, a priori à l'obtention de mélange de qualités similaires entre le T 2F et le T 10B, très probablement parce que les mécanismes de mélange et de ségrégation sont similaires.

L'extrapolation à l'échelle industrielle est plus délicate. Pour des temps de mélange courts, la qualité de mélange est inférieure dans le T 50 A, l'inertie différente des mélangeurs pouvant en partie expliquer la différence observée.

Par contre pour des temps de mélange suffisamment longs, l'homogénéité du mélange est meilleure dans le mélangeur à l'échelle industrielle. On peut donc supposer qu'un facteur supplémentaire influence les mécanismes de mélange et de ségrégation. Celui-ci pourrait éventuellement être lié à une surface libre plus importante dans les mélangeurs de grande taille. Cependant cette hypothèse n'a pu être validée et ici encore des simulations DEM apporteraient sous doute des éléments complémentaires, permettant de mieux

## 4.4 Conclusion

---

comprendre le comportement des poudres aux différentes tailles de mélangeur.

Dans le cadre du projet MaSCoTE, nous avons déterminé que 12 tours pouvait être considéré comme le nombre de tour optimal à l'échelle laboratoire et pilote, la vitesse ayant alors peu d'impact sur la qualité du mélange. Dans le présent chapitre, nous avons également montré que pour ce nombre de tour optimal, la qualité du mélange obtenu à l'échelle industrielle était supérieure. Ainsi, opérer à la vitesse la plus faible,  $N = 16 \text{ tr.min}^{-1}$ , en T 50 A pendant 1 min (équivalent à 16 tours) devrait donc permettre d'obtenir des mélanges satisfaisant le cahier des charges.

L'opération de mélange n'est qu'une des étapes du procédé envisagé dans le cadre du projet MaSCoTE. Les partenaires du projet, lors de l'étape finale d'injection et de moulage des plaques se sont aperçus que des défauts de très petites tailles engendraient parfois de nettes diminutions dans les propriétés des plaques manufacturées, la qualité du mélange étant pourtant acceptable d'un point de vue macroscopique. Le chapitre suivant, en s'appuyant sur les théories développées pour l'analyse de la structure des mélanges de poudre propose une méthodologie visant à détecter ces défauts dans les plaques bipolaires composites formées.



# Chapitre 5

## Méthodologies pour la détection de défauts dans des mélanges mis en forme : application aux plaques bipolaires composites

### Description du contenu

---

5.1	Rappel du contexte . . . . .	179
5.2	Principe de simulation d'objets 2D contenant des défauts . .	180
5.3	Exemples de simulations . . . . .	186
5.4	Quelques pistes pour l'application à un cas réel . . . . .	191
5.5	Conclusion . . . . .	192

---

### 5.1 Rappel du contexte

Lors d'essais préliminaires au projet MaSCoTE, les partenaires ont mis en évidence la présence d'amas de polymère au sein des plaques bipolaires composites fabriquées à partir d'un procédé de mélange à sec suivi d'une étape de moulages des plaques. Ces amas sont présents, soit à la surface de la plaque, soit dans l'épaisseur même de celle-ci et conduisent à une diminution des propriétés thermiques, électriques et mécaniques des plaques formées. Ils engendrent également des problèmes de démoulage.

Ce chapitre présente un développement méthodologique visant à évaluer la taille et le nombre de défauts au sein des plaques composites, en se basant sur l'utilisation conjointe des notions d'intensité et d'échelle de ségrégation adaptées à ce cas particulier. La performance de ces deux outils a été étudiée en s'appuyant sur des simulations des plaques composites en deux dimensions et un programme de calcul développé sous Matlab®.

## 5.2 Principe de simulation d'objets 2D contenant des défauts

On cherche à bâtir un programme permettant de générer des plaques composites contenant des défauts dont le nombre et la taille peuvent varier. La plaque sera ensuite divisée en échantillons et l'intensité et l'échelle de ségrégation seront calculées.

### 5.2.1 Génération de plaques bipolaires composites

Les plaques composites produites dans le cadre du projet MASCOTE ont des dimensions de 100 mm\*100 mm sur 0,3 mm d'épaisseur. Cependant, la surface utile de la plaque, c'est à dire celle où ont lieu les échanges thermiques et électriques et où les canaux permettant la circulation des gaz sont moulés à une dimension de 60 mm\*60 mm\*0,3 mm. La figure 5.1 représente deux plaques bipolaires composites, sur l'une d'elle la surface utile de la plaque a été mise en évidence.

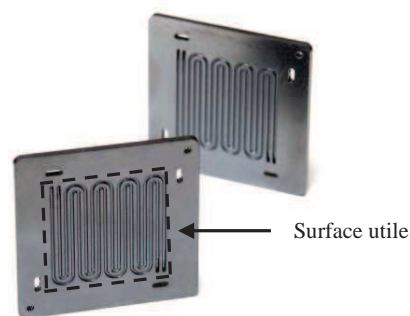


FIGURE 5.1 – Représentation de deux plaque bipolaires composites.

## 5.2 Principe de simulation d'objets 2D contenant des défauts

---

Les plaques composites simulées dans cette étude ont une composition de 15 % en polymère thermodurcissable et de 85% en graphite et pour dimension la surface utile d'une plaque bipolaire composite (60 mm\*60 mm\*0,3 mm). Cette plaque peut être vue comme un assemblage de parallélépipèdes rectangles appelés échantillons unitaires (EU). Ces échantillons unitaires peuvent être assimilés à la plus petite échelle d'observation possible.

Dans cette étude, la taille des échantillons unitaires (EU) a été fixée à 1mm\*1mm sur l'épaisseur totale de la plaque, soit 3mm (voir figure 5.2).

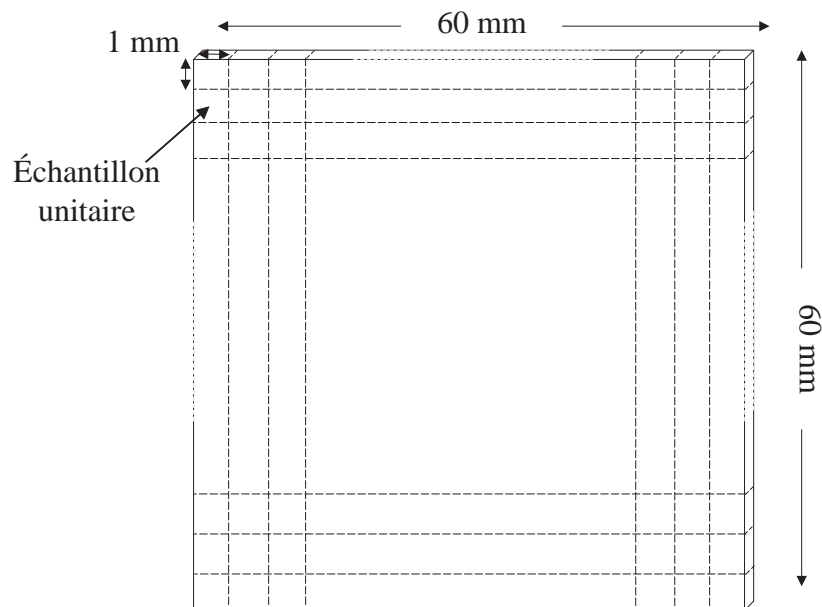


FIGURE 5.2 – Plaque composite découpée en échantillons unitaires.

Les défauts que nous cherchons à identifier au sein des plaques sont constitués exclusivement de polymère thermodurcissable, leur nombre (entre 1 et 5 dans ce travail) et leurs tailles (de 1 à 25 EU soit de 1 à 25 mm<sup>2</sup> dans ce travail) varient au sein des plaques. Une composition de 0% en graphite a donc été assignée à certains EU.

Nous avons considéré qu'en dehors des défauts générés, le reste du mélange est parfaitement homogène. Ainsi, les EU non défectueux ont tous une composition identique. Une plaque étant constituée de 85% de graphite, la composition de chaque EU non défectueux est donc calculée en fonction du nombre et de la taille des défauts présents dans la plaque et est forcément différente de 85% lorsque le nombre de défauts est supérieur ou égal à 1.

La plaque bipolaire composite peut ainsi être représentée par une matrice 60\*60 où chaque élément de la matrice prend pour valeur la composition en graphite de l'échan-

tillon unitaire considéré.

Ces matrices, appelées par la suite **matrices plaques** ont été générées sous Matlab<sup>®</sup>, la position des défauts étant déterminée par un processus aléatoire. La figure 5.3-a est une image issue du programme, présentant une plaque composite simulée avec 2 défauts dont chacun à une taille de 4 EU (2 EU en longueur et 2 EU en largeur), positionnés aléatoirement. Les défauts apparaissent en blanc et le mélange homogène en noir.

### 5.2.2 Échantillonnage

Au chapitre 1, nous avons mis en évidence que la taille des échantillons doit être la plus proche possible de l'échelle d'observation. Cependant pour les plaques bipolaires composites, l'échelle d'observation n'est pas aussi évidente à déterminer que pour des mélanges de poudre.

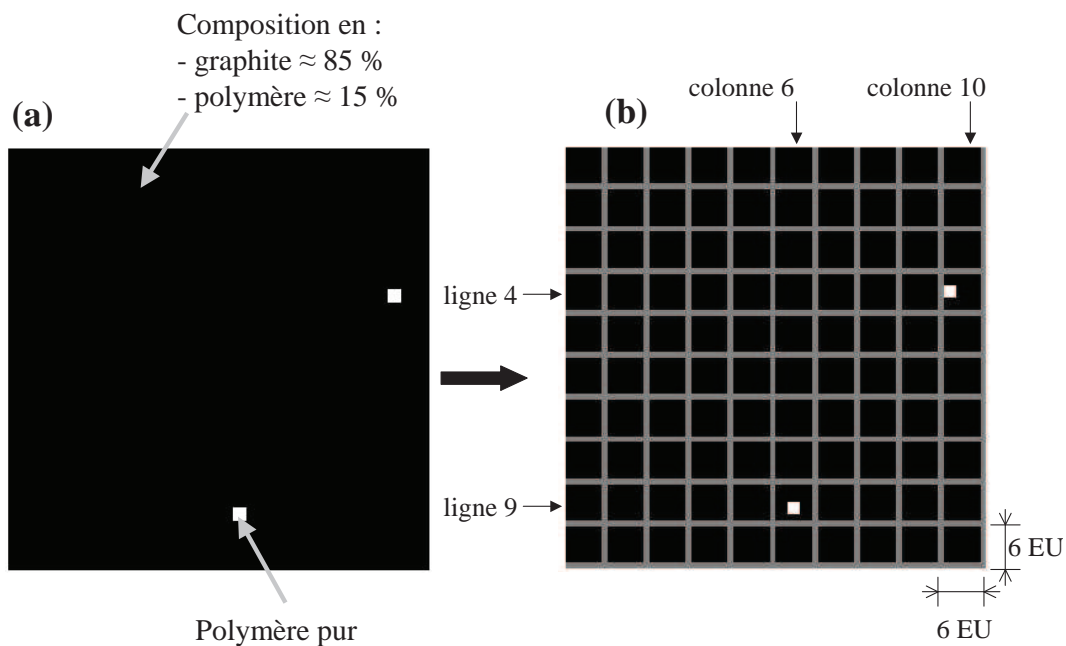


FIGURE 5.3 – Représentation d'une plaque composite obtenue à partir de simulation Matlab<sup>®</sup> avec deux défauts d'une taille de 4EU (a) et découpage de cette plaque en 100 échantillons d'une taille de 36 EU (b).

Dans les chapitres précédents (voir chapitre 2, section 2.3.2.1, page 105), l'évaluation de la qualité des mélanges a été réalisée sur la bases d'échantillons de 0,07 g correspondant à une surface de plaque de 3,3mm\*3,3mm sur l'épaisseur totale de la plaque. Cette

## 5.2 Principe de simulation d'objets 2D contenant des défauts

---

taille a été estimée pour une évaluation globale des propriétés de la plaque mais n'est pas forcément adaptée pour déterminer la présence et la taille d'amas de polymère qui, même de très petites tailles, peuvent réduire considérablement la durée d'une vie d'une plaque bipolaire en étant à l'origine de points chauds ou de points de faiblesse mécanique.

Nous avons donc choisi d'étudier l'influence de la taille des échantillons sur la détection des défauts au sein des plaques. Ainsi différentes tailles d'échantillons, allant de 1 (1 \*1) à 36 (6\*6) EU ont été considérées dans cette étude. La figure 5.3-b met en évidence la division de la plaque de la figure 5.3-a en 100 échantillons d'une taille égale à 36 EU (6\*6).

Les compositions de chaque échantillon sont obtenues en moyennant les éléments de la **matrice plaque** correspondants. Elles sont ensuite stockées dans une nouvelle matrice appelée **matrice échantillon**. Dans l'exemple précédent la **matrice échantillon** associée à la figure 5.3-b sera une matrice 10\*10 dont deux termes auront une valeur différente des autres : ceux situés ligne 4, colonne 10 et ligne 9, colonne 6 :

$$\begin{pmatrix} 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & \boxed{75,7\%} \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & \boxed{75,7\%} & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \\ 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% & 85,2\% \end{pmatrix}$$

Les échantillons non défectueux ont tous la même composition en graphite, supérieure à la teneur nominale de la plaque qui elle, est bien égale à 85%.

### 5.2.3 Détermination de l'intensité et de l'échelle de ségrégation

Danckwerts (1952) a montré que l'évaluation d'un état de mélange peut être réalisée grâce à l'utilisation conjointe de l'intensité de ségrégation, donnant une image macroscopique sur l'état du mélange, et de l'échelle de ségrégation apportant des informations sur la taille et la forme de paquets de particules peu ou mal mélangés.



L'intensité de ségrégation peut être reliée au coefficient de variation (voir chapitre 1). Celui-ci a donc été calculé directement à partir des **matrices échantillons**. À titre d'exemple, la valeur de l'intensité de ségrégation correspondant à l'exemple précédent est de 1,57%.

Danckwert propose de déterminer l'échelle de ségrégation à partir de la fonction d'autocorrélation à 1 dimension. Les plaques bipolaires ont une longueur et une largeur identique, la fonction d'autocorrélation en 1D n'apportera que peu d'information sur la taille des défauts. Nous avons donc préféré utiliser un outil d'autocorrélation spatiale, l'indice de Moran qui permet une représentation en 2 dimensions et donne des renseignements assez similaires à ceux obtenus par l'utilisation la fonction d'autocorrélation 1D. Pour plus d'information sur ces outils, le lecteur pourra se référer au chapitre 1, section 1.3.2.2 (page 28).

Pour rappel, l'indice de Moran est déterminé à partir de la relation :

$$I(r) = \frac{n * \sum_i \sum_j w_{ij} (x_i - \bar{x}) * (x_j - \bar{x})}{S_0 * \sum_i (x_i - \bar{x})^2} \quad (5.1)$$

avec :

- $w_{ij}$  : éléments de la matrice de voisinage  $W_r$  à la distance  $r$ ,
- $x_i$  : composition de l'échantillon  $i$  en constituant clé,
- $\bar{x}$  moyenne de la composition des  $n$  échantillons en constituant clé,
- $S_0 = \sum_i \sum_j w_{ij}$ .
- $n$  : nombre d'échantillons.

Pour chaque taille d'échantillon considérée, les **matrices de voisinage** ont été construites selon la définition la plus simple existante : l'échantillon  $i$  sera considéré voisin avec l'échantillon  $j$  à la distance  $r$ , s'il faut traverser  $r$  frontières pour les joindre.

Les indices de Moran ont été calculés pour des distances allant de  $r=0$  à 10. La figure 5.4 présente l'évolution de l'indice de Moran pour la plaque citée dans l'exemple précédent (voir figure 5.3)

$I(0)=1$ , car tout échantillon est forcément corrélé avec lui même. Les valeurs de l'indice de Moran sont ensuite quasi-nulles pour  $r$  compris entre 0 et 9, les échantillons pour des distances comprises entre 0 et 9 ne présentant aucune corrélation entre eux.

Par contre pour  $r=9$ , une augmentation de l'indice de Moran est observée traduisant une légère corrélation positive. Celle-ci peut être mis en relation avec le fait que les 2

## 5.2 Principe de simulation d'objets 2D contenant des défauts

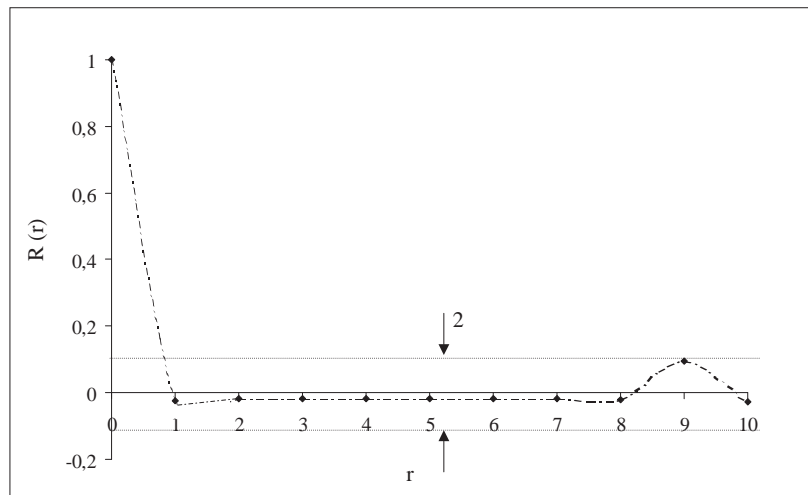


FIGURE 5.4 – Evolution de l'indice de Moran dans le cas d'une plaque avec 2 défauts d'une taille de 4 EU divisée en 100 échantillons (taille échantillons : 36 EU).

échantillons contenant un défaut sur la figure 5.4-b sont séparés par 9 "frontières".

L'intervalle  $2\epsilon$  représente l'intervalle au sein duquel la valeur de  $I(r)$  peut être considérée comme nulle et est déterminé par :

$$\epsilon = \frac{1}{n} \quad (5.2)$$

Avec  $n$  le nombre d'échantillons sur la plaque, ici  $n = 100$  et  $\epsilon = 0,01$ .

Pour pouvoir comparer l'efficacité de l'indice de Moran dans l'évaluation du nombre et de la taille des défauts, nous avons cherché à évaluer l'échelle de ségrégation. Nous avons choisi de l'associer à la longueur spécifique, correspondant à la première valeur  $r_0$  pour laquelle l'indice de Moran peut être considéré comme nul.

L'utilisation de la longueur spécifique évitera de tenir compte des corrélations positives uniquement liées au positionnement aléatoire des défauts sur la plaque. Dans l'exemple de la figure 5.4 deux échantillons à une distance assez éloignée présentent une corrélation positive mais cette corrélation n'est pas significative car elle est aléatoire : la génération d'une nouvelle plaque, avec des défauts positionnés différemment induira une corrélation différente.

### Détermination de $r_0$

Soit  $y(r)$  la régression linéaire entre la dernière valeur au-dessus de la barre d'erreur et la première valeur en dessous de la barre,  $r_0$  vérifie  $y(r_0)=0$ .

Le calcul de l'échelle de ségrégation associée à la figure 5.3-b conduit à la valeur  $r_0=0,9751$ . Cette valeur, inférieure à 1, traduit bien l'absence de corrélation entre les échantillons. La valeur de  $\epsilon$  est ici relativement élevée et de ce fait la détermination de  $r_0$  est peu précise. Une augmentation du nombre d'échantillons (i.e une diminution de leur taille) permet de diminuer la valeur d' $\epsilon$  et d'augmenter la précision dans le calcul de  $r_0$ .

Le programme développé pour cette étude détermine donc à partir des **matrices échantillons** et des **matrices de voisinage**, les valeurs de l'indice de Moran pour des distances  $r$  allant de 0 à 10. Il calcule ensuite la valeur  $r_0$  correspondant à la valeur à partir de laquelle les échantillons voisins à la distance  $r_0$  peuvent être considérés comme indépendants.

La figure 5.5 résume les principaux paramètres entrants ainsi que les matrices générées nécessaires au calcul des paramètres sortant.

## 5.3 Exemples de simulations

### 5.3.1 Influence de la taille des échantillons

Considérons trois plaques bipolaires simulées à partir du programme Matlab<sup>®</sup> contenant chacune 2 défauts de tailles respectives 1 EU pour la première, 4 EU (2\*2) pour la seconde et 9 EU (3\*3) pour la troisième.

La figure 5.6-a présente l'évolution du coefficient de variation en fonction de la taille des échantillons. On peut remarquer qu'une augmentation de la taille des échantillons (i.e l'échelle d'observation) implique une diminution du coefficient de variation. En effet plus un objet est regardé de loin, moins les imperfections de celui-ci sont visibles.

La diminution du CV observée n'est cependant pas linéaire : lorsque la taille des échantillons est supérieure à la taille des défauts, l'échelle d'observation n'influence que très peu le coefficient de variation. Ainsi réduire la taille des échantillons augmentera la visibilité des défauts sur une plaque seulement si la taille des échantillons est inférieure ou égale à

### 5.3 Exemples de simulations

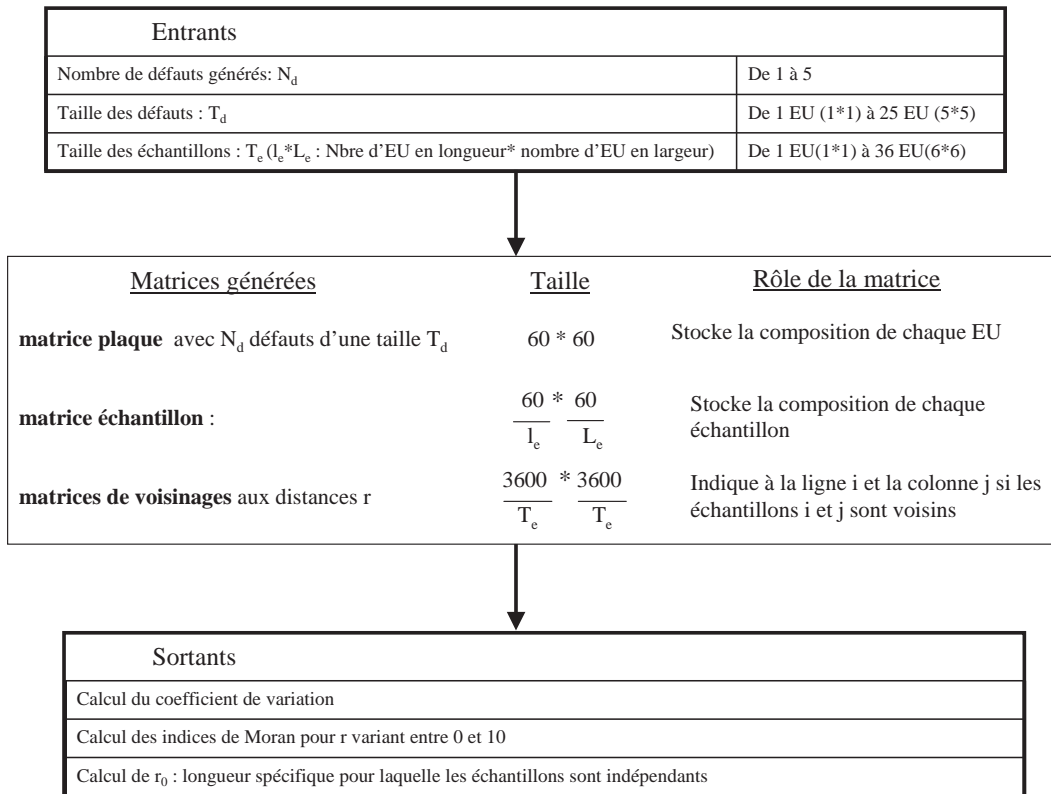


FIGURE 5.5 – Principaux paramètres entrants et sortant du programme développé sous Matlab®.

celle des imperfections que l'on souhaite visualiser.

Les indices de Moran ont été calculés pour les 3 plaques considérées dans cet exemple et les longueurs spécifiques  $r_0$  ont été extraites pour des tailles d'échantillons croissantes à partir de 1 EU (voir figure 5.6-b). Lorsque la taille des échantillons augmente, on observe une diminution de  $r_0$  jusqu'à une valeur proche de 1 indiquant une absence de corrélation entre les échantillons.

Pour des défauts d'une taille de 1 EU, cette valeur est obtenue quelle que soit la taille des échantillons. Dans ce cas, en effet la taille des défauts est toujours inférieure ou égale à la taille des échantillons. Les échantillons ne présentent donc plus de corrélation entre eux dès que  $r \geq 1$ .

Pour des défauts dont la taille est égale à 4 EU, l'absence de corrélation est atteinte pour une taille d'échantillon de 36 EU, alors que pour des défauts d'une taille de 9 EU, elle est atteinte pour une taille d'échantillon de 25 EU. Ce résultat, quelque peu surprenant, doit être mis en relation avec la manière dont est réalisé le découpage des échantillons.

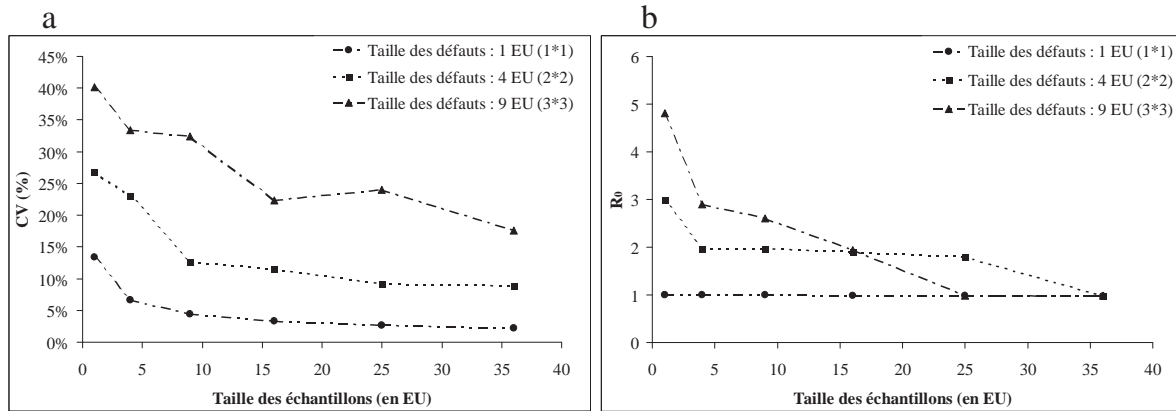


FIGURE 5.6 – Évolution du coefficient de variation (a) et de la longueur spécifique ( $r_0$ ) en fonction de la taille des échantillons pour des défauts de différentes tailles.

La figure 5.7 montre les deux plaques avec des défauts d’une taille de 4 EU (5.7-a) et 9 EU(5.7-b) utilisées pour la détermination du CV et du  $r_0$  dans les figures 5.6).

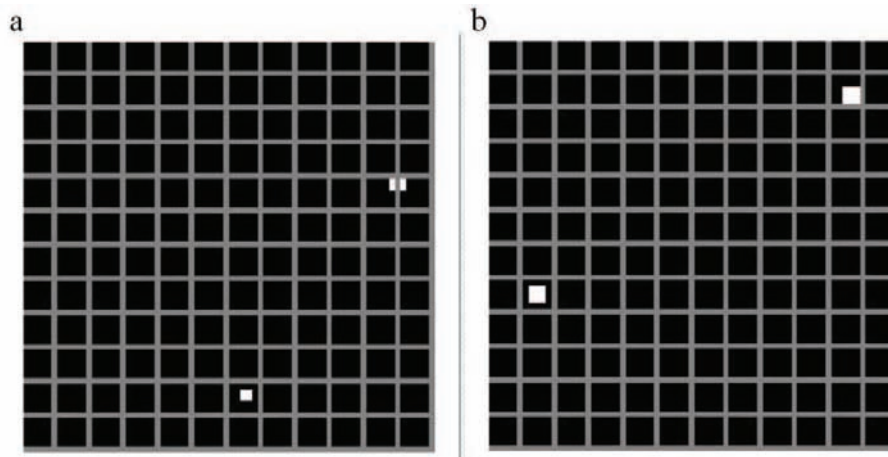


FIGURE 5.7 – Plaques composites avec 2 défauts d’une tailles de 4 EU (2\*2) (a) et de 9 EU (3\*3). La taille d’échantillons considérée est égale à 25 EU (5\*5).

Sur ces figures, la taille d’échantillon considérée est de 25 EU, soit dans les deux cas une taille d’échantillon plus grande que la taille des défauts. Sur la figure 5.7-a, on remarque qu’un défaut d’une taille de 4 EU est coupé en deux lors de l’échantillonnage. Les échantillons associés à ce défaut présenteront donc une corrélation positive expliquant ainsi la valeur de  $r_0 > 1$  obtenue pour la taille d’échantillon de 25 EU.

Par contre, sur la figure 5.7-b, les 2 défauts se trouvent à l’intérieur d’un échantillon, la valeur de  $r_0$  est donc inférieure ou égale à 1.

#### 5.3.2 Influence de la taille des défauts

Pour étudier l'influence de la taille des défauts, des plaques composites contenant 2 défauts ont été considérées. La taille des échantillons a été fixée à 1 EU, afin de conserver une échelle d'observation supérieure à la taille des défauts.

Les indices de Moran obtenus pour chaque taille de défaut considérée (1, 4, 9 et 16 EU) ont été reportés sur la figure 5.8-a.

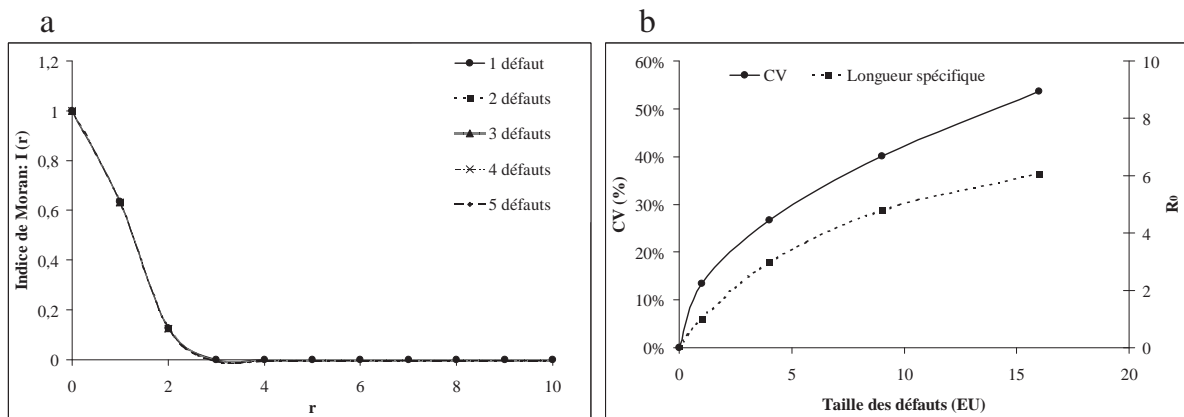


FIGURE 5.8 – Indice de Moran (a) et évolution du CV et de la longueur spécifique ( $r_0$ ) (b) pour des plaques simulées contenant 2 défauts de différentes tailles, pour une taille d'échantillon de 1 EU.

Les autocorrélogrammes sont parfaitement distincts. La taille des défauts est donc fortement liée à une corrélation positive entre les échantillons. Ce résultat n'est pas surprenant car lorsqu'il existe un défaut dont la taille est supérieure à l'échelle d'observation, les échantillons dans les voisinages très proches ont des compositions voisines.

La figure 5.8-b présente l'évolution des coefficients de variation et des longueurs spécifiques en fonction de la taille des défauts.

Une augmentation de la taille des défauts implique à la fois une augmentation du CV et de  $r_0$ . Il est intéressant de remarquer que ces deux courbes semblent parallèles traduisant le fait qu'une augmentation de la taille des défauts a le même impact sur l'intensité que sur l'échelle de ségrégation.

Ainsi en se basant sur ces courbes, à partir de la valeur du CV et de  $r_0$ , il semble possible de donner une estimation globale de la taille des imperfections présentes sur la plaque.

**Remarque :** Si l'on considère des défauts d'une taille de 4 EU avec une taille d'échantillon égale à 1 EU, on pourrait s'attendre à obtenir, en toute logique une longueur spécifique  $r_0$  à peu près égale à 4, puisque nous avons 4 échantillons corrélés entre eux. Sur la figure 5.8-b, La valeur obtenue est en réalité plus faible et proche de 3. Il en va de même pour les autres valeurs de  $r_0$  obtenues pour les différentes tailles de défauts. La relation entre le nombre d'échantillons corrélés et la longueur spécifique n'est pas proportionnelle.

### 5.3.3 Influence du nombre de défauts

La taille des défauts a été fixée dans cet exemple à 4 EU (2\*2) et le nombre de défauts générés sur les plaques composites simulées a varié entre 1 et 5. Comme dans le paragraphe précédent, les indices de Moran ont été calculés pour une taille d'échantillon de 1 EU (figure 5.9-a). Les variations des CV et des longueurs spécifiques ont également été représentées sur la figure 5.9-b.

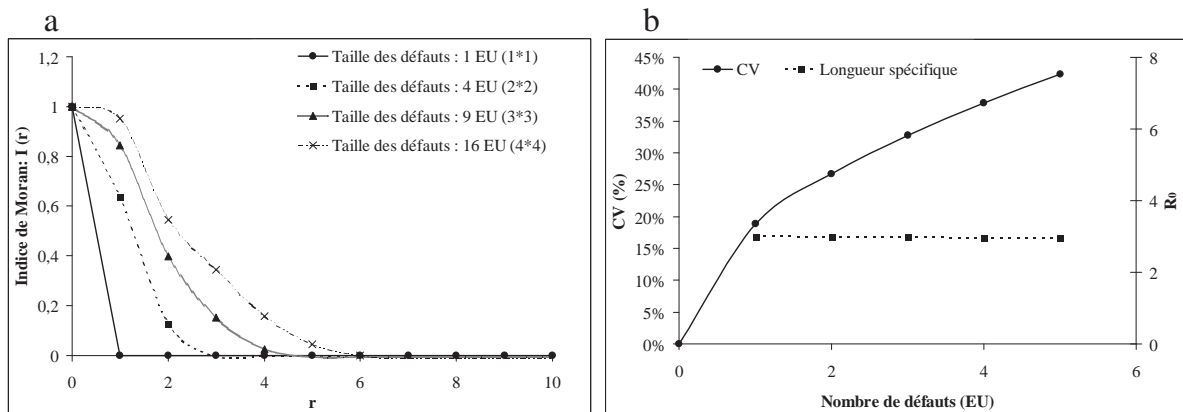


FIGURE 5.9 – Indice de Moran (a) et évolution du CV et de la longueur spécifique ( $r_0$ ) (b) en fonction du nombre de défauts (taille des défauts : 4EU).

Sur la figure 5.9-a, les correlogrammes associés aux indices de Moran se superposent et la valeurs de longueurs spécifiques semblent quasi-identiques. Cependant en comparant plus finement les valeurs obtenues (cf tableau 5.1), une très légère mais systématique diminution est observée. Celle-ci est peut être due au fait que lorsque le nombre de défauts augmentent sur la plaque, ils peuvent être vus comme un motif faisant intégralement partie de la plaque plus que comme une simple occurrence liée à une imperfection.

Par contre sur la figure 5.9-b, on remarque qu'une augmentation du nombre de défauts implique une augmentation très nette du coefficient de variation. En effet, lorsque

## 5.4 Quelques pistes pour l'application à un cas réel

---

Tableau 5.1 – Longueurs spécifiques obtenues pour des nombres de défauts allant de 1 à 5. La taille d'un défaut étant égale à 4 EU.

Nombre de défauts	Longueur spécifique
1	2,99
2	2,98
3	2,97
4	2,96
5	2,95

le nombre de défauts augmentent, de plus en plus d'échantillons présentent de fortes variations de composition et le CV qui traduit l'écart entre ces composition est de ce fait plus élevé.

## 5.4 Quelques pistes pour l'application de cette méthodologie à un cas réel

Dans le cadre du projet Mascotte, un batch de poudre composite mélangé en Turbula T 50 A, permettra la production d'un lot d'environ 250 plaques composites. Les tests préliminaires réalisés ont mis en évidence que les amas de polymères étaient répartis de manière homogène au sein du mélange. Il est donc possible d'envisager la réalisation de quelques plaques tests (environ 5) qui seront analysées grâce à la méthodologie présentée dans ce chapitre. Une réflexion devra bien sûr porter sur la localisation des volumes de poudre utilisés pour la réalisation de ces plaques, en accord avec les théories d'échantillonnage présentées dans le chapitre 1.

Il sera également nécessaire de définir la taille maximale admissible des amas de polymère. Celle-ci pourra être déterminée comme la taille au-delà de laquelle ces amas modifient les propriétés thermiques, électriques et mécaniques des plaques produites. Cette taille définira l'échelle d'observation, et donc la taille des échantillons.

Les plaques composites formées pourront alors être découpées en échantillons, et tous les échantillons analysés selon la méthode d'analyse développée au chapitre 2 (combustion de la matrice, figure 2.20, page 112). Le CV, les indices de Moran et la valeurs de  $r_0$



pourront ensuite être calculés.

Une valeur de  $r_0 > 1$ , traduira la présence de défauts au sein de la plaque, plus cette valeur sera élevée, plus la taille des défauts sera importante par rapport à la taille maximale admissible. Le coefficient de variation, associé à la valeur de  $r_0$  permettra d'estimer le nombre de défauts sur la plaque.

En se basant sur la figure 5.8, nous pouvons estimer, à titre d'exemple, que pour une valeur de  $r_0$  aux alentours de 3 (défauts de taille moyenne), une valeur de CV entre 15 et 20%, traduira un faible nombre de défauts sur la plaque (entre 1 et 2) et une valeur au-delà de 45%, un nombre beaucoup plus élevé (plus de 5 défauts sur une plaque).

Les valeurs obtenues sont aussi dépendantes de nombreux autres paramètres, comme l'état du mélange en dehors des défauts, que nous avons supposé ici parfaitement homogène, ce qui ne sera très probablement pas le cas pour un mélange réel. Les chiffres présentés ici ont uniquement pour vocation de montrer qu'il nous semble possible de lier le nombre et la taille des défauts, dans un cas industriel, à l'intensité et l'échelle de ségrégation. La création de tables de corrélation plus précises entre la valeur des CV et des  $r_0$ , en s'appuyant à la fois sur cette étude et un travail expérimental pourrait également être envisagée.

## 5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté un développement méthodologique s'appuyant sur la détermination de l'intensité de ségrégation (reliée au coefficient de variation) et de l'échelle de ségrégation (associée à la longueur spécifique  $r_0$ ) à partir d'un outil de corrélation spatiale : l'indice de Moran.

Grâce à des exemples de simulations des plaques composites contenant des défauts, nous avons mis en évidence qu'une augmentation de l'échelle de ségrégation conduisait à une diminution du CV et de la longueur spécifique, jusqu'à ce que la taille des échantillons soit supérieure à celle des défauts que l'on souhaite identifier. De plus, la manière dont est réalisée le découpage de la plaque en échantillons a également un impact sur la valeur de  $r_0$ .

Nous avons également montré qu'une augmentation de la taille des défauts conduisait à une augmentation simultanée de la valeur du CV et de  $r_0$  suivant des profils quasi-

## 5.5 Conclusion

---

similaires. Au contraire, une augmentation du nombre de défauts engendrait peu de variation de la valeur de la longueur spécifique mais une nette augmentation du coefficient de variation.

Ainsi, si l'échelle de ségrégation est fortement liée à la taille des défauts, la connaissance de l'intensité de ségrégation est également nécessaire pour pouvoir évaluer leur nombre.

Il serait également souhaitable de réaliser des simulations complémentaires où le nombre de défauts et leurs tailles varient simultanément afin d'éprouver la robustesse de cette méthodologie.

L'autocorrélation spatiale utilisée dans les domaines médicaux pour suivre des phénomènes épidémiologiques et détecter des tumeurs, ou en criminalité pour identifier des zones à risque, n'avait jamais à notre connaissance été utilisée pour identifier des défauts au sein de mélange (poudre ou liquide) ou de matériaux.

Son utilisation dans ces domaines ouvre le champ à de nombreuses perspectives. En effet, ces dernières années, l'analyse d'image a souvent suppléé les calculs de corrélations pour étudier les imperfections à la surface des matériaux. Cependant ces techniques possèdent leurs limites car elles ne permettent pas l'identification des défauts à l'intérieur même du matériau et donc non visible par analyse d'image.

Au contraire l'indice de Moran, calculé à partir des compositions volumiques des échantillons d'un matériau apporte des informations sur les variations de structure de ce matériau



# Conclusion générale

Le cœur de ces travaux a consisté en une l'étude de la dynamique de mélange au sein de mélangeurs Turbula<sup>®</sup> de différentes tailles en s'appuyant à la fois sur une modélisation du mouvement des mélangeurs et un travail expérimental portant sur l'analyse de la cinétique de mélange de plusieurs systèmes particuliers aux propriétés d'écoulement différentes.

Une synthèse bibliographique nous a permis de montrer que la dynamique du mélange des poudres est très peu connue à part pour des dispositifs très simples comme les mélangeurs à tambour rotatif. Nous avons également mis en évidence le manque d'outils et de lois pouvant être utilisés pour réaliser l'extrapolation des mélangeurs.

Nous avons ensuite caractérisé les différents constituants des mélanges utilisés dans ces travaux et mis en place des protocoles expérimentaux pour analyser l'homogénéité de chacun des mélanges réalisés.

À partir de simulations Solidworks<sup>®</sup>, nous avons décomposé le mouvement du mélangeur Turbula<sup>®</sup> ce qui nous a permis de définir, en lien avec les régimes d'écoulement au sein des tambours rotatifs, 3 régimes de fonctionnement basés sur le calcul du nombre de Froude : un régime de roulement ou d'avalanche, un régime de cataracte et un régime collisionnel. Nous avons ensuite identifié, grâce à l'étude de cinétiques de mélange et aux calculs des coefficients d'autocorrélation lorsque cela était possible, les principaux mécanismes de mélange et de ségrégation que pouvaient subir les produits au sein de la cuve du mélangeur pour chacun de ces régimes.

Ainsi nous avons montré que pour les produits à écoulement libre, différents types de ségrégation peuvent apparaître selon les régimes : le régime de roulement/avalanche peut engendrer des mécanismes de ségrégation par roulement sur les parois du mélangeur, celui de cataracte des mécanismes de ségrégation par trajectoire et enfin des mécanismes de

ségrégation par percolation des fines pourront apparaître au sein du régime collisionnel. Ce régime conduit d'ailleurs pour ce type de produit à une qualité de mélange inférieure.

Pour les produits plus cohésifs, l'existence des forces interparticulaires limitent les phénomènes de ségrégation. Pour les faibles vitesses de rotation (régime de roulement/avalanche et cataracte), les mécanismes de diffusion sont peu performants car l'énergie apportée par le mélangeur n'est pas suffisante pour briser les forces interparticulaires. Par contre, les plus fortes vitesses, permettent d'obtenir un mélange beaucoup plus intime grâce à la présence d'un important cisaillement permettant de désolidariser les blocs de particules, et augmentant ainsi l'efficacité des mécanismes de diffusion.

Dans un deuxième temps nous avons également recherché, sur la base du principe des similitudes, des critères permettant d'ajuster les variables opératoires des mélangeurs afin de conserver une qualité de mélange similaire lors du changement d'échelle. Après avoir validé le fait que les mélangeurs respectent des similitudes géométriques, nous avons défini un critère cinématique et un critère dynamique, puis nous avons testé leur efficacité pour prédire la qualité du mélange lors du passage d'une taille de mélangeur à l'autre.

Nous avons montré que l'extrapolation basée sur un critère dynamique est préférable car elle conduit à l'obtention de mélanges de qualité plus proche. Toutefois, il semblerait qu'un autre facteur, probablement lié au taux de remplissage, soit également à prendre en compte pour obtenir une adéquation parfaite en terme de qualité de mélange entre les résultats obtenus à l'échelle laboratoire, pilote et industrielle.

Ce travail s'est déroulé dans le cadre du projet ANR MaSCoTE dont l'objectif était de concevoir un procédé permettant l'obtention d'un nouveau type de plaques bipolaires composites. L'étude de la dynamique des mélange a permis de définir les conditions optimales pour la réalisation d'un mélange. Nous avons ainsi montré qu'en mélangeant les produits à  $16 \text{ tr.min}^{-1}$ , pendant un temps de mélange d'une 1 minute dans le mélangeur T 50A, la qualité des mélange est satisfaisante au regard des exigences du cahier des charges. Nous avons également montré qu'en travaillant à la plus forte vitesse dans ce mélangeur, soit  $40 \text{ tr.min}^{-1}$  pendant un temps suffisamment long (7,5 min), il était possible d'obtenir un mélange beaucoup plus intime.

Cependant même pour ces mélanges intimes, la présence de défauts (amas de résine) a été remarquée. La dernière partie de ce travail a donc été consacrée à un développement méthodologique permettant de détecter ces amas au sein des plaques bipolaires compo-

sites en adaptant -à ce cas particulier- les concepts utilisés pour quantifier l'homogénéité d'un mélange de poudre. Nous avons mis en évidence qu'à partir de la composition des échantillons, il était possible d'estimer de manière globale le nombre et la taille de défauts présents au sein d'une plaque manufacturée. Cette méthodologie pourra trouver un point d'application chez nos partenaires industriels dans le cadre d'une démarche qualité.

Afin d'enrichir ce travail, plusieurs pistes restent encore à explorer :

- Élargir l'étude à d'autres systèmes particulières. Certains pourront être beaucoup plus cohésifs et d'autre au contraire avoir un écoulement encore plus fluide que le mélange lactose1/semoule.
- Valider les hypothèses formulées concernant la dynamique des mélanges en confrontant les résultats expérimentaux avec ceux obtenus lors de simulations de mouvement de particule par la méthode des éléments discrets (DEM) à la fois sur des produits à écoulement libre et des produits cohésifs. Le développement de nouveaux modèles DEM sera sans doute nécessaire car les modèles actuels sont peu adaptés aux produits cohésifs. La réalisation de simulation dans des mélangeurs de différentes tailles permettrait également de confirmer les observations réalisées lors de l'extrapolation des mélangeurs.
- Dans ces travaux, nous avons utilisé, pour chaque mélangeur, les cuves de tailles maximales. Pour étudier l'influence des similitudes géométriques dans les facteurs d'extrapolation, il serait enrichissant de réaliser des essais dans les cuves de tailles intermédiaires.
- L'influence du taux de remplissage dans les relations d'extrapolation reste également à confirmer. On peut envisager la définition d'un nombre adimensionnel tenant compte, du taux de remplissage, de la surface libre, et du volume du mélangeur. Des essais expérimentaux permettant alors de tester ce nombre adimensionnel pourront également être programmés.
- L'aspect énergétique n'a pas été abordé dans les critères d'extrapolation définis. Le calcul du nombre de puissance nécessite la connaissance de la puissance effective reçue par le produit. Il serait donc intéressant de pouvoir mesurer le couple lors du

mélange de différents produits et de le relier à l'indice de Carr des poudres. Sur le mélangeur, il n'est aujourd'hui pas possible de placer un couplemètre lors de son fonctionnement, une réflexion est donc à mener pour pouvoir avoir accès à cette donnée.

Sur la base de l'ensemble de ces éléments on pourra alors imaginer la réalisation d'un diagramme tridimensionnel cartographiant les différents régimes en fonction du nombre de Froude, du nombre de puissance et d'un nombre adimensionnel intégrant le taux de remplissage, la taille du mélangeur et la taille des particules.

Enfin la méthodologie proposée ici, pourra être étendue à d'autres types de mélangeurs à cuve tournante dans le but de définir des lois générales d'extrapolation.

# Annexe A

## Introduction au fonctionnement des piles à combustible

Une pile à combustible est avant tout une pile c'est à dire un dispositif qui permet la transformation de l'énergie chimique en énergie électrique via des réactions d'oxydoréduction. Le terme combustible, par abus de langage, fait référence à la nature d'un des réactifs (le dihydrogène ou le méthanol) qui au contact du dioxygène ou de l'air (analogie au comburant des réactions de combustion) produit de l'énergie.

### A.1 Les différents types de pile à combustibles

Il existe différents types de pile qui se distinguent par la nature de leur électrolyte, de leur combustible et comburant, et par leurs domaines d'application. Le tableau A.1 les principaux types de piles à combustibles disponibles actuellement sur le marché ou à l'état de recherche.

Dans le cadre du projet MaSCoTe, les plaques bipolaires manufacturées sont destinées aux piles PEMFC qui fonctionnent à partir de dihydrogène et de dioxygène selon le mode inverse de l'électrolyse de l'eau.



Type de pile	Electrolyte	Température de fonctionnement	Domaine d'application
<u>AFC</u> : Alkaline Fuel Cell	Potasse (liquide)	50 à 250 ° C	Gamme de 1 à 100 kW : Espace et transport
<u>PEMFC</u> : Proton Exchange Membrane Fuel Cell	Polymère solide	60 à 90 ° C	Gamme de 1 W à 1 MW : portable, transport et stationnaire
<u>DMFC</u> : Direct Methanol Fuel Cell	Polymère solide	60 à 90 ° C	Gamme de 1 W à 1 MW : Portable, transport et stationnaire
<u>PAFC</u> : Phosphoric Acid Fuel Cell	Acide phosphorique (liquide)	160 à 220 ° C	Gamme de 200 KW à 10 MW : stationnaire et transport
<u>MCFC</u> : Molten carbonate Fuel Cell	Sels fondus (liquide)	650° C	Gamme de 500 kW à 10 MW : stationnaire
<u>SOFC</u> : Solid Oxide Fuel Cell	Céramique solide	750 à 1050 ° C	Gamme de 1 kW à 10 MW : stationnaire et transport

Tableau A.1 – Les différents types de piles à combustible, d’après Darkrim-Lamari and Malbrunot et Mosdale.

## A.2 Réactions d’oxydoréduction

Dans le cas des piles à combustibles PEMFC, les demi-équations électroniques correspondant aux réactions à l’anode et à la cathode sont :

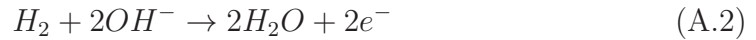
- Oxydation de l’hydrogène à l’anode :

– pour un électrolyte acide :



## A.2 Réactions d'oxydoréduction

– pour un électrolyte alcalin



• Réduction de l'oxygène à la cathode :

– pour un électrolyte acide :



– pour un électrolyte alcalin :



Ainsi le bilan de la réaction est :

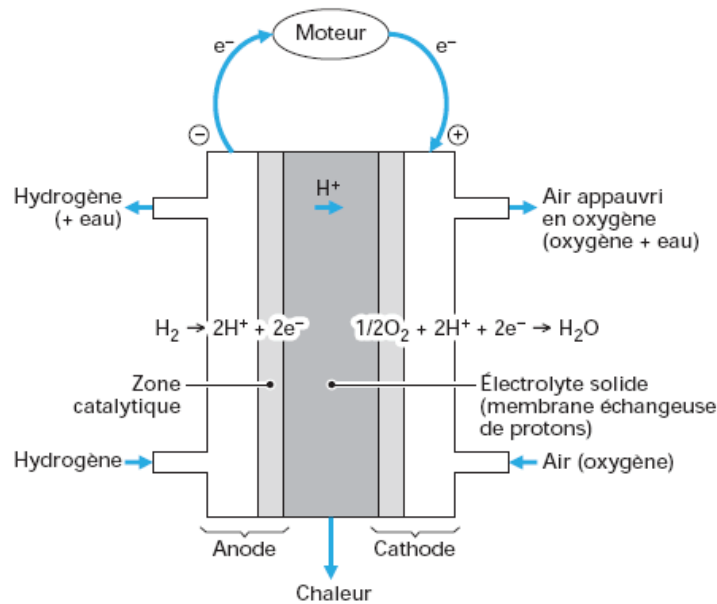
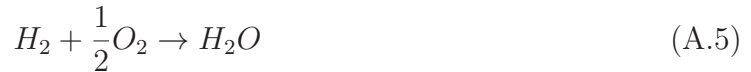


FIGURE A.1 – Principe de fonctionnement d'une pile à polymère acide Darkrim-Lamari and Malbrunot.

La production d'électricité a lieu en continue tant que l'apport en gaz est suffisant. L'alimentation en oxygène n'engendre pas de difficulté particulière, par contre celle en dihydrogène peut s'avérer plus problématique. Le dihydrogène étant un gaz extrêmement inflammable et explosif, sa production, son transport et son stockage sont délicat.

### A.3 Production du dihydrogène

Le dihydrogène n'est pas une source primaire d'énergie. L'impact écologique de son utilisation dépend complètement de son mode de production, qui est à la fois consommateur de matière première et d'énergie, et générateur de pollution et de gaz à effet de serre.

Aujourd'hui 3 types de technologies existent pour produire du dihydrogène :

**Les technologies basées sur l'utilisation des énergies fossiles** : tel que le vapo-réformage du gaz naturel, le réformage autotherme, ou la gasification du charbon. Ces technologies génèrent plus de 90 % de la production mondiale en dihydrogène. Cependant elle ne peut constituer une solution à long terme au vu de la durée de vie limitée de ces carburants. De plus elle engendre une production de gaz à effet de serre.

**Les technologies basées sur l'utilisation de la biomasse** : comme le reformage de la biomasse. Le dihydrogène provient alors de l'utilisation des gaz de méthanisation issu de la biomasse. Cette technologie est restée encore à l'état de recherche.

**Les technologies basées sur l'électrolyse de l'eau** à partir d'électricité provenant d'énergie éolienne, photovoltaïque, ou nucléaire. Il s'agit de la technologie envisagée aujourd'hui pour produire le dihydrogène nécessaire au fonctionnement de piles à combustible industrielles. Dans ce cas de figure, la notion de vecteur énergétique prend tout son sens. La pile doit donc plutôt être considérée comme un dispositif de stockage que comme un générateur d'énergie.

On peut cependant, à juste titre s'interroger sur les rendements énergétiques d'un tel système. Ce rendement est en fait le produit du rendement d'une électrolyse (compris entre 60 et 80 %) et de celui d'une pile à combustible qui peut atteindre 80 à 90 % lorsqu'elle est utilisée en cogénération (Production d'électricité à partir des réactions d'oxydo-réduction et à partir de la chaleur libérée par la réaction). Ce qui conduit à un rendement global compris entre 50 et 75 %. A titre de comparaison, le rendement d'un moteur thermique automobile se situe entre 25 à 30% et celui d'un groupe électrogène excède rarement les 16%.

### A.4 Les plaques bipolaires au sein d'une pile à combustible

Les réactions d'oxydoréduction ont lieu au sein d'une cellule élémentaire constituée de deux électrodes recouvertes d'une couche catalytique (généralement en platine) entre lesquelles est inséré un électrolyte permettant le transfert des charges. Cette ensemble est ensuite introduit entre 2 couches de diffusion (matériau carboné imprégné de Téflon). Afin d'augmenter le rendement énergétique de la pile, les cellules élémentaires sont associées entre elles pour constituer le cœur d'une pile à combustible (stack). Les plaques bipolaires assurent alors la jonction et l'interface entre deux cellules élémentaires. ( Voir figure A.2)

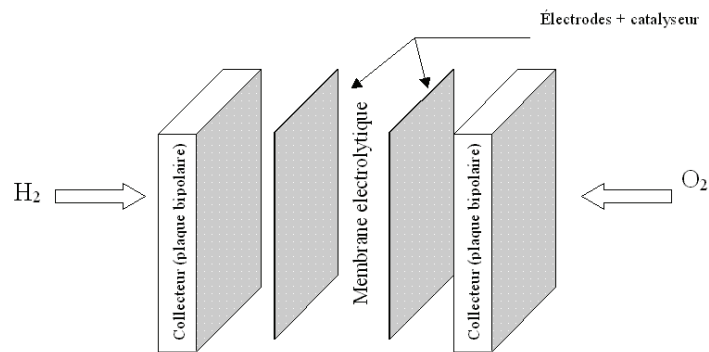


FIGURE A.2 – Architecture d'une monocellule.

D'une épaisseur variant entre 3 mm à 10 mm suivant les puissances fournies, leur rôle est de garantir une bonne tenue mécanique, la séparation des réactions, l'arrivée et la répartition des gaz entrants, les liaisons électriques avec le circuit extérieur. Elles doivent également permettre l'évacuation de l'eau, des gaz non consommés et de chaleur produite lors de la réaction.

De ce fait, elles doivent répondre à un cahier des charges très précis concernant les conductivités thermiques et électriques, les propriétés mécaniques, les stabilités thermiques (entre  $-40$  et  $120^{\circ}\text{C}$ ) et chimiques en milieu acide (afin d'éviter la corrosion).

Le cahier des charges fixe également des contraintes en terme d'imperméabilité aux gaz réactants et d'hydrophobicité. Ce dernier point est essentiel pour permettre l'évacuation de l'eau formée lors de la réaction, le refroidissement du cœur de la pile et l'hydratation

des membranes échangeuses de protons.

Le schéma A.3 présente les différents types de plaques bipolaires actuellement commercialisées ou à l'état de recherche.

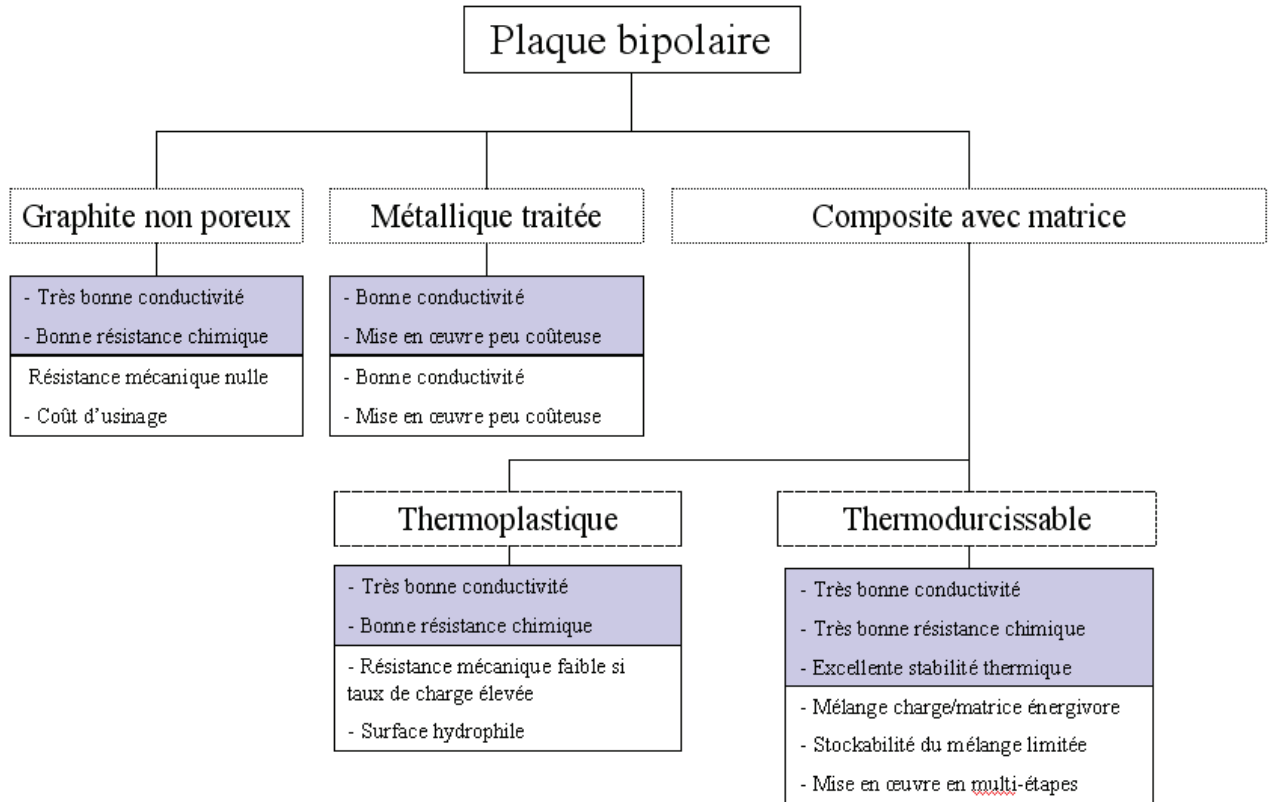


FIGURE A.3 – Les différents types de plaques bipolaires.

# Annexe B

## Aide à la décision pour le choix d'un mélangeur

Le choix d'un mélangeur résulte souvent d'un compromis prenant en compte un certain nombre de paramètres. En voici une liste non-exhaustive :

- La nature des poudres
- La qualité du mélange
- le temps de mélange
- L'action de mélange sur la granulométrie des poudres
- Le dégagement éventuel de poussières
- Les opérations de chargement, vidange et nettoyage
- Les puissances consommées
- L'encombrement
- Les opérations de maintenance et d'usure
- L'investissement

Le tableau B.1 présente les principaux types de mélangeur existant ainsi que leurs avantages et inconvénients.

Type de mélangeurs	Principaux mécanismes de mélange	Avantages/ <i>Inconvénients</i>	Exemples
Mélangeurs à cuve rotative	Convection et diffusion	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Peu d'attrition <math>\Rightarrow</math> utile pour les matériaux friables</li> <li>• <i>Pb de ségrégation au sein du mélangeur</i></li> <li>• <i>Difficulté pour briser des agglomérats</i></li> </ul>	<p>Mélangeur à tambour rotatif</p> <p>Mélangeur à double cône</p> <p>Mélangeur à cône en V</p>
Mélangeurs convectifs	Convection et cisaillement	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Performant avec les matériaux ségrégants ou cohésifs</li> <li>• Obtention rapide d'un bon mélange</li> <li>• <i>Peu adapté pour de faibles productions</i></li> </ul>	<p>Mélangeur à ruban</p> <p>Mélangeur à socs</p>
Mélangeurs à haut-cisaillement	Cisaillement et convection	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Les agglomérats sont brisés</li> <li>• <i>Pb d'échauffements locaux</i></li> <li>• <i>Pb d'attrition</i></li> </ul>	
Mélangeurs statiques	Variable selon l'équipement		<p>Mélangeurs en silos</p> <p>Mélangeur à lit fluidisé</p> <p>Mélangeur en ligne</p>

Tableau B.1 – Tableau récapitulatif des différents types de mélangeurs.

---

- **Fonctionnement en batch et continu**

Lors du choix d'un équipement de mélange de poudre, l'une des premières questions à se poser est de savoir si l'on souhaite un équipement fonctionnant en batch ou en continu.

Dans l'industrie pharmaceutique, les faibles tonnages et les fréquents changements de ligne de production ont conduit à généraliser l'utilisation des mélangeurs batches. Par contre dans l'industrie alimentaire, il est beaucoup plus courant de fonctionner avec des mélangeurs continus. Ces derniers possèdent les avantages suivants :

- De grandes capacités
- Un encombrement et donc un coût réduit
- Capacité de charge et de décharge rapide
- Possibilité d'automatisation

Cependant ils peuvent poser des problèmes de nettoyage et de contamination. De plus il existe encore peu de systèmes pour la réalisation de mélanges multicomposants.

Les mélangeurs statiques peuvent être classés dans la catégorie des mélangeurs en continu. De même, les mélangeurs convectifs sont généralement particulièrement adaptés pour fonctionner en continu. Le recyclage d'une partie du mélange peut également en améliorer les performances.

- **Choisir le mélange en fonction de la nature des poudres et de la qualité souhaitée**

Le mélange résulte d'un équilibre entre des mécanismes de ségrégation et de mélange fonction de différents paramètres tels que les propriétés intrinsèques des poudres, des paramètres ambiants et le type de mélangeur utilisé.

Il faudra donc privilégier un équipement qui permettra soit de briser les forces inter-particulaires au sein d'une poudre fortement cohésive, soit de limiter la ségrégation au sein d'une poudre à écoulement libre.

De même les mécanismes de mélange engendreront un mélange plus ou moins intime. Il est donc important de relier le mélangeur à l'usage du mélange et à l'échelle d'observation de ce dernier.

Enfin le mélangeur choisi doit permettre une grande reproductibilité en terme de qualité pour un mélange de constituant donné.

Le schéma B.1 propose une aide à la décision pour la sélection d'un mélangeur en fonction de la nature des constituants et des exigences du procédé.



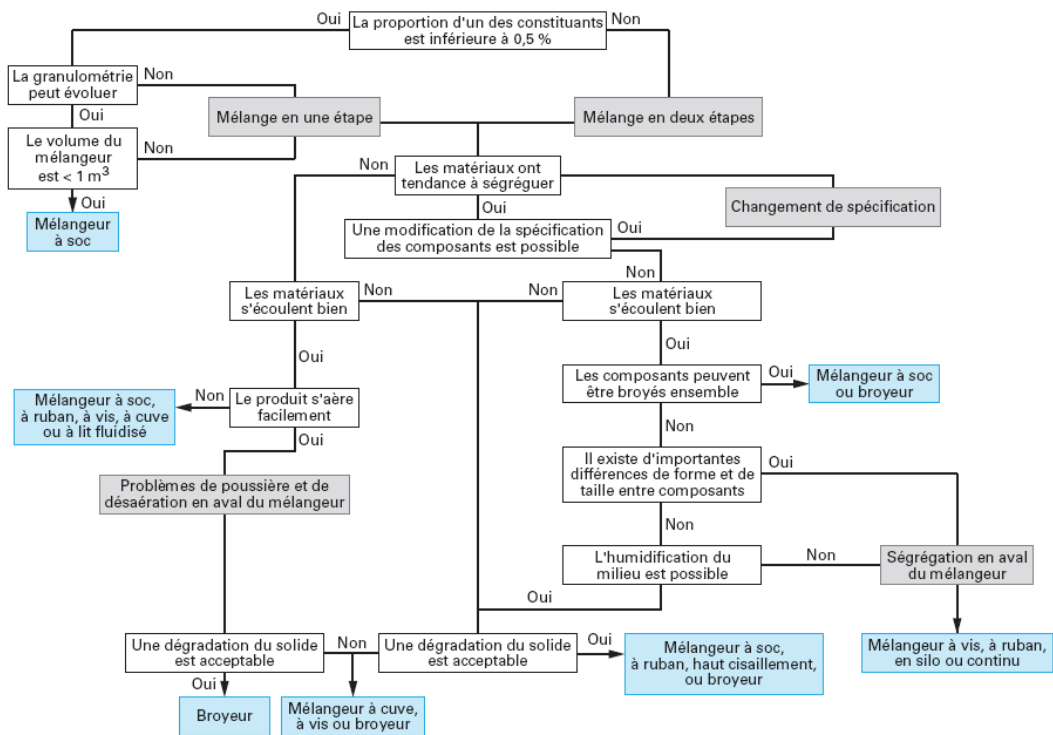


FIGURE B.1 – Organigramme de sélection d'un mélangeur d'après Berthiaux (2002).

## Annexe C

# Distributions granulométriques des constituants des systèmes particulaires

Les figures C.1 à C.3 présentent les distributions granulométriques obtenues pour les différents constituants des mélanges composites et modèles.

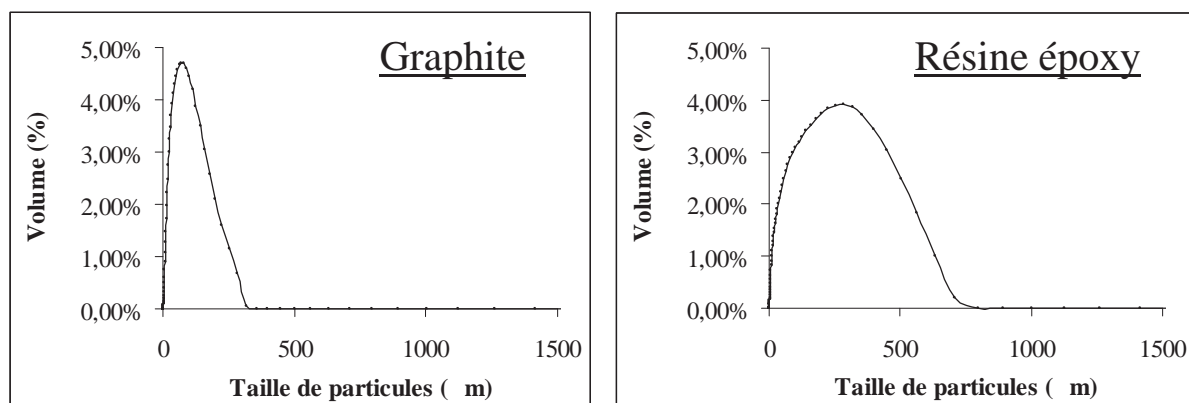


FIGURE C.1 – Distributions granulométriques du graphite et de la résine établies au granulomètre LASER.

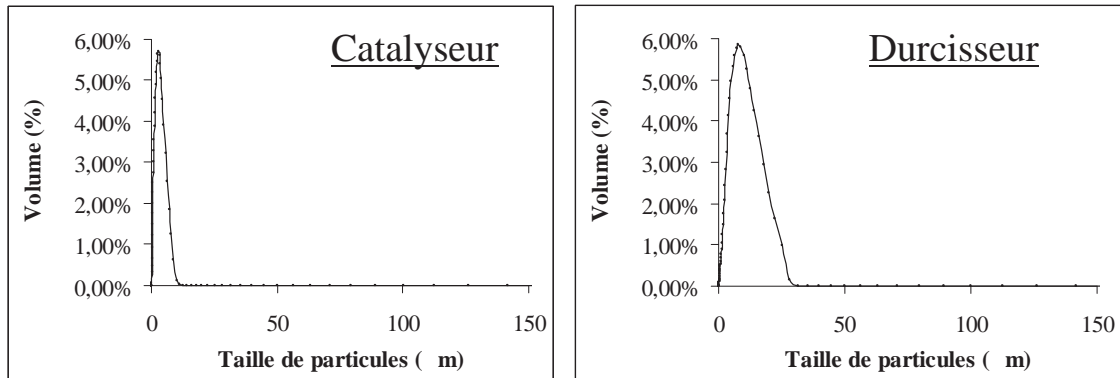


FIGURE C.2 – Distributions granulométriques du catalyseur et du durcisseur établies au granulomètre LASER.

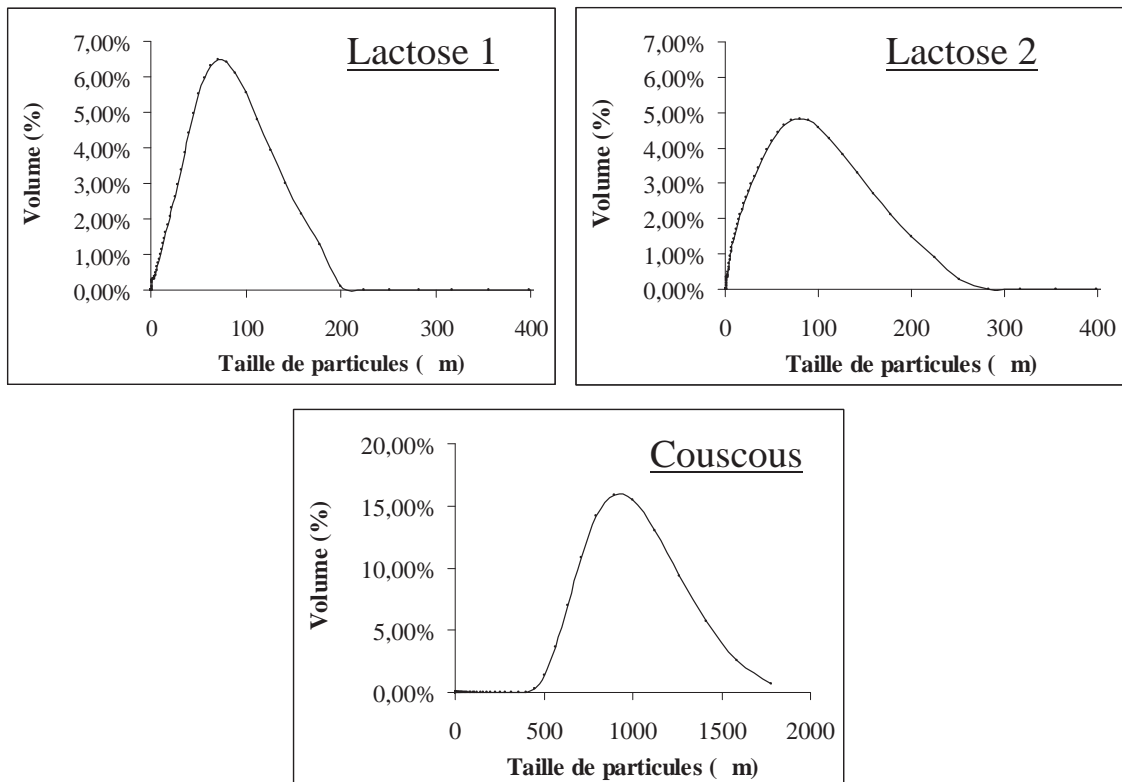


FIGURE C.3 – Distributions granulométriques des lactoses 1 et 2 et du couscous établies au granulomètre LASER.

# Annexe D

## Caractéristiques de la caméra linéaire utilisée

La caméra utilisée pour la méthode d'analyse de l'homogénéité des mélanges modèles est une caméra Lord DVL 5000T. Ses caractéristiques sont résumées dans le tableau D.1

Tableau D.1 – Caractéristiques de la caméra linéaire Lord DVL 5000 T.

Capteur	CCD linéaire de 5000 pixels
Fréquence pixel	20 Mhz
Fréquence ligne	3,8 khz
Monture	objectif standard 24*36 Nikon®
Interface logique	RS232
Sortie vidéo	numérique 16 bits sur RS422
Alimentation	mono-tension à large plage d'entrée (10 VDC à 24 VDC)
Temps d'intégration	réglable par horloge externe
Synchronisation	possible avec plusieurs caméras
Fixation de la caméra	possible sur les 4 faces



# Annexe E

## Résultats DSC obtenus lors de la polymérisation de la matrice époxy

Les figures E.1 et E.2 présentent les courbes DSC ("Differential Scanning Calorimetry") obtenues respectivement lors du premier et deuxième passage du système epoxy (résine époxy + calayseur + durcisseur) pour une vitesse de chauffe de  $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ .

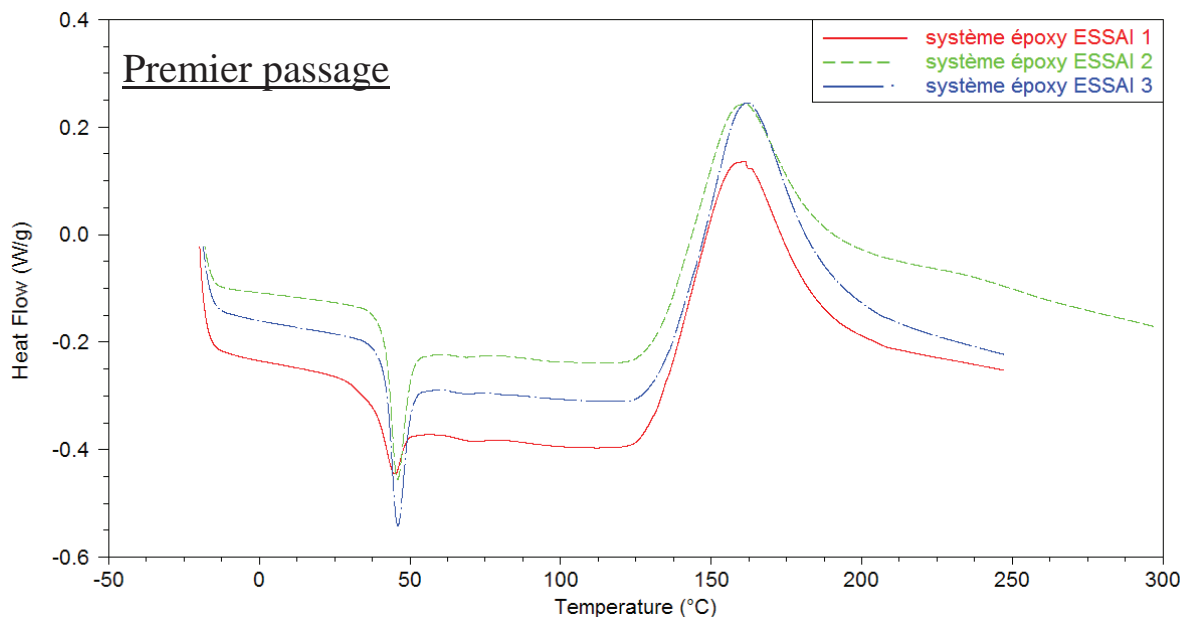


FIGURE E.1 – Courbes DSC obtenues lors du premier passage du système époxy.

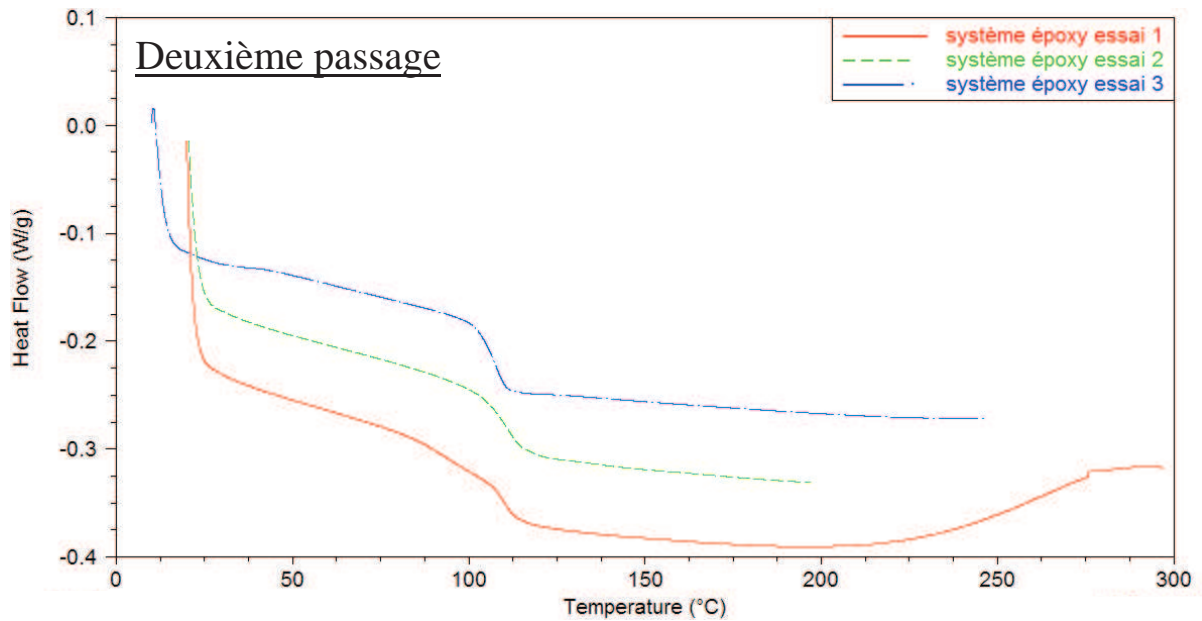


FIGURE E.2 – Courbes DSC obtenues lors du deuxième passage du système époxy.

Le tableau E.1 présente les valeurs de la température de transition vitreuse ( $T_{g0}$ ) et de la température correspondante au pics de polymérisation ( $T_{max}$ ) obtenue pour les 3 essais réalisés.

Tableau E.1 – Températures de transition vitreuse et températures de polymérisation pour les 3 essais DSC réalisés avec le système époxy.

Essai	$T_{g0}$ (° C)	$T_{max}$ (° C)
essai 1	29	159
essai 2	34	162
essai 3	33	160
moyenne	32	≈ 160

# Annexe F

## Dimensions des éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs T 10B et T 50A

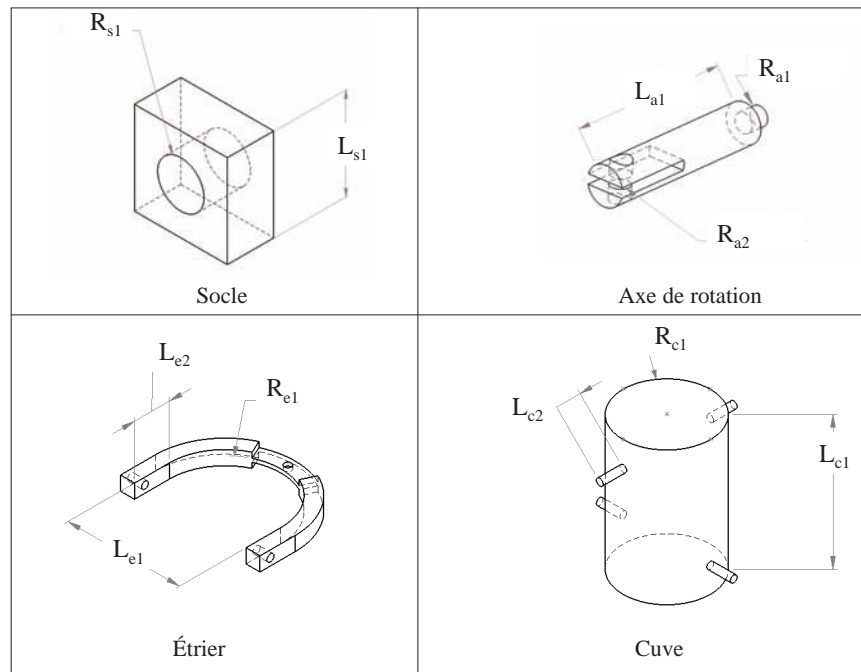


FIGURE F.1 – Abréviation des dimensions des différents éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs Turbula®.



## Dimensions des éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs

Tableau F.1 – Dimensions des différents éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs Turbula®.

	T 10B (en mm)	T 50A (en mm)
socle		
$R_{s1}$	5	5
$L_{s1}$	20	20
axe de rotation		
$R_{a1}$	5	5
$R_{a2}$	5	5
$L_{a1}$	90	290
étrier		
$R_{e1}$	140	199
$L_{e1}$	280	398
$L_{e2}$	85	165
cuve		
$R_{c1}$	126	185
$L_{c1}$	360	565
$L_{c2}$	34,05	34,03

Le tableau F.1 donne les dimensions correspondantes aux éléments de la figure F.1 pour les Turbula T 10B et T 50A.

# Bibliographie

- A. Alexander, T. Shinbrot, and F. J. Muzzio. Scaling surface velocities in rotating cylinders as a function of vessel radius, rotation rate, and particle size. *Powder Technology*, 126(2) :174–190, 2002.
- C. Ammarcha. *Mélange des poudres en continu : modèle dynamique et caractérisation des mélanges en ligne*. PhD thesis, 2010.
- M.D Asthon, C. Schofield, and F.H.H. Valentin. The use of light probe for assessing homogeneity of powder mixtures. *Chemical Engineering Science*, (21) :843–849, 1966.
- M. Aufray. *Caractérisation physico-chimique des interfaces époxyde - amine/oxyde ou hydroxyde métallique et leurs constituants*. PhD thesis, 2005.
- J. Berman, A. Schoeneman, and J.T. Shelton. unit dose sampling : a tale of two thieves. *Drug Dev. Ind. Pharm*, 22(11) :1121–1132, 1996.
- O. Berntsson, G. Zackrisson, and G. Astling. Determination of moisture in hard gelatin capsules using near-infrared spectroscopy : applications to at-line process control of pharmaceuticals. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 15(7) :895–900, April 1997.
- O Berntsson, LG Danielsson, MO Johansson, and S Folestad. Quantitative determination of content in binary powder mixtures using diffuse reflectance near infrared spectrometry and multivariate analysis. *Analytica Chimica Acta*, 419(1) :45–54, August 2000.
- O. Berntsson, L.G. Danielsson, B. Lagerholm, and S. Folestad. Quantitative in-line monitoring of powder blending by near infrared reflection spectroscopy. *Powder Technology*, 123(2-3) :185–193, March 2002.
- H. Berthiaux. Mélange et homogénéisation des solides divisés. *Techniques de l'ingénieur*, 2002.

- D. Bika, G.I. Tardos, S. Panmai, L. Farber, and J. Michaels. Strength and morphology of solid bridges in dry granules of pharmaceutical powders. *Powder Technology*, 150(2) : 104–116, February 2005.
- A.A. Boateng and P.V. Barr. Modelling of particle mixing and segregation in the transverse plane of a rotary kiln. *Chemical Engineering Science*, 51(17) :4167–4181, September 1996. ISSN 0009-2509. doi : 10.1016/0009-2509(96)00250-3.
- G. Boehm. Report on the industry blend uniformity practices survey. in *Pharmaceutical Technology*, August 2001.
- V. Brat. A six-link spatial mechanism. *Journal of Mechanisms*, 4(4) :325–336, 1969.
- J. Bridgwater. Mixing of particles and powders : Where next ? *Particuology*, 8(6) :563–567, December 2010. ISSN 1674-2001.
- E. Buckingham. On physically similar systems ; illustrations of the use of dimensional equations. *Phys Rev NY*, 4 :345–376, 1914.
- R.L. Carr. Particle behaviour storage and flow. *Chemical Engineering Journal*, 15(12), December 1970.
- C. Chatfield. *The analysis of time series : an introduction*. Chapman and Hall, 2009.
- B. Chaudhuri, A. Mehrotra, F. J. Muzzio, and M. Silvina Tomassone. Cohesive effects in powder mixing in a tumbling blender. *Powder Technology*, 165(2) :105–114, 2006.
- P.W. Cleary and M.D. Sinnott. Assessing mixing characteristics of particle-mixing and granulation devices. *Particuology*, 6(6), December 2008.
- A.D. Cliff and J.K. Ord. *Spatial processes : Models and Applications*. Pion, 1981.
- M.C. Coelho and N. Harnby. The effect of humidity on the form of water retention in a powder. *Powder Technology*, 20(2) :197–200, 1978.
- R. Condotta. *Coulabilité des poudres cohésives*. PhD thesis, 2005.
- M.R.T. Dale, P. Dixon, M.J. Fortin, P. Legendre, D.E Myers, and Rosenberg M.S. Conceptual and mathematical relationships among methods for spatial analysis. *Ecography*, 25(5) :558–577, 2002.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- P.V. Danckwerts. The definition measurement and some characteristics of mixtures. *Applied scientific research. Section A*, 3 :279–296, 1952.
- F. Darkrim-Lamari and P. Malbrunot. Combustible hydrogène, utilisation. *Techniques de l'ingénieur*.
- G. Delaplace, L. Bouvier, A. Moreau, R. Guérin, and J.C. Leuliet. Determination of mixing time by colourimetric diagnostic : Application to a new mixing system. *Experiments in fluids*, 36(3) :437–443, 2004.
- G. Delaplace, R. K. Thakur, L. Bouvier, C. André, and C. Torrez. Dimensional analysis for planetary mixer : Mixing time and reynolds numbers. *Chemical Engineering Science*, 62(5) :1442–1447, March 2007. ISSN 0009-2509.
- J.F. Demeyre. *Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitateur en mélangeur triaxe*. PhD thesis, 2007.
- Y. L. Ding, R. N. Forster, J. P. K. Seville, and D. J. Parker. Scaling relationships for rotating drums. *Chemical Engineering Science*, 56(12) :3737–3750, 2001.
- N. Ehrhardt, M. Montagne, H. Berthiaux, B. Dalloz-Dubrujeaud, and C. Gatumel. Assessing the homogeneity of powder mixtures by on-line electrical capacitance. *Chemical Engineering and Processing*, 44(2) :303–313, February 2005.
- E. Emery, J. Oliver, T. Pugsley, J. Sharma, and J. Zhou. Flowability of moist pharmaceutical powders. *Powder Technology*, 189(3) :409–415, February 2009.
- W. Entrop. dd. In *International symposium on mixing. In MONS, coord, D1*, pages 1–14, 1978.
- L.T. Fan and R.H. Wang. On mixing indices. *Powder Technology*, 11 :27–32, 1975.
- L.T. Fan, Y.M Chen, and F.S. Lai. Recent developments in solids mixing. *Powder Technology*, 61(3) :255–287, 1990.
- R. Gosselin, C. Duchesne, and D. Rodrigue. On the characterization of polymer powders mixing dynamics by texture analysis. *Powder Technology*, 183(2) :177–188, April 2008.
- J.B. Gray. *Chem.eng.progr*, (53) :25, 1957.
- Pierre Gy. *L'échantillonnage des lots de matière en vue de leur analyse*. Masson, 1996.

- J. Gyenis. Assessment of mixing mechanism on the basis of concentration pattern. *Chemical Engineering and Processing*, 38(4-6) :665–674, September 1999.
- N. Harnby. *Mixing in the process industries*. Butterworth/Heinemann, 2nd, 1985.
- C. Harwood, R. Davies, M. Jackson, and F. Freman. An optic probe for measuring the mixture composition of powders. *Powder Technology*, (5) :77–80, 1972.
- H.H. Hausner. Friction condition in a mass of metal powder. *Int. J. Powder Metal.*, (3) : 7–13, 1967.
- H. Henein, J. Brimacombe, and A. Watkinson. The modeling of transverse solids motion in rotary kilns. *Metallurgical and Materials Transactions B*, 14 :207–220, 1983. ISSN 1073-5615. doi : 10.1007/BF02661017.
- R. Hogg. Characterization of relative homogeneity in particulate mixtures. *International Journal of Mineral Processing*, 72(1-4) :477–487, September 2003.
- K. Kachrimanis, D.E. Braun, and U.J. Griesser. Quantitative analysis of paracetamol polymorphs in powder mixtures by FT-Raman spectroscopy and PLS regression. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 43(2) :407–412, January 2007.
- P.C Knight, J.P.K Seville, A.B Wellm, and T Instone. Prediction of impeller torque in high shear powder mixers. *Chemical Engineering Science*, 56(15) :4457–4471, August 2001.
- P.M.C. Lacey. Developments in the theory of particle mixing. *J. appl. Chem*, pages 257–268, 1954.
- A. Le Lan. Mélanges de solide. *Techniques de l'ingénieur*, 1983.
- H. L. Langhaar. *Dimensional Analysis and Theory of Models*. Huntington (N. Y.), 1980.
- B.F.C. Laurent. Scaling factors in granular flow : analysis of experimental and simulations results. *Chemical Engineering Science*, 61(13) :4138–4146, July 2006.
- J. Lehmberg, M. Hehl, and K. Schugerl. Transverse mixing and heat transfer in horizontal rotary drum reactors. *Powder Technology*, 18(2) :149–163, November 1977. ISSN 0032-5910. doi : 10.1016/0032-5910(77)80004-1.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- X. Y. Liu, E. Specht, and J. Mellmann. Slumping-rolling transition of granular solids in rotary kilns. *Chemical Engineering Science*, 60(13) :3629–3636, July 2005. ISSN 0009-2509. doi : 10.1016/j.ces.2005.02.020.
- M. Losada Martin, C. Gatumel, and H. Berthiaux. Caractérisation du mélange de poudres cohésives dans un mélangeur à tambour chaotique, le turbula. In *Science et technologie des poudre*, Compiègne, 2004.
- G. Léonard, F. Bertrand, J. Chaouki, and P.M. Gosselin. An experimental investigation of effusivity as an indicator of powder blend uniformity. *Powder Technology*, 181(2) : 149–159, 2008.
- M. Marigo, D.L. Cairns, M. Davies, A. Ingram, and E.H. Stitt. Developing mechanistic understanding of granular behaviour in complex moving geometry using the discrete element method : Part b : Investigation of flow and mixing in the turbula® mixer. *Powder Technology*, 212(1) :17–24, September 2011. ISSN 0032-5910.
- M. Marigo, D.L. Cairns, M. Davies, A. Ingram, and E.H. Stitt. A numerical comparison of mixing efficiencies of solids in a cylindrical vessel subject to a range of motions. *Powder Technology*, 217(0) :540–547, February 2012. ISSN 0032-5910.
- S. Massol-Chaudeur. *Caractérisation de l'état de melanges de poudres, cas de mélanges faiblement dosés*. PhD thesis, 2000.
- S. Massol-Chaudeur, H. Berthiaux, and J.A. Dodds. Experimental study of the mixing kinetics of binary pharmaceutical powder mixtures in a laboratory hoop mixer. *Chemical Engineering Science*, 57(19) :4053–4065, October 2002.
- L. Mathews, S. Chandler, C. and Dipali, P. Adusumilli, S. Lech, S. Daskalakis, and N. Mathis. Monitoring blend uniformity with effusivity. *Pharmaceutical Technology*, pages 80–84, 2002.
- J.J. McCarthy. Turning the corner in segregation. *Powder Technology*, 192(2) :137–142, June 2009. ISSN 0032-5910.
- J.P. Melcion and J.L. Ilari. *Technologie des pulvérulents dans les IAA*. Tec et Doc, 2003.
- J Mellmann. The transverse motion of solids in rotating cylinder : forms of motion and transition behavior. *Powder Technology*, 118(3) :251–270, August 2001. ISSN 0032-5910. doi : 10.1016/S0032-5910(00)00402-2.

- M. Midoux. *Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique*. Technique et Documentation(Lavoisier), 1985.
- R. Mosdale. Piles à combustible appliquées aux véhicules. *Techniques de l'ingénieur*.
- S. Muerza, H. Berthiaux, S. Massol-Chaudeur, and G. Thomas. A dynamic study of static mixing using on-line image analysis. *Powder Technology*, 128(2-3) :195–204, December 2002.
- F. J. Muzzio, C. L. Goodridge, A. Alexander, P. Arratia, H. Yang, O. Sudah, and G. Mergen. Sampling and characterization of pharmaceutical powders and granular blends. *International Journal of Pharmaceutics*, 250(1) :51–64, 2003.
- H. Nakamura, Y. Miyazaki, Y. Sato, T. Iwasaki, and S. Watano. Numerical analysis of similarities of particle behavior in high shear mixer granulators with different vessel sizes. *Advanced Powder Technology*, 20(5) :493–501, September 2009.
- J. Poirier. Estimateurs et tests d'hypothèses. *Techniques de l'ingénieur*, Juillet 1992.
- J. Ramarosan. *Calcination des Sédiments de Dragage Contaminés. Etudes des Propriétés Physico-chimiques*. PhD thesis, 2008.
- A. Realpe and C. Velazquez. Image processing and analysis for determination of concentrations of powder mixtures. *Powder Technology*, 134(3) :193–200, 2003.
- J. Revel. *Etude expérimentale de phénomènes électrostatiques lors de la fluidisation de granulés et de poudres de polyéthylène : charge et neutralisation par injection supersonique d'ions*. PhD thesis, 2003.
- J. Revel, C. Gatumel, J.A Dodds, and J. Taillet. Generation of static electricity during fluidisation of polyethylene and its elimination by air ionisation. *Powder Technology*, 135-136(0) :192–200, October 2003.
- H. E. Rose. A suggested equation relating to the mixing of powders and its application to the study of the performance of certain types of machines. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, pages 37–47, 1959.
- Rumpf. *Pharmaceutical Dosage Forms : Tablets Volume 2*. Marcel Dekker, New York, 1990.
- H. Rumpf. *Agglomeration*. Wiley, New York, 1962.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- K. Saleh and P. Guigon. Caractérisation et analyse des poudres - propriétés comportementales des solides divisés. *Techniques de l'ingénieur*, Mars 2009.
- M. Sato and Yano T. Miyanami, K. *J. Soc. Powder Technol. Jpn.*, (16) :3, 1979.
- P. Schatz. *Rhythmusforschung und Technik*. Verlag Freies Geistesleben, Stuttgart, 1975.
- C. Schofield. Assessing mixtures by autocorrelation. *Transactions of the american institute of chemical engineers*, 48 :T28–T34, 1970.
- E. Ticona. Fuelcell stack graphic e ticona, 2010. URL <https://www.ticona-photos.com/PL/Forms/DispForm.aspx?ID=716>.
- H.J. Venables and J.I. Wells. Powder mixing. *Drug development and industrial Pharmacy*, 27(7) :599–612, 2001.
- J.C. Williams. The segregation of particulate materials. a review. *Powder Technology*, 15 (2) :245–251, 1976.
- K. Wohlhart. Dynamic analysis of the turbula. In *International symposium on gearing and power transmission, Tokyo*, pages 425–430, 1981.
- H. Wu, M. Tawakkul, M. White, and M.A. Khan. Quality-by-Design (QbD) : an integrated multivariate approach for the component quantification in powder blends. *International Journal of Pharmaceutics*, 372(1-2) :39–48, May 2009.
- B. Wunderlich. *Thermal analysis*. Academic press, 1990.
- R.Y. Yang, A.B. Yu, L. McElroy, and J. Bao. Numerical simulation of particle dynamics in different flow regimes in a rotating drum. *Powder Technology*, 188(2) :170–177, December 2008. ISSN 0032-5910. doi : 10.1016/j.powtec.2008.04.081.
- H.C. Yu. Geometrical investigation of a general octahedral linkage and the turbula. *Mechanism and Machine Theory*, 15(6) :463–478, 1980.
- M. Zlokarnik. *Scale-up in chemical engineering*. Wiley-Vch, 2002.





# Liste des figures

1	Document didactique du CEA, à l'attention des jeunes pour expliquer le fonctionnement d'une pile à combustible. . . . .	1
2	Représentation schématique du cœur d'une pile à combustible d'après Ticona (2010). . . . .	2
3	Procédé de fabrication des plaques bipolaires envisagé dans le cadre du projet MaSCoTe. . . . .	3
4	Mélangeurs à cuve tournante de type industriel : mélangeur à tambour rotatif (a), mélangeur à cuve en V (b), mélangeur à double cône (c). . . . .	6
5	Mélangeurs convectifs : mélangeur orbital à double vis (a), mélangeur planétaire Triaxe <sup>®</sup> (b), mélangeur à rubans hélicoïdaux (c). . . . .	7
1.1	Poudre à écoulement libre (gauche) et poudre cohésive (droite). . . . .	12
1.2	Relation entre la tension superficielle théorique des agglomérats en fonction de la taille des particules d'après Rumpf (1962). . . . .	16
1.3	Effet des forces interparticulaires dans le cas de poudres fines : charges électrostatiques et forces de Van der Waals (Rumpf, 1990). . . . .	16
1.4	Pont liquide reliant deux particules sphériques de même diamètre (Condotta, 2005). . . . .	17
1.5	Différentes interactions à l'origine de ponts solides au sein d'un mélange de poudres d'après Bika et al. (2005). . . . .	18
1.6	Facteurs influençant la cohésion du système. . . . .	19
1.7	Les différents types de mélanges. . . . .	20
1.8	Simulation du mélange d'un lot de particules par convection et/ou diffusion d'après Schofield (1970). . . . .	22
1.9	Ségrégation due aux trajectoires (a), par élutriation (b) et par percolation des fines (c). . . . .	24
1.10	Notion d'intensité de ségrégation d'après Danckwerts (1952). . . . .	27

1.11	Deux mélanges de même composition peuvent avoir des structures radicalement différentes d'après Berthiaux (2002).	29
1.12	Diminution de l'échelle de ségrégation à intensité de ségrégation constante (Danckwerts, 1952).	29
1.13	Exemple de découpage en Z échantillons pour le calcul de la fonction d'autocorrélation.	30
1.14	Allure d'un autocorrélogramme.	31
1.15	Représentation d'un mélange découpé en échantillons selon 3 dimensions d'après Schofield (1970).	32
1.16	Représentation d'un mélange découpé en 12 échantillons (a) et matrice de voisinage correspondante à la distance r=1(b).	33
1.17	Courbe de distribution de la variance d'échantillonnage.	36
1.18	Évolution de $\chi_{inf}^2$ et $\chi_{sup}^2$ en fonction du nombre d'échantillons.	37
1.19	Les trois temps d'un prélèvement.	38
1.20	Les différentes lois d'intégration.	39
1.21	Exemple de systèmes industriels de prélèvement en sortie de bande transporteuse (a) et de prélèvement par diviseur rotatif (b) proposé par Forrat-technic.	41
1.22	Sonde optique développée par Asthon et al. (1966).	43
1.23	Fibre optique utilisée par Harwood et al. (1972) pour étudier le mélange des poudres.	43
1.24	Exemple de dispositif expérimental de mesure de l'homogénéité par méthode de réflectance diffuse NIR au sein d'un mélangeur Berntsson et al. (2002).	45
1.25	Schéma de principe de l'analyse des poudres en ligne par la spectroscopie Raman d'après Ammarcha (2010).	46
1.26	Prédiction de la concentration du paracétamol par spectroscopie Raman dans un mélange en utilisant différents algorithmes statistiques d'après Kachrimanis et al. (2007).	47
1.27	Dispositif expérimental de mesure de l'homogénéité par analyse d'image utilisé par Muerza et al. (2002).	47
1.28	Comparaison entre les concentration prédites par analyse d'image suivant le modèles de calibration univariable et l'analyse en composante principale et celles prédites par spectroscopie PIR d'après Realpe and Velazquez (2003).	49
1.29	Schéma du dispositif expérimental utilisé par Demeyre (2007).	49

## LISTE DES FIGURES

---

1.30	Installation expérimentale utilisée par Ehrhardt et al. (2005) . . . . .	51
1.31	Évolution de l'écart-type des mélanges obtenu pour différents temps de mélanges par la mesure de l'effusivité thermique, de la masse volumique tassée et de la spectroscopie UV d'après Léonard et al. (2008). . . . .	53
1.32	Courbe cinétique caractéristique d'un procédé de mélange batch d'après Berthiaux (2002). . . . .	55
1.33	Comparaison de l'évolution de l'écart-type de différents batches en fonction du temps de mélange pour un mélangeur à l'échelle laboratoire et un mélangeur à l'échelle laboratoire et pilote d'après Berntsson et al. (2002). . . . .	57
1.34	Mélangeur à cerceaux(a) et mélangeur Turbula (b) . . . . .	59
1.35	Représentation des constituants au sein des 3 mélangeurs utilisés pour les simulations DEM :(a) remplissage transversal, (b) : remplissage axial d'après Marigo et al. (2012). . . . .	60
1.36	Comparaison des résultats obtenus pour différentes vitesses et différents types de remplissage, pour le mélangeur à tambour horizontal (a), à cerceau( b) et Turbula (c) d'après Marigo et al. (2012). . . . .	61
1.37	Cinétique de mélange obtenue pour un mélange de cellulose micro-cristalline et de sel en mélangeur Turbula <sup>®</sup> par Losada Martin et al. (2004). . . . .	61
1.38	Corrélogrammes obtenus pour deux états de mélange simulés par mécanisme de diffusion "pure"(a) et par mécanisme de convection/cisaillement "pure" (Gyenis, 1999). . . . .	63
1.39	Les différents modes d'écoulement au sein d'un mélangeur à tambour rotatif d'après Mellmann (2001). . . . .	64
1.40	Le demi-angle de la section occupée par le lit de poudre dans un mélangeur à cuve tournante. . . . .	67
1.41	Les différents mode d'écoulement en fonction du nombre de Froude et du taux de remplissage, f, d'après Mellmann (2001) pour un mélangeur à cuve tournante. . . . .	67
1.42	Éléments pour le dimensionnement d'un mélangeur à tambour horizontal d'après Sato and Miyanami (1979). . . . .	70
1.43	Profils de vitesse obtenus dans des mélangeurs à tambour rotatif de rayon 6,3, 9,5, 14,5 et 24,8 cm pour différentes vitesses de rotation d'après Alexander et al. (2002). . . . .	76
1.44	Répartition des composants pour différents temps de mélange au sein d'un mélangeur en V, à l'échelle du laboratoire d'après Cleary and Sinnott (2008). . . . .	77

1.45	Variation de l'indice de mélange dans les différentes tailles de cuve après 3 tours de mélangeur (en V) d'après Cleary and Sinnott (2008). . . . .	78
1.46	Évolution de l'énergie moyenne de collision des particules en fonction de la puissance d'agitation normalisée, pour différentes tailles de mélangeur confirmant l'existence de similitudes dynamiques d'après Nakamura et al. (2009). . . . .	79
2.1	Composition du mélange composite. . . . .	83
2.2	Morphologie des particules de lactose 1 (a) et de lactose 2 (b). . . . .	86
2.3	Morphologie des particules de graphite (a) et de résine (b). . . . .	86
2.4	Morphologie des particules de durcisseur (a) et de catalyseur (b). . . . .	86
2.5	Représentation schématique d'une particule de résine totalement enrobée par des particules plus fines de durcisseur et de catalyseur. . . . .	87
2.6	Fonctions d'écoulement obtenues pour le lactose 1 et 2. . . . .	91
2.7	Fonctions d'écoulement obtenues pour la résine et le graphite. . . . .	91
2.8	Le mélangeur Turbula <sup>®</sup> T 2F. . . . .	93
2.9	Les trois tailles de mélangeur Turbula <sup>®</sup> commercialisées par la société WAB. . . . .	94
2.10	La caméra linéaire utilisée, avec à gauche, une vue générale et à droite, le capteur CDD linéaire (5000 pixels). . . . .	99
2.11	Représentation schématique du dispositif expérimental de mesure de l'homogénéité du mélange par analyse d'image. . . . .	99
2.12	Photo du dispositif expérimental mettant en évidence la formation d'une fine couche de poudre de largeur constante. . . . .	100
2.13	Définition de la taille d'image utilisée pour le traitement des données. . . . .	101
2.14	Droite d'étalonnage liant la proportion de pixel noir à la teneur massique en semoule de l'échantillon analysé. . . . .	102
2.15	Protocole suivi pour l'analyse de la qualité des mélanges modèles. . . . .	104
2.16	Illustration du cahier des charges pour une plaque bipolaire. . . . .	106
2.17	Distribution de la composition des 6000 échantillons simulés pour des CV de 1%, 1,5%, 2% et 2,5 %. Les traits pleins en noirs correspondent aux limites acceptables pour les compositions des échantillons afin obtenir des plaques satisfaisant le cahier des charges. . . . .	108
2.18	Représentation des bornes supérieures et inférieures des intervalles au sein desquelles les CV mesurés ont une probabilité de 95% de s'y trouver, pour des valeurs de $CV_{vraie}$ de 2% et 2,5%. . . . .	109

2.19	Évolution de la perte de masse d'un échantillon de matrice et du graphite en fonction de la température et du temps, pour une pente de 18 ° C par min.	111
2.20	Protocole pour la détermination de la composition des échantillons du mélange composite. . . . .	112
2.21	Dispositif pour le prélèvement d'échantillons pour le mélange composite. . .	113
2.22	Protocole suivi pour l'analyse de la qualité des mélanges composites. . . .	115
2.23	CV obtenus pour 3 tours et 35 tours, à 32 tr.min <sup>-1</sup> . . . . .	115
3.1	Représentation des différents éléments et de leurs principales cotes utilisées pour la modélisation du T 2F. . . . .	119
3.2	Mélangeur T 2F construit sous Solidworks. . . . .	119
3.3	Décomposition du mouvement du Turbula <sup>®</sup> sur une période. . . . .	120
3.4	Positions des points A, B, C , D et E. . . . .	121
3.5	Profils des vitesses et accélérations linéaires pour les points A, B, C, D et E de la cuve du mélangeur T 2F à 22 tr.min <sup>-1</sup> . . . . .	122
3.6	Illustration des directions de mélanges pour un mélange axial et longitudinal.	126
3.7	Vecteurs accélération aux points A, B et D pour les positions présentant des accélérations maximales. . . . .	127
3.8	CV obtenus à 3, 4 et 6 tours pour les vitesses de 22 tr.min <sup>-1</sup> (figure a) et de 32 tr.min <sup>-1</sup> (figure b). . . . .	132
3.9	Cinétique de mélange (mélange modèle 1) en Turbula <sup>®</sup> T 2F pour des nombres de tours inférieurs ou égal à 15. . . . .	133
3.10	Cinétique de mélange (mélange modèle 1) en Turbula <sup>®</sup> T2F pour des nombres de tour supérieurs à 12. . . . .	136
3.11	Cinétique de mélange (mélange modèle 1) en Turbula <sup>®</sup> T10B pour les vitesses 15 tr.min <sup>-1</sup> , 23 tr.min <sup>-1</sup> et 32 tr.min <sup>-1</sup> . . . . .	138
3.12	Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 2F, pour 2 tours aux différentes vitesses. . . . .	140
3.13	Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 2F, pour 6 tours aux différentes vitesses. . . . .	141
3.14	Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 2F, pour 500 tours à 32 tr.min <sup>-1</sup> et 96 tr.min <sup>-1</sup> . . . . .	143
3.15	Fonctions d'autocorrélation obtenues en T 10B, pour 3 tours à 16 tr.min <sup>-1</sup> , 23 tr.min <sup>-1</sup> . . . . .	143

3.16	Fonctions d'autocorrelation obtenues en T 10B, pour 3 tours à 16 tr.min <sup>-1</sup> , 23 tr.min <sup>-1</sup> et 32 tr.min <sup>-1</sup> . . . . .	144
3.17	Cinétique de mélange pour les mélanges composites en Turbula® T2F pour des nombres de tours inférieurs à 35. . . . .	146
3.18	Cinétique de mélange obtenu pour les mélanges composites en Turbula® T 2F pour des nombres de tours compris entre 1 et 15. . . . .	147
3.19	CV obtenus pour des temps de mélange longs, à 32 tr.min <sup>-1</sup> et 96 tr.min <sup>-1</sup> (mélange composite). . . . .	148
3.20	Cinétique de mélange en Turbula® T 10B, à 15 tr.min <sup>-1</sup> et 23 tr.min <sup>-1</sup> . . .	150
3.21	Moyennes mesurées des échantillons prélevés pour différents temps de mé- lange à 22 tr.min <sup>-1</sup> , 32 tr.min <sup>-1</sup> et 96 tr.min <sup>-1</sup> en T 2F (mélange composite).151	151
3.22	Moyennes mesurées des échantillons prélevés pour différents temps de mé- lange à 15 tr.min <sup>-1</sup> , 23 tr.min <sup>-1</sup> en T 10B (mélange composite). . . . .	152
4.1	Détermination du temps optimal de mélange et relation d'Entrop (1978) pour les mélangeur de type Nauta®. . . . .	157
4.2	Évolution de la vitesse maximale au point A avec la vitesse de l'axe moteur pour les différentes tailles de mélangeur. . . . .	159
4.3	Évolution du nombre de Froude au point A avec le carré de la vitesse de l'axe moteur pour les différentes tailles de mélangeur. . . . .	160
4.4	Profil de vitesses et accélérations correspondantes cinématiquement (point de fonctionnement PFC2) dans les trois tailles de mélangeurs. . . . .	165
4.5	Profil des vitesses et accélérations correspondantes dynamiquement (point de fonctionnement PFD3) dans les trois tailles de mélangeurs. . . . .	166
4.6	CV obtenus aux points de fonctionnement cinématiques pour le mélange modèle 1, dans le T 2F et le T 10B après 500 tours. . . . .	168
4.7	CV obtenus aux points de fonctionnement dynamique(1, 2, 3 et 4) pour le mélange modèle 1 dans le T 2F et le T 10B après 500 tours. . . . .	169
4.8	CV obtenus après 500 tours aux points de fonctionnement cinématiques et dynamiques pour le mélange modèle 2 dans le T 2F et le T 50A. . . . .	170
4.9	CV obtenus aux points de fonctionnement cinématiques et dynamiques pour le mélange composite dans le T 2F, le T 10B et le T 50A, à 6 tours. .	172
4.10	CV obtenus aux points de fonctionnement cinématiques et dynamiques pour le mélange composite dans le T 2F, le T 10B et le T 50A, à 12 tours.	173

4.11	Représentation schématique de l'intérieur de la cuve du mélangeur mettant en évidence la position du lit de poudre et la surface libre où les particules peuvent se mouvoir. . . . .	175
5.1	Représentation de deux plaques bipolaires composites. . . . .	180
5.2	Plaque composite découpée en échantillons unitaires. . . . .	181
5.3	Représentation d'une plaque composite obtenue à partir de simulation Matlab® avec deux défauts d'une taille de 4EU (a) et découpage de cette plaque en 100 échantillons d'une taille de 36 EU (b). . . . .	182
5.4	Evolution de l'indice de Moran dans le cas d'une plaque avec 2 défauts d'une taille de 4 EU divisée en 100 échantillons (taille échantillons : 36 EU).185	
5.5	Principaux paramètres entrants et sortant du programme développé sous Matlab®. . . . .	187
5.6	Évolution du coefficient de variation (a) et de la longueur spécifique ( $r_0$ ) en fonction de la taille des échantillons pour des défauts de différentes tailles.188	
5.7	Plaques composites avec 2 défauts d'une tailles de 4 EU (2*2) (a) et de 9 EU (3*3). La taille d'échantillons considérée est égale à 25 EU (5*5). . . . .	188
5.8	Indice de Moran (a) et évolution du CV et de la longueur spécifique ( $r_0$ ) (b) pour des plaques simulées contenant 2 défauts de différentes tailles, pour une taille d'échantillon de 1 EU. . . . .	189
5.9	Indice de Moran (a) et évolution du CV et de la longueur spécifique ( $r_0$ ) (b) en fonction du nombre de défauts (taille des défauts : 4EU). . . . .	190
A.1	Principe de fonctionnement d'une pile à polymère acide Darkrim-Lamari and Malbrunot. . . . .	201
A.2	Architecture d'une monocellule. . . . .	203
A.3	Les différents types de plaques bipolaires. . . . .	204
B.1	Organigramme de sélection d'un mélangeur d'après Berthiaux (2002). . . . .	208
C.1	Distributions granulométriques du graphite et de la résine établies au granulomètre LASER. . . . .	209
C.2	Distributions granulométriques du catalyseur et du durcisseur établies au granulomètre LASER. . . . .	210
C.3	Distributions granulométriques des lactoses 1 et 2 et du couscous établies au granulomètre LASER. . . . .	210



E.1 Courbes DSC obtenues lors du premier passage du système époxy. . . . . 213

E.2 Courbes DSC obtenues lors du deuxième passage du système époxy. . . . . 214

F.1 Abréviation des dimensions des différents éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs Turbula<sup>®</sup>. . . . . 215

# Liste des tableaux

1.1	Principaux nombres adimensionnels utilisés en génie des procédés. . . . .	73
2.1	Différents diamètres caractéristiques de la distribution granulométrique des produits mesurés au granulomètre LASER Mastersizer®. . . . .	83
2.2	Les différentes masses volumiques des constituants. . . . .	85
2.3	Indice de Carr et Rapport d’Hausner pour les différents constituants des mélanges. . . . .	90
2.4	Résumé des principales propriétés des différents constituants. . . . .	92
2.5	Gamme des vitesses standards pour les 3 tailles de mélangeurs étudiées. . .	93
2.6	Masse des constituants pour la réalisation de mélanges modèles dans les différentes tailles de mélangeur Turbula®. . . . .	96
2.7	Masse des constituants pour la réalisation de mélanges composites dans les différentes tailles de mélangeur Turbula®. . . . .	96
2.8	Estimation du nombre de particules dans un échantillon de 0,07g ayant une teneur en graphite de 85%. . . . .	106
2.9	Valeurs des moyennes, écart-types et CV simulées et valeurs réellement obtenues lors de la génération de 6000 échantillons aléatoires selon une loi normale. . . . .	107
2.10	Nombre d’échantillons potentiels de 0,07 g en fonction de la taille du mélangeur utilisé. . . . .	108
3.1	Valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations des points A, B/C, D/E dans le T 2F pour les différentes vitesses de l’axe moteur. . . . .	123
3.2	Valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations des points A, B/C, D/E dans le T 10B pour les différentes vitesses de l’axe moteur. . . . .	124
3.3	Valeurs moyennes et maximales des vitesses et accélérations des points A, B/C, D/E dans le T 50A pour les différentes vitesses de l’axe moteur. . . . .	125

3.4	Évolution du nombre de Froude dans les mélangeurs Turbula® selon la vitesse, $N$ , de l'axe moteur. . . . .	129
3.5	Moyennes et écarts-types des CV pour les différents essais de reproductibilité réalisés en T 2F pour les mélanges modèles. . . . .	131
3.6	Résumé des principales observations réalisées en Turbula® T 2F et T 10B pour les mélanges modèles. . . . .	153
3.7	Résumé des principales observations réalisées en Turbula® T 2F et T 10B pour les mélanges composites. . . . .	153
4.1	Dimensions caractéristiques des Turbula® T 2F, T 10B et T 50A. . . . .	156
4.2	Correspondances des vitesses de l'axe moteur, $N$ , des mélangeurs T 2F, T 10B, T 50A et erreurs associées selon un critère cinématique. . . . .	162
4.3	Correspondances des vitesses de l'axe moteur, $N$ , des mélangeurs T 10B et T 50A et erreurs associées selon un critère cinématique. . . . .	162
4.4	Correspondances des vitesses de l'axe moteur, $N$ , des mélangeurs T 2F, T 10B et T 50A et erreurs associées selon un critère dynamique. . . . .	163
4.5	Correspondances des vitesses de l'axe moteur, $N$ , des mélangeurs T 10B et T 50A et erreurs associées selon un critère dynamique. . . . .	163
4.6	Points de fonctionnement des mélangeurs selon un critère cinématique. . .	164
4.7	Points de fonctionnement des mélangeurs selon un critère dynamique. . . .	165
4.8	Comparaison de CV obtenu pour des temps de mélange longs (300 tours) aux fortes vitesses en T 2F et T 50A. . . . .	174
5.1	Longueurs spécifiques obtenues pour des nombres de défauts allant de 1 à 5. La taille d'un défaut étant égale à 4 EU. . . . .	191
A.1	Les différents types de piles à combustible, d'après Darkrim-Lamari and Malbrunot et Mosdale. . . . .	200
B.1	Tableau récapitulatif des différents types de mélangeurs. . . . .	206
D.1	Caractéristiques de la caméra linéaire Lord DVL 5000 T. . . . .	211
E.1	Températures de transition vitreuse et températures de polymérisation pour les 3 essais DSC réalisés avec le système époxy. . . . .	214
F.1	Dimensions des différents éléments utilisés pour la modélisation des mélangeurs Turbula®. . . . .	216

# Liste des symboles

## Lettres latines

---

$\vec{a}$	vecteur accélération	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-2}]$
$c(r)$	coefficient de Geary à la distance $r$	$[-]$
CV	coefficient de variation	$[\%]$
$D_v$	diamètre de la vis dans les mélangeurs Nauta	$[\text{m}]$
$e_t$	effusivité thermique	$[\text{J} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{s}^{-1/2}]$
EU	échantillon unitaire	$[-]$
$\vec{F}_c$	forces d'inertie	$[\text{Kg} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-2}]$
$f$	taux de remplissage local	$[\%]$
Fr	nombre de Froude	$[-]$
$g$	gravité	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-2}]$
$I(r)$	indice de Moran à la distance $r$	$[-]$
L	Longueur de la vis dans les mélangeurs Nauta <sup>®</sup>	$[\text{m}]$
$N_A$	vitesse orbitale de rotation de la vis dans les mélangeurs Nauta <sup>®</sup>	$[\text{s}^{-1}]$
$N_p$	nombre de puissance	$[-]$
$N_v$	vitesse de rotation de la vis sur elle-même dans les mélangeurs Nauta <sup>®</sup>	$[\text{s}^{-1}]$
N	vitesse de rotation de l'axe moteur	$[\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}]$

---

$n$	nombre d'échantillons prélevés	[-]
$N_{eq}^c$	vitesse équivalente cinématiquement	[tr · min <sup>-1</sup> ]
$N_{ef}$	vitesse effective de travail	[tr · min <sup>-1</sup> ]
$Ne$	nombre de Newton	[-]
$r_0$	longueur caractéristique	[-]
$R$	rayon de la cuve	[m]
$r$	distance entre deux échantillons	[-]
$R(r)$	coefficient de la fonction d'autocorrélation à la distance $r$	[-]
$s^2$	variance observée sur les $n$ échantillons prélevés	[%]
$m_e$	masse de l'échantillon	[g]
$m_g$	masse de graphite	[g]
$T_g$	teneur en graphite	[%]
$t_m$	temps optimal de mélange	[s]
$T$	période, correspondant à une rotation de l'axe moteur	[s]
$t$	temps	[s]
T 10B	Turbula <sup>®</sup> à l'échelle pilote	[-]
T 2F	Turbula <sup>®</sup> à l'échelle laboratoire	[-]
T 50A	Turbula <sup>®</sup> à l'échelle industrielle	[-]
$T_{g0}$	température de transition vitreuse	[°C]
$W_r$	matrice de voisinage à la distance $r$	[-]
$x_i$	composition de l'échantillon $i$ en constituant clé	[%]
$x_m$	moyenne de la composition de $n$ des échantillons prélevés	[%]
$Z$	nombre total d'échantillons	[-]

---

## Lettres grecques

---

$\alpha$	risque associé à la détermination de l'intervalle de confiance pour les lois du $\chi^2$	[%]
$\epsilon$	valeur limite en-dessous de laquelle, les coefficients d'autocorrélation sont considérés comme nuls	[-]
$\eta$	efficacité du mélangeur pour l'équation de Rose	[-]
$\mu$	teneur moyenne du mélange en constituant clé	[%]
$\sigma$	écart-type	[%]
$\omega$	vitesse de rotation de la cuve	[tr · s <sup>-1</sup> ]
$\chi_{inf}^2$ et $\chi_{sup}^2$	bornes supérieures et inférieures déterminée à partir des tables du $\chi^2$	[-]

---



## Résumé

L'optimisation d'une opération de mélange de poudre repose essentiellement sur un travail expérimental à l'échelle du laboratoire qui doit pouvoir être transposé aux mélangeurs de plus grandes tailles. Définir des lois d'extrapolation et améliorer notre connaissance de la dynamique du mélange est donc nécessaire.

Dans ces travaux, la dynamique de mélange au sein des mélangeurs Turbula<sup>®</sup> a été étudiée en s'appuyant sur l'analyse des cinétiques de mélange et des fonctions d'autocorrélation pour plusieurs systèmes particuliers. Selon les vitesses de rotation de l'axe moteur, 3 régimes d'écoulement ont été définis et les principaux mécanismes de mélange et de ségrégation apparaissant pour chacun de ces régimes ont été identifiés en lien avec les propriétés d'écoulement des produits.

Dans un deuxième temps, les qualités de mélange obtenues dans différentes tailles de mélangeurs ont été comparées sur la base du principe des similitudes afin de mettre en évidence les facteurs ayant une influence lors du passage d'une taille de mélangeur à une autre.

Enfin dans le cadre d'une application industrielle, une méthodologie s'appuyant sur l'intensité de ségrégation et l'autocorrélation spatiale, a été développée pour identifier des défauts d'homogénéité au sein de plaques bipolaires composites .

**Mots clés :** Turbula<sup>®</sup> , mélange de poudre, dynamique de mélange, changement d'échelle, autocorrélation spatiale





## **Abstract**

The optimization of a powder mixing step typically involves an experimental work at lab scale in order to be transposed to larger mixers. Defining scale-up laws and improving our knowledge of the mixing dynamics remains some of the mains industrial issues of this century.

In this work, the mixing dynamics of several particulate systems has been studied in Turbula mixers thanks to the analysis of mixing kinetics and autocorrelation functions.

According to the engine speed, three flow regimes have been defined. The corresponding main mixing and segregation mechanisms at play for each of these regimes have been identified in relation with the flow properties of the products.

In a second phase, the qualities of the mixtures obtained in the different mixer sizes have been compared on the basis of the principle of similarities in order to shed light the factors which influencing scale-up.

Finally, as part of an industrial application, a methodology has been developed using the concept of intensity of segregation and the spatial autocorrelation tools to identify heterogeneities in bipolar plates made of composite materials.

**Keywords :** Turbula<sup>®</sup>, powder mixing, mixing dynamics, scale-up, spatial autocorrelation.