

Approche multi-échelles pour la maîtrise technologique de la transformation de la semoule de blé dur en couscous

Bettina Bellocq

▶ **To cite this version:**

Bettina Bellocq. Approche multi-échelles pour la maîtrise technologique de la transformation de la semoule de blé dur en couscous. Génie des procédés. Montpellier SupAgro, 2017. Français. ⟨NNT : 2017NSAM0029⟩. ⟨tel-04843970⟩

HAL Id: tel-04843970

https://theses.hal.science/tel-04843970v1

Submitted on 17 Dec 2024

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.



HAL Authorization

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE MONTPELLIER SUPAGRO

En sciences des aliments – génie des procédés

École doctorale GAIA – Biodiversité, Agriculture, Alimentation, Environnement, Terre, Eau
Portée par l'Université de Montpellier

Unité de recherche : UMR IATE

APPROCHE MULTI-ÉCHELLES POUR LA MAÎTRISE TECHNOLOGIQUE DE LA TRANSFORMATION DE LA SEMOULE DE BLÉ DUR EN COUSCOUS

Présentée par Bettina BELLO CQ
Le 17 novembre 2017

Sous la direction de Bernard CUQ et Thierry RUIZ

Devant le jury composé de

Alain LE BAIL, Pr., ONIRIS, UMR GEPEA, Nantes	Rapporteur
Christelle TURCHIULI, Pr., AgroParis Tech, UMR GENIAL, Paris	Rapporteur
Claire GAIANI, Pr., Université de Lorraine, Unité LIBio, Nancy	Présidente
Cendrine GATUMEL, Dr., Ecole des Mines, Albi	Examinatrice
Bernard CUQ, Pr., Montpellier Supagro, UMR IATE	Directeur de thèse
Thierry RUIZ, Dr., Universités de Montpellier, UMR IATE	Co-directeur de thèse
Agnès DURI, Dr., INRA, UMR IATE, Montpellier	Encadrante invitée

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR
DE MONTPELLIER SUPAGRO

En sciences des aliments –génie des procédés

École doctorale GAIA –Biodiversité, Agriculture, Alimentation, Environnement, Terre, Eau
Portée par l'Université de Montpellier

Unité de recherche : UMR IATE

APPROCHE MULTI-ÉCHELLES POUR LA MAÎTRISE TECHNOLOGIQUE DE LA TRANSFORMATION DE LA SEMOULE DE BLÉ DUR EN COUSCOUS

Présentée par Bettina BELLO CQ
Le 17 novembre 2017

Sous la direction de Bernard CUQ et Thierry RUIZ

Devant le jury composé de

Alain LE BAIL, Pr., ONIRIS, UMR GEPEA, Nantes	Rapporteur
Christelle TURCHIULI, Pr., AgroParis Tech, UMR GENIAL, Paris	Rapporteur
Claire GAIANI, Pr., Université de Lorraine, Unité LIBio, Nancy	Présidente
Cendrine GATUMEL, Dr., Ecole des Mines, Albi	Examinatrice
Bernard CUQ, Pr., Montpellier Supagro, UMR IATE	Directeur de thèse
Thierry RUIZ, Dr., Universités de Montpellier, UMR IATE	Co-directeur de thèse
Agnès DURI, Dr., INRA, UMR IATE, Montpellier	Encadrante invitée

REMERCIEMENTS

Je souhaiterais à travers ce manuscrit de thèse, adresser mes sincères remerciements à ...

... Tous les membres du Jury qui ont évalué ce travail de thèse. Je les remercie pour leur enthousiasme et les échanges enrichissants que nous avons eus lors de la soutenance. Merci à Mme Claire GAINI d'avoir accepté la présidence du Jury. Merci à Mme Christelle TURCHIULI et Mr Alain LE BAIL d'avoir rapporté cette thèse. Merci à Mme Cendrine GATUMEL et à Mr Antoine CHIRON d'avoir apporté leurs critiques et points et de vue sur mes travaux.

... Mes trois encadrants de thèse : Bernard, Thierry et Agnès. Je les remercie sincèrement pour toutes les compétences scientifiques, techniques et humaines qu'ils m'ont apportées au cours de ma thèse. Ils ont fait preuve d'énormément de patience et de générosité à mon égard et je leur en suis réellement reconnaissante. Je les remercie également pour leur enthousiasme et leur humour au cours de ces trois années de travail ensemble !

... Tous les membres du programme ANR Dur-Dur. Les réunions tri-annuelles ont été l'occasion d'échanges constructifs qui m'ont permis d'avoir une vue d'ensemble des problématiques scientifiques et techniques liées à la filière blé dur française.

... Tous les collègues de l'unité pour les 3 agréables années passées ensemble. Merci à Christian, Denis et Roland pour l'appui technique. A l'équipe administrative, Laurence, Carole et Christophe M., pour l'accompagnement à la réalisation de mes travaux. Un grand merci à Christophe D. qui a rendu possible tous mes déplacements à l'étranger.

... Aux 3 stagiaires que j'ai eu le plaisir d'encadrer pendant ma thèse : Nathalie, Thais et Jaqueline. Merci pour votre bonne humeur et le dynamisme dont vous avez fait part dans vos stages respectifs.

... Les doctorants, ingénieurs contractuels et stagiaires du laboratoire avec qui j'ai partagé de très bons souvenirs : Amélie C., Karsta, Valentin, Daniel, Justine, Carine, Laure, Vincent, Charlotte, Sameh et Fabien. Merci à Adriaan, Guilherme et Nicolas pour votre énergie, votre écoute et vos conseils. Merci à Marianne pour sa gentillesse et sa douceur, je n'oublierai pas notre super voyage en Italie. Merci à Amélie B. pour l'énergie qu'elle dégage, son amitié, sa sensibilité et pour m'avoir aidée à surmonter certains moments de stress. Merci pour tout !

... Ma famille, mon père Dominique, ma sœur Céline et plus particulièrement ma mère Joëlle que je ne remercierai jamais assez pour son éternel soutien, sa générosité et son amour inconditionnel. Merci de m'avoir toujours soutenue dans mes études et encouragée à aller de l'avant. Merci pour votre écoute et vos précieux conseils. Enfin, merci infiniment à Mehdi pour son soutien, l'énergie qu'il m'apporte au quotidien et tous ses conseils avisés sur mon travail. Je vous aime profondément.

NOMENCLATURE

Latin letters:

ASE	Apparent screening efficiency
CIR	Circularity
d_s^*	Ratio between semolina true density and water true density [-]
e	Index of voids [-]
m_h	Mass of water [kg]
m_s	Mass of solid [kg]
S	Saturation degree [-]
S_a	Agglomerate saturation degree [-]
V	Volume total [m^3]
V_h	Volume of water [m^3]
V_s	Volume of the solid mass [m^3]
V_V	Volume of voids [m^3]
w	Dry water content [g water / g dry matter]
w_h	Humid water content [g water / g matter]

Greek letters:

ε	Porosity [-]
ϕ	Compactness [-]
ϕ_a	Agglomerate compactness [-]
ρ_s	Apparent density [$kg.m^{-3}$]
ρ_s^*	Solid true density [$kg.m^{-3}$]
ρ_h^*	Water true density [$kg.m^{-3}$]
Ψ_a	Dimensionless spray flux [-]

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES

Chapitre I : INTRODUCTION GENERALE 15

Chapitre II : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE 23

II.1. Milieux granulaires 25
II.1.1. Définition des milieux granulaires 25
II.1.2. Caractérisation physique des milieux granulaires 27
II.1.2.1. Distribution de taille des particules 28
II.1.2.2. Forme des particules 28
II.1.2.3. Porosité et masse volumique des particules 29
II.1.2.4. Masse volumique de la poudre 30
II.1.2.5. Teneur en eau des particules 30
II.1.3. Réactivité des milieux granulaires 31
II.1.3.1. Echelle moléculaire 31
II.1.3.2. Echelle macro-moléculaire 31
II.1.3.3. Echelle de la particule 31
II.1.4. Approche hydrotexturale 32
II.1.5. Ecoulements granulaires 34
II.1.5.1. Propriétés d'écoulement de la poudre 34
II.1.5.2. Régimes d'écoulement de la poudre 34
II.1.5.3. Cas du tambour tournant 36

II.2. Agglomération par voie humide 39
II.2.1. Mécanismes de l'agglomération par voie humide 39
II.2.1.1. Mouillage et nucléation 39
II.2.1.2. Croissance 40
II.2.1.3. Consolidation 41
II.2.1.4. Rupture et usure 41
II.2.2. Régimes d'agglomération 41
II.2.2.1. Régimes de nucléation 42
II.2.2.2. Régimes d'agglomération - croissance 43
II.2.2.3. Régime de consolidation 45
II.2.3. Diagramme hydrotexural 45
II.2.4. Modèle fractal 47
II.2.5. Technologies pour l'agglomération en voie humide 47
II.2.5.1. Equipements pour l'apport d'énergie mécanique 48
II.2.5.1.1. Agitation pneumatique 48
II.2.5.1.2. Agitation mécanique 48
II.2.5.2. Influence des paramètres du procédé 50
II.2.5.2.1. Mode d'apport du liquide 50
II.2.5.2.2. Types de buses de pulvérisation 50
II.2.5.2.3. Taille des gouttes 51
II.2.5.2.4. Temps de pénétration du liquide 52
II.2.5.2.5. Vitesse d'agitation 53
II.2.5.3. Influence des paramètres de formulation 53
II.2.5.3.1. Taille des particules natives 53
II.2.5.3.2. Teneur en liquide 54
II.2.5.3.3. Viscosité et tension superficielle du liquide 54

II.3. Modélisation 55
II.3.1. Bilans de population 55
II.3.2. Analyse dimensionnelle 57
II.3.2.1. Définition et intérêt de l'analyse dimensionnelle 57
II.3.2.2. Construction d'une analyse dimensionnelle 58
II.3.2.3. Nombres adimensionnels – cas des milieux granulaires 59

II.4. Procédé de transformation de la semoule de blé dur en grains de couscous **60**
II.4.1. Semoule de blé dur 60
II.4.1.1. Composition de la semoule de blé dur 61
II.4.1.2. Réactivité physico-chimique des grains de semoule 62
II.4.2. Opérations unitaires de la fabrication des grains de couscous 64
II.4.2.1. Agglomération de la semoule de blé dur 65
II.4.2.2. Roulage des agglomérats de couscous 67
II.4.2.3. Cuisson-vapeur 68
II.4.2.4. Séchage 70
II.4.2.5. Recyclage 72
II.4.3. Qualités du grain de couscous final 73
II.4.3.1. Caractéristiques des grains de couscous secs 73
II.4.3.2. Qualité à l'hydratation 74
II.4.3.3. Qualité à la consommation 75

II.5. Conclusion **76**

Chapitre III : MATERIELS ET METHODES **77**

III.1. Raw materials **79**
III.1.1. Standard durum wheat semolina 79
III.1.2. Specific durum wheat semolina 79
III.1.2.1. Durum wheat semolina with different median diameters 79
III.1.2.2. Durum wheat semolina with different proteins content 80
III.1.2.3. Coarse durum wheat semolina 81

III.2. Couscous grains processing **81**
III.2.1. Wet agglomeration experiment 81
III.2.1.1. Mechanical mixers 82
III.2.1.2. Water spraying systems 83
III.2.1.3. Wet agglomeration process 83
III.2.2. Rolling experiments 84
III.2.3. Cooking experiments 85
III.2.4. Drying experiments 85
III.2.5. Fluidized bed experiments 86

III.3. Analytical methods to characterize the agglomerates of couscous **87**
III.3.1. Physico-chemical properties 87
III.3.2. Physical properties 88
III.3.3. Morphometric parameters 88
III.3.4. Statistical analysis 89

Chapitre IV : RESULTATS **91**

IV.1. Wet agglomeration of durum wheat semolina **93**
IV.1.1. Impacts of the size distributions and protein contents of the native wheat powders in their structuration behaviour by wet agglomeration 94
IV.1.1.1. Introduction 94
IV.1.1.2. Material and methods 95
IV.1.1.2.1. Raw material 95
IV.1.1.2.2. Wet agglomeration process 96
IV.1.1.2.3. Agglomerates characterization 97
IV.1.1.3.4. Statistical analysis 98
IV.1.1.3. Results 98
IV.1.1.3.1. Agglomeration of standard semolina 98

IV.1.1.3.2. Influence of the diameter and the span of native particles 100
IV.1.1.3.3. Influence of the protein content of semolina 103
IV.1.1.4. Discussion 105
IV.1.1.4.1. Mechanisms of the wet-agglomeration of semolina 105
IV.1.1.4.2. Specification of durum wheat semolina for wet agglomeration 108
IV.1.1.5. Conclusion 109
IV.1.2. Low shears wet granulations processes: application to the structuration of the durum wheat semolina for the manufacture of couscous grains. 110
IV.1.2.1. Introduction 110
IV.1.2.2. Material and methods 111
IV.1.2.2.1. Raw materials 111
IV.1.2.2.2. Mechanical mixers and spraying system 111
IV.1.2.2.3. Granulation experiments 112
IV.1.2.2.4. Characterisation of agglomerates 112
IV.1.2.3. Results 113
IV.1.2.3.1. Wet agglomeration mechanisms in mechanical low shear mixer 113
IV.1.2.3.2. Impact of the water addition level 116
IV.1.2.3.3. Impact of mixing time 118
IV.1.2.3.4. Impact type of mixers 120
IV.1.2.3.5. Impact of impeller speeds 122
IV.1.2.4. Discussion 124
IV.1.2.5. Conclusion 126

IV.2. Rolling stage of the wet agglomerates 127
IV.2.1. Screening efficiency and rolling effects of a rotating screen drum used to process wet soft agglomerates 127
IV.2.1.1. Introduction 127
IV.2.1.2. Material and method 129
IV.2.1.2.1. Raw material 129
IV.2.1.2.2. Agglomeration process 129
IV.2.1.2.3. Rolling process 130
IV.2.1.2.4. Characterization of the agglomerates 130
IV.2.1.2.5. Statistical analysis 132
IV.2.1.3. Experimental results 132
IV.2.1.3.1. Shaping effects of the rotating screen drum 132
IV.2.1.3.2. Screening efficiency parameters of the rotating screen drum 134
IV.2.1.3.3. Impact of the parameters of the rotating drum 137
IV.2.1.4. Discussion 140
IV.2.1.4.1. Apparent screening efficiency 141
IV.2.1.4.2. Impact on structuring mechanisms 141
IV.2.1.4.3. Dimensional analysis 143
IV.2.1.5. Conclusion 145

IV.3. Cooking and drying stage of the wet agglomerates 146
IV.3.1. Contribution of the cooking and drying stages on the structure of the couscous grains of durum wheat semolina 147
IV.3.1.1. Introduction 147
IV.3.1.2. Material and methods 148
IV.3.1.2.1. Raw materials 148
IV.3.1.2.2. Agglomeration process 149
IV.3.1.2.3. Cooking process 149
IV.3.1.2.4. Drying process 149
IV.3.1.2.5. Agglomerates characterization 149
IV.3.1.3. Results 151
IV.3.1.3.1. Impact of the cooking stage on the characteristics of the grains 151
IV.3.1.3.2. Influence of the initial water content of the wet grains 154
IV.3.1.3.3. Impact of the drying stage on the characteristics of the grains 154
IV.3.1.3.4. Influence of the drying temperature 157
IV.3.1.4. Discussion 159

IV.3.1.5. Conclusion 165
IV.3.2. Innovative processing: the drying of uncooked couscous grains of durum wheat semolina 167
IV.3.2.1. Introduction 167
IV.3.2.2. Material and methods 168
IV.3.2.2.1. Raw materials 168
IV.3.2.2.2. Agglomeration process 169
IV.3.2.2.3. Drying process 169
IV.3.2.2.4. Agglomerates characterization 169
IV.3.2.3. Results 171
IV.3.2.3.1. Kinetic description of the mechanisms 171
IV.3.2.3.2. Influence of the drying temperature 173
IV.3.2.3.3. Influence of the relative humidity conditions 174
IV.3.2.4. Discussion 176
IV.3.2.5. Conclusion 180

IV.4. Fluidized bed agglomeration 181
IV.4.1. Impact of fluidized bed granulation on structure and functional properties of the agglomerates based on the durum wheat semolina 181
IV.4.1.1. Introduction 181
IV.4.1.2. Material and Methods 183
IV.4.1.2.1. Raw materials 183
IV.4.1.2.2. Agglomeration process 183
IV.4.1.2.3. Cooking and drying process 185
IV.4.1.2.4. Characterization of the agglomerates 185
IV.4.1.2.5. Statistical analysis 186
IV.4.1.3. Results 187
IV.4.1.3.1. Characterisation of the wet agglomerates after the agglomeration stage 187
IV.4.1.3.2. Impact of the process parameters of the fluidized bed 188
IV.4.1.3.3. Characterisation of the agglomerates after cooking and drying 193
IV.4.1.4. Discussion 195
IV.4.1.4.1. Agglomeration mechanisms 196
IV.4.1.4.2. Hydrotextural analysis 197
IV.4.1.4.3. Comparison with the couscous grains 199
IV.4.1.4.4. Process efficiency 199
IV.4.1.5. Conclusion 200

Chapitre V : DISCUSSION ET PERSPECTIVES 201

V.1. Structuration des grains de couscous 202

V.2. Coût énergétique du procédé 207

V.3. De la semoule aux grains de couscous : quels mécanismes ? 212
V.3.1. Mécanismes physico-chimiques et diagrammes d'état 213
V.3.2. Mécanismes physiques et approche hydrotexturale 215

REFERENCES 219

Chapitre I : INTRODUCTION GENERALE

En introduction de ce travail de thèse, il convient de préciser en premier lieu que le terme « couscous » est utilisé avec un double sens dans le langage commun. Il désigne l'un des plats emblématiques de la cuisine maghrébine et plus généralement méditerranéenne, souvent servi avec un ragout de légumes et de viandes. Il désigne également le grain de couscous, l'objet de ce travail. Le grain de couscous est défini dans le *Codex Alimentarius* comme un produit spécifiquement élaboré à partir de semoule de blé dur agglomérée suivant un procédé où se succèdent les opérations unitaires d'agglomération, de cuisson, de séchage et de calibration. C'est un aliment très ancien d'origine Berbère (Afrique du Nord). Il est traditionnellement préparé en mélangeant de la semoule de blé dur avec de l'eau dans un large plat en bois, puis roulé avec la paume de la main jusqu'à la formation de larges agrégats sphériques, les grains de couscous. Ces grains, plus ou moins comprimés et compressés par les mouvements de la main au contact du fond du plat, sont ensuite tamisés, cuits à la vapeur et séchés au soleil (Ruiz et al., 2014). Le grain de couscous est un aliment très consommé en salade, dans un taboulé, ou chaud pour accompagner légumes, viandes ou poissons. Il est très populaire autour du bassin méditerranéen, où les français en consomment 1,4 kg/an/hab. (sources : SIFPAF-CFSI, 2011). Il est également consommé en Europe du Nord et en Amérique. Le consommateur est généralement séduit par sa facilité d'utilisation (réhydratation à chaud ou à froid), sa simplicité (seulement deux ingrédients : la semoule de blé dur et l'eau) et sa haute valeur nutritionnelle liée à un indice glycémique légèrement supérieur à celui des pâtes (Abecassis et al., 2012).

Les premières lignes industrielles pensées pour la production du couscous apparaissent en Afrique du Nord dans les années soixante. Les équipements et technologies utilisés dans l'industrie pastière pour la fabrication des pâtes courtes sont alors transposés pour la fabrication de grains de couscous à l'échelle semi-industrielle. Il faut attendre le milieu des années soixante-dix pour que les lignes de production de couscous totalement automatisées voient le jour en France, puis dans les autres parties du monde. La conception des lignes de production a été réfléchie pour « mimer » le savoir-faire artisanal, par une simple amélioration des technologies déjà existantes. Avec un taux de recyclage de plus de 50% et des chaînes de fabrication, dont la mise en charge matière nécessite plus de 5 heures avant que ne soit produit le premier grain de couscous, la technologie actuelle reste encore particulièrement énergivore. Les procédés ne sont également pas capables de s'adapter à la variabilité des matières premières. D'autre part, la marge de manœuvre liée à la modulation des conditions opératoires, ne permet pas d'obtenir une large gamme de propriétés (*e.g.* compacité, texture *etc.*) des grains de couscous. La production française annuelle de grains de couscous est de 87 500 tonnes, contre 242 000 tonnes de pâtes (sources : SIFPAF-CFSI, 2011). Le poids commercial est limité et l'investigation conduite dans les conditions technologiques actuelles ne permet pas l'innovation. Aussi, le peu d'études scientifiques disponible à l'heure actuelle (moins de 20 thèses et publications) contribue au relatif « empirisme » dans la gestion du procédé de fabrication des grains (Abecassis et al., 2012).

Les mécanismes de structuration des milieux granulaires sont encore partiellement connus et doivent faire l'objet d'un travail scientifique plus approfondi pour comprendre les mécanismes et prédire les propriétés finales du produit. Le procédé industriel actuel reste particulièrement peu éco-efficient et

très énergivore. L'objectif scientifique du travail de thèse est d'améliorer les connaissances et de générer des données pertinentes pour la conception durable des procédés thermo-hydro-mécaniques nécessaires à l'élaboration d'un grain de couscous. L'enjeu scientifique est de permettre une refonte du procédé de fabrication pour maîtriser les consommations énergétiques et permettre un développement durable de la chaîne de fabrication, à travers une approche multidisciplinaire qui couple la science de la matière granulaire et la science des aliments appliquée aux technologies des céréales. Il s'agit aussi d'intégrer la variabilité des matières premières (en termes de composition et de propriétés), selon une approche globale avantages / risques. La démarche s'inscrit dans le courant scientifique actuel du "product-engineering". Elle repose sur l'étude expérimentale associée à la modélisation des contributions couplées *(i)* de la réactivité des particules, *(ii)* des facteurs hydro-thermo-mécaniques des procédés et *(iii)* de la rhéologie des écoulements. Ces contributions définissent la base de représentation des processus de structuration des agro-poudres dans la genèse des critères « taille et compacité ». Ces travaux rejoignent des applications importantes pour les poudres alimentaires, notamment la filière des céréales, tant en amélioration des conduites de procédés, qu'en innovation de produits morpho texturés.

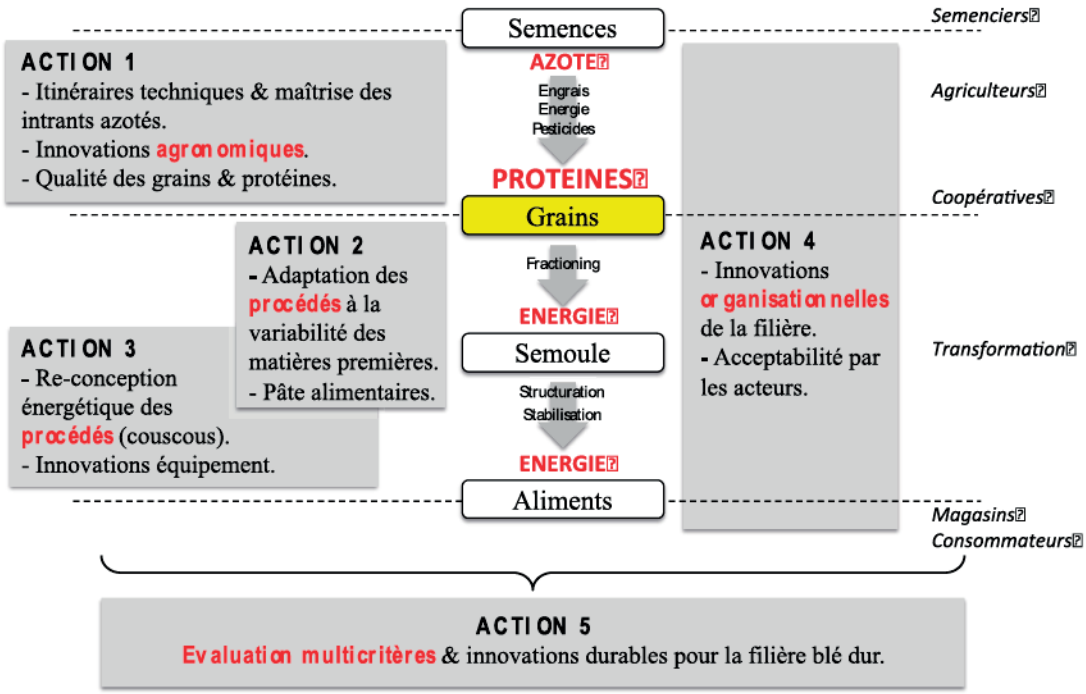


Figure I.1. Schéma des actions d'investigation du projet ANR pour la Durabilité de la filière blé Dur

Ce travail de thèse a commencé en novembre 2014 dans le cadre du projet ANR Durabilité de la filière blé Dur (Dur-Dur) et de l'appel d'offre ALID 2013. Ce projet ANR porte sur les « innovations agronomiques, techniques et organisationnelles au service de la durabilité de la filière blé dur et sur la conception d'itinéraires techniques et technologiques durables (apports azotés et consommations énergétiques) pour la maîtrise des teneurs en protéines et en contaminants ». Le projet Dur-Dur est prévu sur une durée de 4 ans. Il s'agit de repenser la conduite des itinéraires agronomiques pour la production du blé dur (*i.e.* « construction » de la qualité et de la quantité de protéines dans le grain de

blé et impact sur la présence de contaminants) et de « re-concevoir » les procédés de transformation pour la fabrication des aliments à base de blé dur : pâtes alimentaires et grains de couscous (*i.e.* mobilisation des protéines pour l'élaboration des structures alimentaires, élimination des contaminants). Il suggère le développement d'une approche systémique pour étudier les questions liées à la gestion de l'azote, de l'énergie et des contaminants, afin de garantir une qualité globale des produits issus de blé dur tout au long de la production et de la chaîne de transformation. Cette approche multifactorielle vise à intégrer les 3 dimensions de la durabilité : environnementale, économique et sociale. Le projet ANR Dur-Dur est divisé en 5 actions d'investigation (Fig. I.1). Le travail de thèse s'intègre dans l'action 3 et concerne la re-conception des procédés de structuration des milieux granulaires.

Ce travail de thèse a été mené au sein de l'Unité Mixte de Recherche Ingénierie des Agro polymères et des technologies émergentes (IATE), qui regroupe les tutelles INRA, CIRAD, Montpellier SupAgro et Universités de Montpellier. Cette unité a pour objectif d'étudier les procédés physiques et physicochimiques de transformation d'agro-polymères et les effets de ces traitements sur la structure, les propriétés fonctionnelles et les qualités d'usage des produits alimentaires. L'UMR IATE est divisée en 5 axes de recherche. La thèse s'intègre au niveau de l'axe 2 « structuration sous contrainte », plus particulièrement au sein de l'équipe « réactivité des poudres et génie des procédés des milieux granulaires ». Les travaux de la thèse ont été réalisés avec les moyens de la plateforme nationale de fractionnement des végétaux et du plateau technique « génie particulaire » de l'UMR IATE. Ce travail a été cofinancé par l'INRA (département CEPIA), dans le cadre de l'action collective AMMAC (élaborer des aliments modèles et des modèles d'aliments en prenant en compte la complexité). Ce travail répond pleinement aux enjeux de l'action AMMAC, notamment avec les objectifs : « innovation produit et/ou procédé ; éco concevoir les produits et les procédés ; aider à maîtriser la variabilité de la matière première ». Il se positionne à l'interface de l'axe thématique 1 « intégration de la variabilité de la matière première et de l'hétérogénéité des conditions de transformation » et de la transversalité « éco-conception ».

Ce travail a été encadré par le Pr. Bernard CUQ (Montpellier SupAgro), le Dr. Thierry RUIZ (Universités de Montpellier) et le Dr. Agnès DURI (INRA). Pour aborder les questions scientifiques sous différents angles, pour la conduite d'expérimentation et pour le partage d'expertises, des partenariats externes ont été réalisés :

- UMR PIHM (Lille) : collaboration avec le Dr. DELAPLACE Guillaume pour aborder le travail d'analyse dimensionnelle menée sur le rouleur pilote.
- UMR GENIAL (Paris) : collaboration avec le Pr. DUCEPT Fabrice, le Dr. ALMEIDA-PERRE Giana et GRANDA Pablo pour aborder le travail sur l'agglomération à faible et fort taux de cisaillement.
- Laboratoire de Particulate Engineering (Cork) : collaboration avec le Dr. RING Denis et le Dr. CRONIN Kevin pour étudier l'agglomération de semoule de blé dur avec un lit fluidisé.
- CRECERPAL – Panzani (Marseille) : collaboration avec le Dr. AREKION Isabelle et GILLET Laurent pour mener l'étude expérimentale sur le rouleur de couscous pilote.

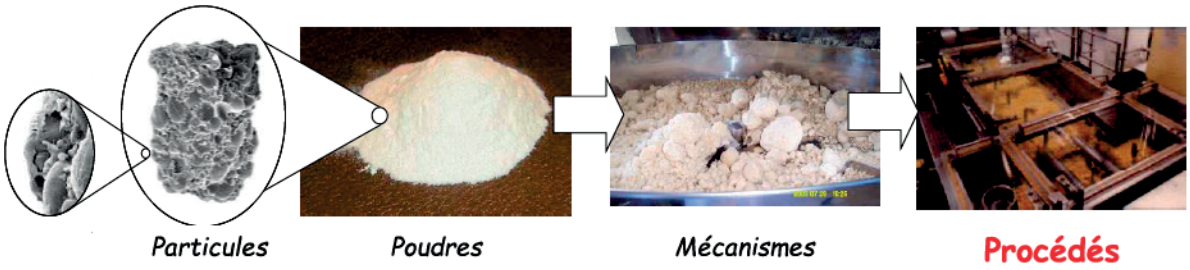


Figure I.2. Schéma de l'approche produit-procédés-processus

La compréhension du comportement de la matière granulaire sous l'effet de contraintes hydriques, mécaniques et thermiques représente un véritable enjeu scientifique. Le sujet de thèse s'appuie sur une approche multi-échelle « produit - procédé - processus », afin de répondre aux enjeux scientifiques associés à la transformation de la semoule de blé dur en couscous (Fig. I.2). Cette approche repose sur l'étude des contributions couplées de la réactivité des particules avec l'ajout d'eau et des facteurs thermo-hydro-mécaniques des procédés, dans les mécanismes de structuration de la semoule de blé dur en agglomérats de couscous, relevant de critères « taille et compacité ».

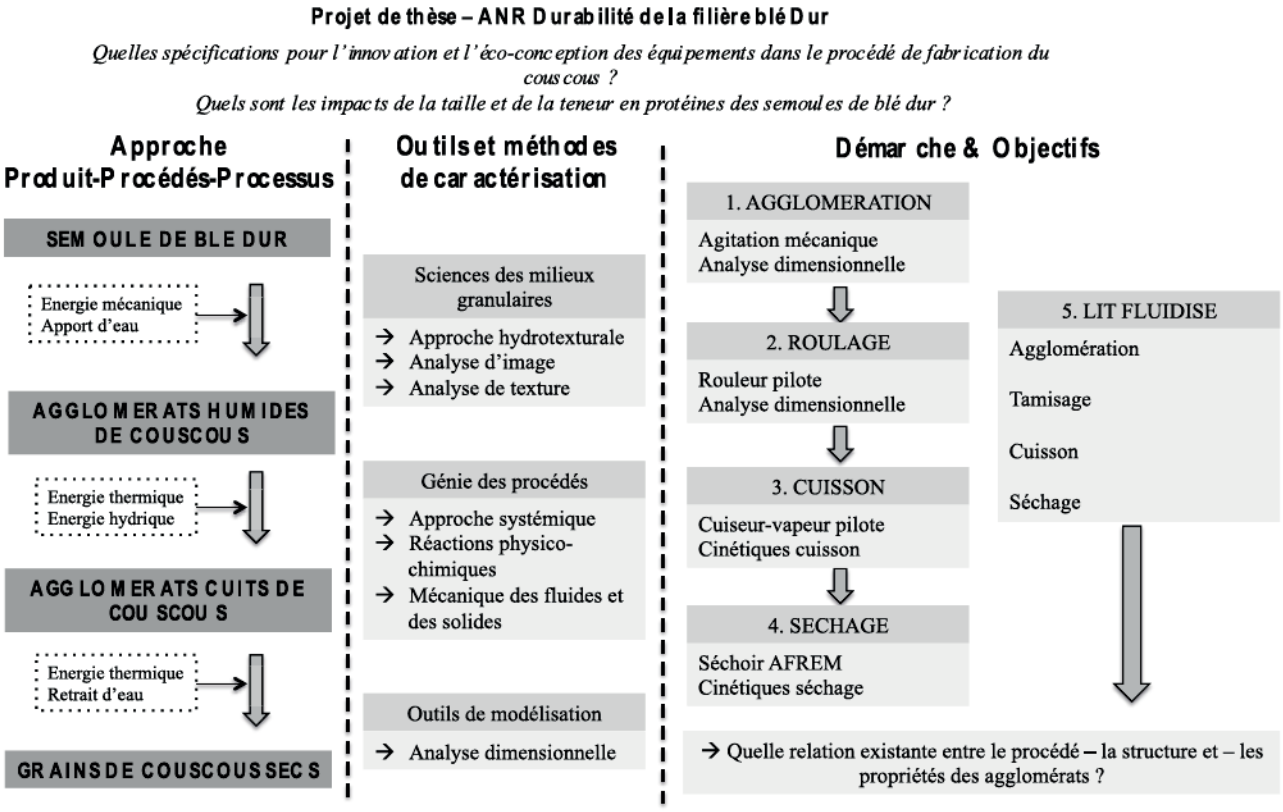


Figure I.3. Schématisation de la démarche de thèse autour de l'approche multi-échelle « produit-procédé-processus »

Les objectifs de la thèse sont :

(i) **à l'échelle des processus** : analyser les mécanismes de structuration de la semoule de blé sous l'effet de contraintes hydriques, mécaniques et thermiques au cours des opérations d'agglomération, de roulage, de cuisson et de séchage et proposer une contribution à la description unifiée de ces opérations.
(ii) **à l'échelle du procédé** : étudier l'effet des paramètres des différents équipements de mélange, de roulage et de cuisson séchage sur les agglomérats de couscous et les grains de couscous finaux.
(iii) **à l'échelle du produit** : étudier l'impact des caractéristiques physiques et physico-chimiques de la semoule de blé dur sur les agglomérats de couscous et les grains de couscous finaux.

La démarche adoptée pour répondre à ces objectifs est schématisée dans la Figure I.3.

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

Après un chapitre d'introduction (**Chapitre I**), le **Chapitre II** est une revue bibliographique qui aborde quatre aspects de ce travail de thèse. Une première partie introduit les milieux granulaires avec notamment la caractérisation d'un milieu granulaire et l'approche hydrotexturale, ainsi que les écoulements granulaires et plus spécifiquement les écoulements en tambour tournant. Une seconde partie présente les approches théoriques des mécanismes de l'agglomération humide de poudres (alimentaires ou non) et se poursuit par une présentation des procédés et équipements d'agglomération et du diagramme hydrotextural. Une troisième partie aborde la modélisation et plus spécifiquement la construction d'une analyse dimensionnelle. Enfin la quatrième partie décrit le cas particulier du procédé de fabrication du couscous et se termine par une discussion autour des enjeux industriels et de l'intérêt scientifique soulevé. Le chapitre se termine par une synthèse de cette étude bibliographique.

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

Le **Chapitre IV** rassemble les résultats de ce travail de recherche qui sont présentés sous la forme de 6 publications (acceptées, soumises ou en préparation, en anglais) regroupées en 4 parties. La première partie présente une étude sur l'impact de facteurs (process et formulation) sur les mécanismes de structuration lors de l'opération unitaire d'agglomération. La deuxième partie présente les résultats de l'étude expérimentale menée sur le rouleur de couscous pilote. Elle contient l'étude des impacts des facteurs du procédé sur les caractéristiques des agglomérats et l'analyse matricielle pour étudier l'efficacité du procédé. La troisième partie présente l'étude sur les traitements hydrothermiques

(cuisson et séchage) à travers notamment l'impact des facteurs du procédé sur les transferts d'eau et les mécanismes physico-chimiques induits. Enfin, une étude sur l'agglomération de grains de couscous en lit fluidisé et l'impact des facteurs du procédé est présentée dans une quatrième partie.

Le **Chapitre V** est une discussion générale qui présente une synthèse de l'ensemble des résultats et les perspectives à ce travail de recherche. Nous discutons *(i)* des mécanismes de structuration d'un grain de couscous, *(ii)* du coût énergétique de l'intégralité de la chaine de fabrication et *(iii)* de l'approche mécanistique à travers l'utilisation du diagramme d'état du blé dur et du diagramme hydrotextural, utilisés dans ce travail comme des outils d'aide à la conduite du procédé.

Chapitre II : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

II.1. Milieux granulaires

Les milieux granulaires sont des objets macroscopiques et leurs traitements concernent, à l'échelle mondiale et chaque année, des quantités de l'ordre de la dizaine de milliards de tonnes, ce qui en fait la deuxième « matière » travaillée industriellement (tout traitement confondu) après l'eau, dans l'échelle des priorités pour l'activité humaine. Ils interviennent dans beaucoup de domaines : le combustible fossile le plus usité après le pétrole (houille), les matériaux de construction (ciment, sable, gravier), les industries chimiques, pharmaceutiques, cosmétiques ainsi que l'alimentation (Duran, 1996). Le moindre progrès réalisé dans le domaine de la matière en grain suscite des enjeux économiques considérables. Ce domaine fait intervenir plusieurs champs d'études : des disciplines appliquées telles que la géotechnique, la galénique ou la science des aliments, des disciplines plus systémiques comme le génie des procédés, ou plus fondamentales comme la physico-chimie ou la physique des milieux granulaires. Il est, à l'heure actuelle, en pleine expansion et suscite aujourd'hui un intérêt considérable (Forterre et Pouliquen, 2006; Pouliquen et al., 2001; Rajchenbach, 2000).

II.1.1. Définition des milieux granulaires

Un milieu granulaire est un système divisé athermique par opposition aux particules browniennes dont la taille caractéristique des particules est comprise entre quelques microns et quelques millimètres. Cette taille se situe donc entre les colloïdes et les solides brisés (Duran, 1996; Pouliquen et al., 2001) (Fig. II.1.1.1). Les particules de semoule de blé dur (~280 µm) ont une taille caractéristique comprise entre la longueur colloïdale (µm) et la longueur capillaire (mm). Ruiz (2012) définit donc cette classe particulière comme : les granulaires capillaires. Elles interagissent entre elles par interactions mécaniques solide-solide (frottement, collision, Van der Waals) ou solide-fluide (Van der Walls, hydrodynamiques et forces capillaires).

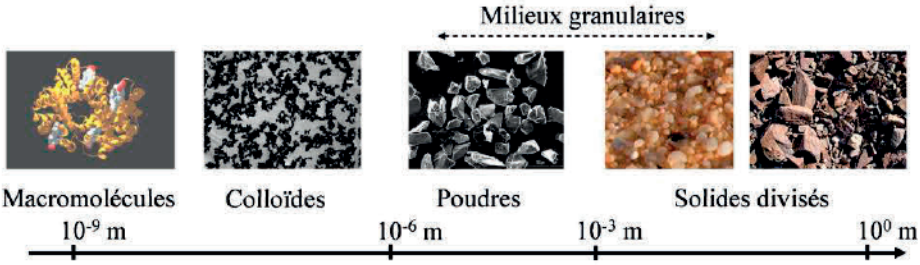


Figure II.1.1.1. Illustration de la répartition granulométrique de la matière (adaptée de Ruiz, 2012)

Un milieu granulaire est constitué d'un ensemble de particules discrètes solides, créant un réseau interstitiel investit par une ou plusieurs phases fluides (liquide ou gaz). La particularité d'un milieu granulaire est qu'il peut adopter un comportement rhéologique varié en fonction de l'encombrement intergranulaire (la compacité) et du mode de sollicitation. Il peut occuper des états de types « solide, liquide ou gazeux » : localement, un milieu granulaire peut être ordonné comme un solide, et s'écouler aussi comme un liquide…et peut se disperser dans tous les sens, comme un gaz (Forterre et Pouliquen, 2006). Contrairement aux corps, dont la température permet la transition d'état entre ces différents

comportements par apport de mobilité locale aux molécules ou colloïdes, le comportement dynamique ou statique du milieu granulaire est dépendant de la microsctructure et de l'agencement entre les particules (Felix, 2002). Certains phénomènes comme la dilatance, la ségrégation ou encore l'effet de voûte (Duran, 1996), sont propres aux milieux granulaires et en font une famille de matériaux avec une typologie de phénomènes distincte des autres classes identifiées en science de la matière.

Le phénomène de dilatance a été mis en évidence par Reynolds en 1885. Lorsqu'un milieu granulaire, préalablement densifié au-delà d'une compacité dite critique, est sollicité sous cisaillement, la population de particules doit d'abord se dilater (diminuer sa compacité), pour pouvoir se déformer. Sans cette dilatance, les grains occupent une conformation telle qu'ils ne peuvent pas bouger. Le système est « jammé » et il n'est plus possible de le déformer sans endommager les particules. Ce phénomène est couramment observé sur les plages de sable. Les pas sur un sable très humide à la bordure du rivage laissent une trace qui semble réaliser un « asséchement » local du sable, mais l'eau n'est pourtant pas drainée sous l'effet d'une surpression appliquée par le poids. En fait, le cisaillement du sable induit par la marche s'accompagne d'une augmentation du volume entre les grains et l'eau toujours présente au même endroit « disparait » entre les interstices ainsi générés. La dilatance est étroitement liée aux capacités de réarrangement des grains à l'échelle locale et pour une population de particules donnée. La prédiction à priori de la valeur de la compacité critique reste délicate. Même pour un empilement de sphères monodisperses, cette compacité peut être variable. Sa valeur est comprise entre le « random close packing » (RCP) qui est la compacité d'un empilement compact (obtenu par tassement) et le « random loose packing (RLP), compacité d'un état désordonné lâche (obtenu à la limite de fluidisation). Notons que ces derniers empilements « lâches » ne présentent pas de comportement de dilatance (Pouliquen et al., 2001).

Le phénomène de ségrégation se manifeste lorsque des mélanges de grains aux propriétés différentes sont manipulés. Un « bon » mélange de grains de tailles différentes est assez difficile à obtenir car les particules les plus petites ont tendance à se retrouver au fond tandis que les plus grosses occupent la surface. Un exemple concret de la vie quotidienne illustrant ce phénomène est le cas du paquet de céréales. A l'intérieur du paquet, tout juste ouvert, il y a de gros flocons, pleins de fruits, *etc*. puis vient le matin fatidique où arrive la fin du paquet et là que reste-t-il … les miettes. Lorsqu'un mélange contrasté de particules est soumis à des vibrations, la mobilité granulaire n'est pas identique pour toutes les classes de tailles de grains. L'ordre de grandeur du volume libre nécessaire aux « petites » particules pour se réarranger est bien plus petit que celui nécessaire aux plus grosses. La dynamique de réarrangement est telle que les plus petites particules, plus mobiles, occupent plus rapidement l'espace interstitiel disponible imposant aux grosses particules comme seul espace de mobilité, le volume disponible vers la surface libre du milieu. Phénoménologiquement, cela peut se traduire par un mécanisme de percolation des petites particules sous les gros grains (Jullien et al., 1992; Rosato et al., 1987). En « s'infiltrant » sous les gros grains, les petites particules les poussent vers la surface. La description cinématique du phénomène de ségrégation granulaire fait apparaitre la présence de mouvements collectifs complexes de convection (montée au centre et redescente à proximité des parois). Dans le cas de tambours tournants, des phénomènes de ségrégation sont aussi observés avec

des structures rendues encore plus complexes par la variation temporelle de la sollicitation mécanique. Des bandes alternées de grosses et petites particules apparaissent. Les phénomènes de ségrégation ont été très étudiés dans différents types de mélangeurs pour des opérations de mélange-malaxage et aussi d'agglomération humide de particules (Laurent et Bridgwater, 2002; Conway et al., 2005), que la ségrégation soit un phénomène recherché voir amplifié, pour le tri de particules par exemple, ou évité dans le cas de l'agglomération.

L'effet de voûte est une particularité importante des milieux divisés en interaction mécanique. Il est à l'origine de plusieurs phénomènes remarquables comme l'effet « Janssen » observé dans les silos de stockage (des « voûtes » aussi appelées chaînes de forces ou chemins préférentiels de contrainte, se forment et redistribuent les contraintes verticales vers les parois si bien qu'à partir d'une certaine hauteur, le poids des couches supérieures de grains est entièrement porté par les parois latérales), le « trou du tas » (dépression à la base d'un tas formé par l'écoulement à partir d'un point source) ou encore la constance du débit d'écoulement à travers un orifice (cas du sablier par exemple). Le débit d'écoulement des grains dans un sablier est constant, alors que dans des conditions identiques (vidange d'un récipient à surface libre par un orifice) le débit d'un liquide se réduit « logarithmiquement » au fur et à mesure de la vidange (loi de Torricelli).

Ces phénomènes révèlent que la transmission des forces dans un milieu granulaire est très hétérogène à l'échelle des grains. Bien qu'appliquée avec succès pour décrire certaines typologies d'écoulement (Jop et al., 2006), la mécanique des fluides n'est pas directement transposable à toutes les problématiques des écoulements granulaires dont la mise en charge du réseau de force apporte un degré de complexité supplémentaire.

II.1.2. Caractérisation physique des milieux granulaires

Un milieu granulaire est au moins un système bi-phasique constitué d'une phase solide de particules de différentes tailles et d'une phase fluide qui occupe les espaces intra (s'ils existent) et intergranulaires. Un milieu granulaire est dit « saturé » lorsque la phase fluide est unique. Les milieux granulaires dits « secs » sont remplis d'air. Les milieux humides saturés sont remplis de liquide. Lorsque les espaces intra et/ou intergranulaires sont partagés entre deux phases fluides non miscibles, le milieu est dit « non saturé » ou « insaturé », ce qui traduit une situation dans laquelle co-existent localement des interfaces fluide/solide mais aussi fluide/fluide.

La caractérisation complète d'un milieu granulaire dépend grandement des propriétés individuelles des particules, mais aussi de leurs propriétés collectives, ce qui fait des interactions locales un élément de synergie incontournable dans la description du système. La caractérisation d'un milieu granulaire inclue essentiellement la distribution de taille et de forme (morpho-granulométrie) et les propriétés d'écoulement (cohésion, friction). Il est également indispensable de connaître la densité, la composition, l'hygroscopicité, la teneur en eau, la réactivité de surface et la structure interne des particules (Fitzpatrick, 2013).

II.1.2.1. Distribution de taille des particules

La distribution de taille est l'une des caractéristiques les plus importantes dans le sens où elle affecte une grande partie des propriétés physiques d'une poudre (*e.g.* l'écoulement, la compressibilité). La distribution de taille des particules est d'autant plus facile à déterminer, que les particules possèdent une morphologie voisine de la sphère. Il suffit dans ce cas, de connaître la taille caractéristique : le diamètre. Il est plus difficile de définir la taille d'une particule de forme complexe, c'est pourquoi un diamètre équivalent est généralement attribué. Le diamètre équivalent correspond au diamètre qu'aurait une sphère équivalente avec les mêmes caractéristiques ou le même comportement que la particule d'intérêt (Saleh et Guigon, 2009a). La distribution granulométrique est établie pour identifier la taille du lit de particules ou de l'ensemble du milieu granulaire. A partir de la distribution granulométrique, il est possible de calculer le diamètre moyen, le diamètre médian et la dispersion autour de la valeur moyenne. Les tailles caractéristiques les plus fréquemment retenues pour décrire la distribution sont *(i)* les d_{10}, d_{50} et d_{90}, qui correspondent respectivement à 10, 50 et 90% de la fréquence cumulée en nombre, masse ou volume, *(ii)* le $d_{4,3}$ qui est le diamètre moyen en volume, et *(iii)* le $d_{3,2}$ (diamètre de Sauter) qui correspond au diamètre moyen en volume et en surface (représentatif de la surface spécifique des particules). Il existe un grand nombre de méthodes permettant de mesurer la distribution de taille d'une poudre : le tamisage, la sédimentation, l'analyse d'images ou la diffraction et la diffusion d'un faisceau laser. Néanmoins, les techniques de tamisage et la diffraction et diffusion d'un faisceau laser sont les plus couramment utilisées (Barbosas-Canovas et al., 2005; Saleh et Guigon, 2009a).

II.1.2.2. Forme des particules

La forme d'une particule est une caractéristique importante car elle agit sur la porosité inter-granulaire, les forces inter-particulaires et les phénomènes de friction via la coordinance (*i.e.* le nombre de points de contact entre une particule et toutes ses voisines). Elle a une influence sur les propriétés physiques du lit de poudre comme la densité (avec l'agencement des particules entre elles) et la surface spécifique. C'est une propriété difficile à définir puisque les particules notamment issues de la transformation des agroressources sont essentiellement des objets 3D qui ont des formes aléatoires et complexes (Barbosas-Canovas et al., 2005; Fitzpatrick, 2013). Une particule peut être décrite de façon qualitative, en utilisant des termes simples comme « régulier » ou « anguleux ». Certaines techniques d'analyse d'image en 2D permettent de définir des nombres adimensionnels pour préciser la forme d'une particule.

Des facteurs de forme comme la circularité, l'allongement, la convexité et la compacité ont été définis pour quantifier la morphologie de poudres de blé (farine et semoule). L'allongement est défini comme le ratio du diamètre de Feret (F : le diamètre maximum) de la silhouette de la particule sur le côté rectangulaire équivalent le plus court (R). La circularité est définie comme le ratio du périmètre de la silhouette (P) sur le périmètre d'un disque de même surface (A). La compacité est le ratio de la surface de la particule (A) sur la surface du plus petit rectangle pouvant contenir la silhouette (W*H). Enfin la

convexité est exprimée par le ratio de la surface de la particule (A) sur la surface de l'enveloppe la plus petite qui inclut tous les bords de la particule (A + Ac) (Castel, 1995; Saad et al., 2011) (Fig. II.1.2.1).

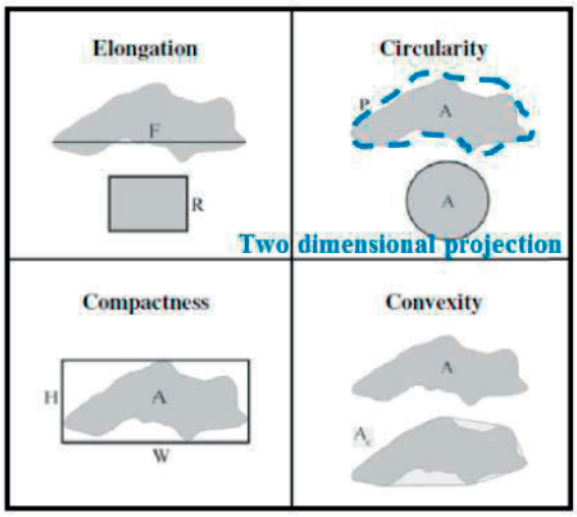


Figure II.1.2.1. Illustration des facteurs de formes définis (adaptée de Saad et al., 2011)

II.1.2.3. Porosité et masse volumique des particules

Le volume d'une particule correspond à la somme du volume de solide et du volume de vide qu'elle contient. La porosité se définit comme le rapport entre le volume des espaces vides (*i.e.* les pores) et le volume total. Elle est le facteur généralement utilisé pour décrire la microstructure interne des agglomérats constitués de l'association de particules. Dans le cas d'un matériau pulvérulent, il est nécessaire de distinguer deux types de porosité : la porosité intra-particulaire qui rend compte de l'espace vide dans les particules ou agglomérats et la porosité inter-particulaire qui rend compte de l'espace vide entre les particules ou les agglomérats (Fig. II.1.2.2).

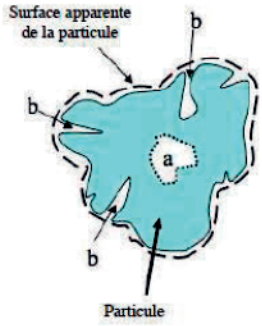


Figure II.1.2.2. Porosité intra-particulaire, pores fermés (a) et pores ouverts (b) (adaptée de Melcion et Ilari, 2003)

La porosité intra-particulaire dépend de la nature chimique mais aussi des différents traitements (thermique, mécanique, chimique, *etc.*) que la particule ou l'agglomérat subit lors de sa production alors que la porosité inter-particulaire dépend du mode de préparation de l'ensemble des particules (éboulement, chute, tassement, vibration, compression, *etc.*), de la forme, la distribution de taille et de l'aspect de surface des particules.

La masse volumique apparente d'une particule est définie comme sa masse divisée par son volume apparent. La masse volumique est une propriété importante car elle affecte la structure du lit de poudre. Si la masse est une propriété simple à mesurer, en revanche, il convient de bien préciser le volume qui est évalué. Les ratios de la masse et des différents volumes donnent lieu à différentes masses volumiques : la masse volumique réelle ou vraie (le volume considéré est celui de la masse sèche) et la masse volumique apparente (le volume considéré est le volume global de la particule).

La masse volumique réelle sèche ou solide (ρ_s^*) d'une poudre est égale à la masse seules particules solides sèches (m_s) divisée par le volume solide (V_S). Le volume solide exclu les pores intra-particulaires (Eq. II.1.2.1). La masse volumique sèche peut être déterminée à partir d'un essai au pycnomètre à hélium ou à azote :

$$\rho_s^* = \frac{m_s}{V_S} \qquad \text{(Eq. II.1.2.1.)}$$

La masse volumique apparente sèche (ρ_s) est égale au rapport de la masse solide des particules (m_s) sur le volume total de la poudre (V) (Eq. II.1.2.2). Ce volume comprend le volume de solide (V_s) et le volume des vides V_V qui comprend l'espace entre les grains et la porosité intra-particulaire si elle existe. Elle peut être déterminée à partir d'un essai à la balance hydrostatique en utilisant un liquide qui ne dissout, ne réagit ou ne pénètre pas dans la poudre étudiée.

$$\rho_s = \frac{m_s}{V} = \frac{m_s}{V_s + V_V} \qquad \text{(Eq. II.1.2.2.)}$$

II.1.2.4. Masse volumique de la poudre

La masse volumique de la poudre est égale au rapport de la masse totale sur le volume total de la poudre. Elle inclut toute forme de porosité ainsi que la masse des fluides contenus dans la poudre. Elle peut être « tassée » si le récipient contenant la poudre a subi une série de vibrations ou de chocs verticaux avant la mesure du volume de particules, « aérée » juste après avoir versé la poudre dans le récipient, ou correspondre à la moyenne des masses volumiques tassées et aérées. Elle est bornée par *(i)* la masse volumique apparente minimale qui correspond à l'arrangement minimum entre grains pour maintenir un réseau de contacts connexe et dont la valeur est donnée par la limite de fluidisation du lit de poudre, et *(ii)* la masse volumique apparente maximale qui rend compte de l'encombrement maximum des grains (le système granulaire est alors dans une configuration bloquée, dite de jamming) (Fitzpatrick, 2013).

II.1.2.5. Teneur en eau des particules

La teneur en eau est une propriété essentielle d'un milieu granulaire. Elle impacte le caractère cohésif de la poudre et influence directement certains phénomènes au cours du procédé (*e.g.* le colmatage, l'adhésion de surface, la coulabilité, *etc.*). Elle est définie soit en « base sèche » (Eq. II.1.2.3), soit en « base humide » (Eq. II.1.2.4)

$$w = \frac{\textit{Masse d'eau}}{\textit{Masse de matière sèche}} \qquad \text{(Eq. II.1.2.3.)}$$

$$w_h = \frac{\textit{Masse d'eau}}{\textit{Masse de matière sèche} + \textit{Masse d'eau}} \qquad \text{(Eq. II.1.2.4.)}$$

Elle est le plus souvent mesurée par méthode gravimétrique, c'est à dire par pesée après évaporation de l'eau dans une enceinte de séchage (Fitzpatrick, 2013).

II.1.3. Réactivité des milieux granulaires

Certains milieux granulaires issus de milieux biologiques complexes, comme les poudres alimentaires, sont des milieux granulaires biologiquement réactifs. Le procédé peut engendrer une contrainte externe (exemple : contrainte de cisaillement et apport d'eau) qui peut amener un ou des mécanismes physico-chimiques réversibles ou non réversibles (exemple pour les semoules de blé : la gélatinisation de l'amidon). Cette réactivité peut être considérée à trois échelles, à l'échelle moléculaire, à l'échelle macro-moléculaire et à l'échelle de la particule.

II.1.3.1. Echelle moléculaire

La physico-chimie d'une molécule diffère suivant la nature et la structure de ses constituants et de son caractère organique ou minéral. De manière générale, la physico-chimie des molécules est associée à leur polarité et aux interactions entre les molécules. La polarité d'une molécule affecte sa capacité à interagir avec un liquide et former des ponts liquides mis en œuvre dans le procédé d'agglomération. Les interactions moléculaires sont multiples. Il existe les interactions de faible énergie, comme les liaisons hydrogènes, hydrophobiques ou ioniques et les interactions de forte énergie comme les liaisons covalentes (Cuq et al., 2013).

II.1.3.2. Echelle macro-moléculaire

A cette échelle, la physico-chimie des poudres est définie par le degré d'organisation des molécules et macromolécules et par les mécanismes de plastification. Les molécules alimentaires existent à l'état cristallin, semi-cristallin ou amorphe en fonction des conditions du procédé. Dans les structures cristallines et semi-cristallines, les molécules sont très ordonnées. Cette organisation entraîne peu d'interactions entre les molécules et une faible mobilité des molécules. Les traitements thermiques lents (refroidissement ou chauffage) conduisent généralement à la formation de structures cristallines. Dans les structures amorphes, les molécules ne respectent aucun ordre précis. A une température donnée, le volume libre dans les structures amorphes est généralement plus élevé que dans les structures cristallines. Un traitement thermique rapide amène à la formation de structures amorphes (Cuq et al., 2013)

II.1.3.3. Echelle de la particule

La polarité de surface de la particule est liée à sa composition chimique. Il a été montré que la composition chimique de surface des poudres alimentaires peut être très hétérogène (Cuq et al., 2011; Murrieta-Pazos et al., 2012; Nijdam et Langrish, 2006). En effet, les poudres à base de blé dur, comme la semoule, sont produites après mouture des grains de blé. L'hétérogénéité des grains due à la variabilité des matières premières en agriculture se répercute sur l'hétérogénéité des poudres de blé.

Le caractère collant à la surface de la particule est un phénomène particulièrement complexe. Il dépend des paramètres du procédé et du produit. La présence d'eau à la surface des particules et la solubilisation de molécules amorphes initient le caractère collant. L'eau pénètre par capillarité au cœur des molécules poreuses. Elle pénètre par diffusion dans une molécule plus dense. La capacité d'absorption de l'eau ou de diffusion est contrôlée par le ratio cristallin / amorphe et le volume libre accessible aux molécules d'eau. Pour un temps court, l'eau est absorbée par les molécules à la surface de la particule. Le phénomène de plastification intervient localement et change le comportement rhéologique de la particule en diminuant la viscosité. Pour un temps long, l'eau est complètement absorbée par la particule. Le phénomène de plastification commence et les molécules amorphes passent dans la transition vitreuse (Cuq et al., 2013).

II.1.4. Approche hydrotexturale

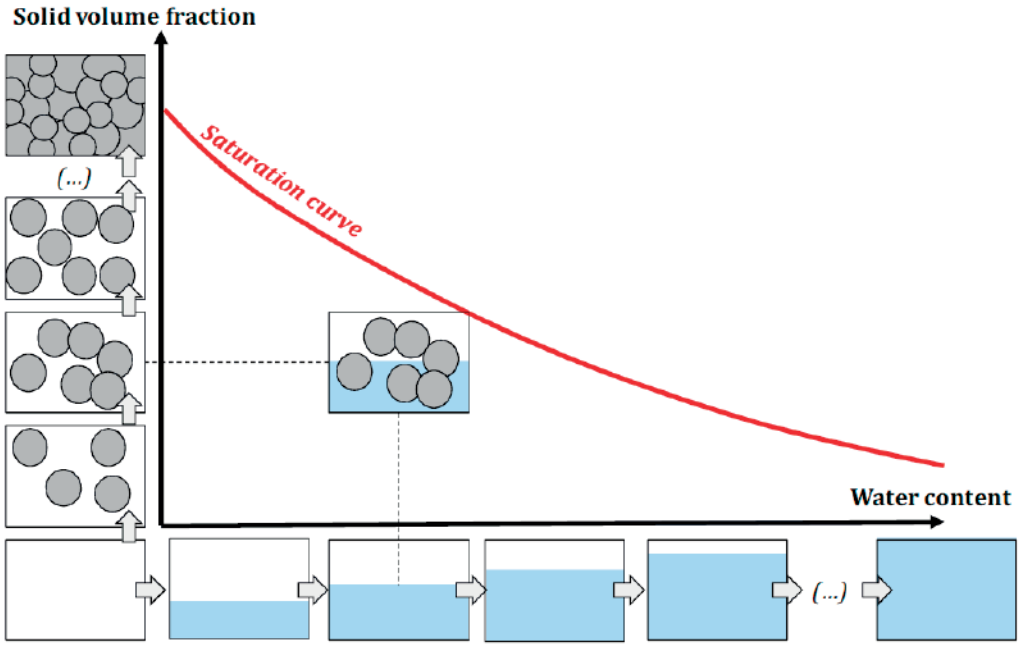


Figure II.1.4.1. Représentation schématique du diagramme hydrotextural utilise pour décrire l'agglomération humide d'un milieu granulaire (adaptée de Saad, 2011)

Les changements induits par les conditions de procédé d'un milieu granulaire peuvent être qualitativement et quantitativement étudiés grâce au suivi des propriétés morpho-granulométriques (*i.e.* distribution de taille et forme) et hydrotexturales (*i.e.* teneur en eau et compacité) des structures présentes (particules natives, nuclei, agglomérats, morceaux de pâte). Ils peuvent être conduits à deux échelles : à l'échelle d'une entité constitutive (*i.e.* les agglomérats) et à l'échelle du lit qu'elles constituent. Ruiz et al. (2005, 2011) ont développé une approche pour décrire les variations de taille, de compacité et de teneur en eau d'un milieu granulaire humide au cours de transformations sous un changement thermo-hydro-chimico-mécanique. Cette approche a notamment été adaptée à l'analyse de l'agglomération en mélangeur à faible taux de cisaillement (Rondet et al., 2009 ; Barkouti et al.,

2012). Elle est basée sur la construction du diagramme hydro-textural qui représente les variations de la compacité du milieu granulaire (aux deux échelles identifiées) en fonction de la teneur en eau du milieu (Fig. II.1.4.1), pour un chargement donné.

A température fixée, en tenant compte des masses volumiques réelles du liquide de mouillage ρ_h^* et des particules solides ρ_s^* et en négligeant la masse de la phase gazeuse ($m_g << m_s$ et m_h), trois grandeurs permettent de décrire entièrement les aspects extensifs du système. Ces trois grandeurs accessibles à la mesure sont : le volume représentatif du milieu granulaire (V), la masse d'eau (m_h) et la masse solide (m_s). Leur mesure permet de déduire les variables usuellement utilisées en science des milieux poreux : la teneur en eau (w) (Eq. II.1.4.4), la compacité (ou fraction volumique solide) (ϕ) (Eq. II.1.4.5), la porosité (ε) (Eq. II.1.4.6), l'indice des vides (e) (Eq. II.1.4.7) et le degré de saturation (S) (Eq. II.1.4.8).

$$\rho_h^* = \frac{m_h}{V_h} \quad \text{(Eq. II.1.4.1.)}$$

$$\rho_s^* = \frac{m_s}{V_s} \quad \text{(Eq. II.1.4.2.)}$$

$$d_s^* = \frac{\rho_s^*}{\rho_h^*} \quad \text{(Eq. II.1.4.3.)}$$

$$w = \frac{m_h}{m_s} \quad \text{(Eq. II.1.4.4.)}$$

$$\phi = \frac{V_s}{V} = \frac{m_s}{\rho_s^* V} \quad \text{(Eq. II.1.4.5.)}$$

$$\varepsilon = \frac{V_v}{V} = \frac{V - V_s}{V} = 1 - \phi \quad \text{(Eq. II.1.4.6.)}$$

$$e = \frac{V_v}{V_s} = \frac{V - V_s}{V_s} = \frac{1-\phi}{\phi} \quad \text{(Eq. II.1.4.7.)}$$

$$S = \frac{V_h}{V} = \frac{V_h}{V - V_s} \quad \text{(Eq. II.1.4.8.)}$$

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

$$\phi(w, S) = \frac{V_s}{V} = \frac{V_s}{V_s + V_v} = \frac{1}{1 + d_s^* \frac{w}{S}} \quad \text{(Eq. II.1.4.9.)}$$

$$\phi_{sat}(w) = \phi(w, 1) = \frac{1}{1 + d_s^* w_{sat}} \quad \text{(Eq. II.1.4.10.)}$$

$$S = \frac{\rho_s^* \phi w}{1 - \phi} = \frac{\rho_s^* w}{\frac{1}{\phi} - 1} \quad \text{(Eq. II.1.4.11.)}$$

Pour un volume et une teneur en eau fixés, l'augmentation de la fraction volumique solide du milieu granulaire signifie que le milieu incorpore du solide et expulse du gaz. Pour un volume fixé et une fraction volumique solide fixée, le degré de saturation S d'un milieu granulaire augmente avec la teneur en eau ce qui signifie que la phase gazeuse est expulsée du milieu granulaire. L'évolution de l'état hydro-textural du milieu granulaire pendant l'agglomération humide est ainsi décrite par deux paramètres : la compacité et la teneur en eau (Ruiz et al., 2005) Ce diagramme hydro-textural a été utilisé par Rondet (2008), Saad (2011), Barkouti (2012), Mandato (2012) et Hafsa (2014) pour décrire l'agglomération humide en mélangeur à faible taux de cisaillement pour des matériaux granulaires utilisés en galénique et de la semoule de blé dur.

II.1.5. Ecoulements granulaires

L'écoulement d'un solide divisé correspond au déplacement, sous l'effet de la gravité ou d'un intrant mécanique, des particules qui le compose. Les propriétés d'écoulement jouent un rôle très important. La connaissance de ces propriétés est indispensable aux équipementiers pour contrôler la constance de qualité des produits ou pour dimensionner les installations destinées à leur production.

II.1.5.1. Propriétés d'écoulement de la poudre

L'aptitude d'une poudre à s'écouler peut être évaluée par un indice d'écoulement. Cet indice peut être caractérisé par 3 approches : *(i)* empirique basée sur des mesures simples (Méthode de Carr, 1965), *(ii)* semi empirique basée sur la compressibilité de la poudre (Peleg, 1977), *(iii)* analytique basée sur l'analyse de la rupture par cisaillement des poudres (Jenike, 1964). L'indice de Carr (Eq. II.1.5.1) et l'indice de Hausner (Eq. II.1.5.2) sont définis à partir de la masse volumique vrac et tassée :

$$IC = \frac{(\rho_t - \rho_v)}{\rho_t} \qquad \text{(Eq. II.1.5.1.)}$$

$$IH = \frac{\rho_t}{\rho_v} \qquad \text{(Eq. II.1.5.2.)}$$

Où ρ_v est la masse volumique vrac et ρ_t est la masse volumique tassée. Une poudre de bonne coulabilité présente un IC inférieur à 18 et un IH inférieur à 1,25 (Castel, 1995).

II.1.5.2. Régimes d'écoulement de la poudre

Les écoulements de liquides sont décrits par des équations constitutives et des lois rhéologiques connues. Le comportement d'un liquide dans des conditions données peut donc être relativement bien prédit, associé à de la simulation numérique adéquate. En revanche, les milieux granulaires, de par leur comportement qui recouvre à la fois celui des solides, des liquides et des gaz sont encore le sujet de nombreuses recherches (Mansouri et al., 2009; Pouliquen et al., 2012; Wagner, 2013). Différents régimes d'écoulement des milieux granulaires ont néanmoins pu être mis en évidence. Le régime quasi-statique dense où les déplacements sont très lents et les particules interagissent par des contacts frictionnels. Il est usuellement décrit en utilisant des théories de plasticité (Forterre et Pouliquen, 2008). Le régime gazeux où les déplacements sont très rapides et les particules interagissent par collision. Ce régime a motivé de nombreuses recherches basées sur le concept de la théorie cinétique des gaz (Ding et Gidaspow, 1990; Gollin et al., 2017; Jaeger et al., 1996; Lun et al., 1984). Enfin le

régime liquide intermédiaire où le matériel est dense mais coule toujours comme un liquide.

Les études sur les écoulements sous cisaillement homogène des milieux granulaires secs proposent de décrire le comportement du matériau en régime inertiel et stationnaire en fonction d'un nombre adimensionnel I (Eq. II.1.5.3), appelé nombre inertiel (Da Cruz, 2004) :

$$I = \dot{\gamma}\sqrt{\frac{m}{P}} \qquad \text{(Eq. II.1.5.3.)}$$

où $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement, P est la pression moyenne au sein de la couche cisaillée et m est la masse d'une particule.

Le nombre inertiel peut être interprété comme le rapport entre deux échelles de temps : le temps caractéristique de cisaillement $(1/\dot{\gamma})$ et le temps caractéristique de réarrangement d'une particule soumise à la pression P $(m/P)^{1/2}$)(Koval, 2008). Le régime quasi-statique (I<0.01) est caractérisé par un réseau dense de contacts maintenus. Il correspond à l'état critique en mécanique des sols et il est caractérisé par une compacité maximale et un frottement interne. A mesure que I augmente, c'est-à-dire lorsque le taux de cisaillement augmente et/ou la pression diminue, le milieu se dilate légèrement, le nombre de coordination diminue et la proportion de collisions augmente jusqu'à un régime dynamique purement collisionnel (I > 0.2). La transition entre les régimes quasi-statique et dynamique se fait de manière progressive par l'intermédiaire du régime frictionnel intermédiaire ($0.01 < I < 0.2$). Il est constaté empiriquement que le coefficient de friction effectif (μ) est dépendant du nombre inertiel selon une tendance linéaire (Da Cruz, 2004; Pouliquen, 2004).

L'étude des systèmes réels est souvent complexe et donne rarement accès à la compréhension des mécanismes fondamentaux qui régissent le comportement des milieux granulaires. C'est pour cette raison que les études expérimentales utilisent souvent des dispositifs simplifiés bien que cela ne signifie pas que le comportement des particules soit simple à interpréter. Différents types de dispositifs sont utilisés pour analyser les écoulements de particules. Ils sont classés en deux catégories : les dispositifs à écoulements granulaires confinés, dans des cellules de mesures ou des silos et les dispositifs à écoulement à surface libre avec les plans inclinés ou les tambours tournants (Fig. II.1.5.1) (Forterre et Pouliquen, 2006).

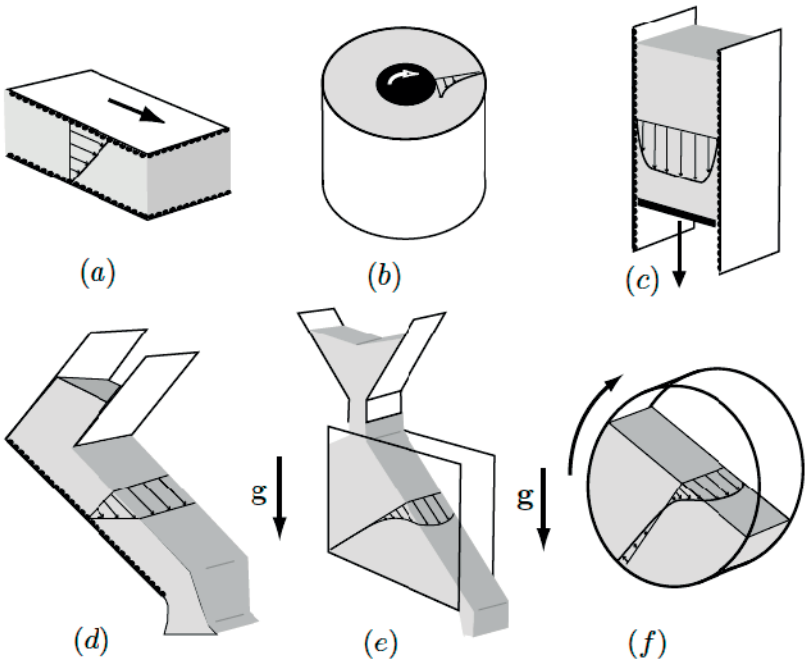


Figure II.1.5.1. Les différentes configurations utilisées pour étudier les écoulements granulaires : une cellule de cisaillement (a), une cellule de Couette (b), un silo vertical (c), un plan incliné (d), un écoulement en tas (e), un tambour tournant (f) (adaptée de Forterre et Pouliquen, 2006)

II.1.5.3. Cas du tambour tournant

Ce travail de thèse a fait l'objet d'une étude sur un tambour rotatif qui permet le roulage et la classification des agglomérats de couscous. Un tambour rotatif est un cylindre en rotation autour d'un axe central. Il peut être incliné de quelques degrés ou pas. Très utilisé dans les industries (la chimie, la métallurgie ou l'agroalimentaire) qui traitent des milieux granulaires, il est mis en œuvre pour réaliser des opérations de mélange, de tamisage, de chauffage, de séchage *etc*. Ce un dispositif fait l'objet de nombreuses études (Felix, 2002). Le taux de remplissage, la longueur du cylindre et la vitesse de rotation sont les trois principaux paramètres considérés.

D'après Mellmann (2011), six régimes d'écoulement peuvent apparaître dans un tambour tournant, en fonction de la vitesse de rotation ω du tambour (Fig. II.1.5.2).

Régime de glissement - L'état de glissement se produit souvent à de faible vitesse de rotation (< 1 rpm) et un faible taux de remplissage. Le tas reste en bloc et glisse sur la paroi du tambour. Ce comportement se produit avec une friction faible entre les particules et la paroi. Le lit glisse alternativement vers le haut et le bas de la paroi du cylindre tournant (appelé aussi "stick-slip"), avec un mouvement relatif faible entre les particules.

Régime d'avalanche ou écoulement intermittent - Le régime d'avalanche ("slumping") se produit aussi à de faibles vitesses de rotation. La rotation lente du tambour entraîne une augmentation progressive de l'angle que fait la surface libre avec l'horizontale, car contrairement à la surface libre horizontale que prend un liquide loin des bords, c'est la forme d'un tas qui est adoptée pour un empilement granulaire. Le tas tourne en bloc tel un solide jusqu'à un angle critique d'écoulement qui dépend des propriétés du milieu, puis la surface libre se déstabilise et une avalanche se produit, quelques couches de grains à la surface s'écoulent et ramènent la pente à un angle inférieur. L'angle maximum de stabilité du tas est appelé angle d'avalanche. Après l'avalanche, la surface libre de l'empilement granulaire se stabilise en un tas dont l'angle est sensiblement plus petit, appelé angle de repos ou angle de talus.

Régime d'écoulement continu - Quand la vitesse de rotation du tambour dépasse une vitesse critique qui correspond au fait que le temps d'intervalle entre deux avalanches devient de plus en plus petit jusqu'à s'annuler, l'empilement granulaire est alors en régime d'écoulement continu ("rolling"). Dans le régime d'écoulement continu, la région active à une forme parabolique et représente environ 15 à 20% de la profondeur totale du tas. L'angle que fait la surface avec l'horizontale est dénommé angle de repos dynamique de la matière granulaire. Ce régime d'écoulement est le plus répandu dans les opérations industrielles car le mélange des particules semble le plus efficace.

Régime d'écoulement en cascade - Quand la vitesse de rotation augmente encore, un régime d'écoulement continu à surface incurvée en S est atteint, il est dénommé cascade (« cascading »).

Régime de cataracte - En augmentant encore la vitesse de rotation, les particules à la surface s'écoulent tellement vite qu'une cataracte (« cataracting ») se produit.

Régime de centrifugation - La centrifugation (« centrifuging ») se produit à des vitesses de rotation encore plus élevées, lorsque la force centrifuge sur la paroi est supérieure à la gravité. Les particules restent alors plaquées contre la paroi (Huang X., 2013).

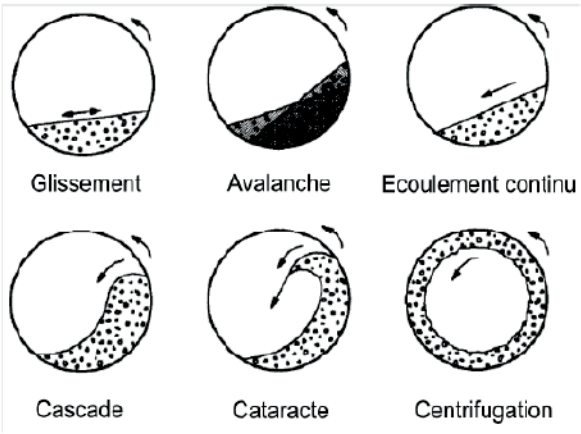


Figure II.1.5.2. Les différents régimes d'écoulement observés en tambour tournant

Le nombre de Froude (Eq. II.1.5.4) permet de décrire les transitions entre chaque régime. Ce nombre adimensionnel représente le rapport des forces inertielles sur la force gravitaire.

$$Fr = \frac{\Omega^2 R}{g} \qquad \text{(Eq. II.1.5.4.)}$$

Où Ω (=2πω/60) est la vitesse de rotation angulaire du tambour, R le rayon du tambour, ω la vitesse de rotation en tour par minute et g l'accélération de la pesanteur.

Ce nombre de Froude est fréquemment adapté pour tenir compte d'un ou plusieurs paramètres influant sur la transition de régime comme la hauteur de remplissage, le rapport diamètre du tambour sur diamètre des particules D/d ou les caractéristiques du milieu granulaire utilisé (friction particules/parois, coefficient de friction interne, angles de repos statique et dynamique du matériau etc.) (Felix, 2002). Il est égal à 1 pour le régime de centrifugation et il est largement inférieur à 1 pour des régimes d'écoulement continu et d'avalanche. Le Tableau II.1.5.1, réalisé par Mellmann (2001), regroupe les critères de transition entre les différents régimes du mouvement.

La caractérisation des écoulements dans un tambour tournant se réalise par différentes mesures. Les angles d'avalanche et de talus en régime d'écoulement continu (> 1 rpm), l'épaisseur de zones d'écoulement et les profils de vitesses en régime d'écoulement continu ainsi que les influences des propriétés granulométriques et morphologiques des particules sont principalement étudiés.

Table II.1.5.1.

Critères de transition entre les différents régimes du mouvement (adapté de Mellmann, 2001)

Basic form	Slipping motion		Cascading ("tumbling") motion			Cataracting motion	
Subtype	Sliding	Surging	Slumping	Rolling	Cascading	Cataracting	Centrifuging
Schematic							
Physical process	Slipping		Mixing			Crushing	Centrifuging
Froude number Fr [-]	$0 < Fr < 10^{-4}$		$10^{-5} < Fr < 10^{-3}$	$10^{-4} < Fr < 10^{-2}$	$10^{-3} < Fr < 10^{-1}$	$0.1 < Fr < 1$	$Fr \geq 1$
Filling degree f [-]	$f < 0.1$	$f > 0.1$	$f < 0.1$	$f > 0.1$		$f > 0.2$	
Wall friction coeff. μ_w [-]	$\mu_w < \mu_{w,c}$	$\mu_w \geq \mu_{w,c}$	$\mu_w > \mu_{w,c}$			$\mu_w > \mu_{w,c}$	
Application	no use		Rotary kilns and reactors; rotary dryers and coolers; mixing drums			Ball mills	no use

II.2. Agglomération par voie humide

L'agglomération est une opération unitaire au cours de laquelle des particules natives sont assemblées pour former des structures de taille supérieure. Ces structures sont appelées des agglomérats. L'agglomération par voie humide est un type d'agglomération où un liquide est pulvérisé sur un lit de poudre agité. Ce procédé complexe met en jeux de nombreux paramètres physiques et physico-chimiques et il est utilisé dans des domaines d'application très différents (industries chimiques, pharmaceutiques, agroalimentaires, activités minières *etc.*). L'agglomération par voie humide est, de fait, très étudiée à ce jour par la communauté scientifique internationale (Ennis et al., 1991; Iveson et al., 2001; Palzer, 2011; Cuq et al., 2013; Rondet et al., 2016). Les enjeux relatifs à une amélioration des performances et à un contrôle accru des caractéristiques du produit fini sont capitaux.

II.2.1. Mécanismes de l'agglomération par voie humide

La théorie classique (Iveson et al., 2001) décrit l'agglomération humide dans des mélangeurs à fort taux de cisaillement comme une succession de trois étapes. La première étape est le mouillage et la nucléation au cours de laquelle le liquide est mis en contact avec la poudre sèche. L'étape suivante est la croissance et la consolidation où les agglomérats croissent et deviennent plus compacts. Enfin la dernière étape est l'usure et la rupture des agglomérats mouillés ou secs qui se cassent sous l'effet des impacts (Fig. II.2.1.1) dans le bol du granulateur. Les travaux récents menés par Rondet et al. (2010) dans des mélangeurs à faible taux de cisaillement décrivent au contraire l'agglomération comme une succession de deux étapes sans consolidation. La première étape est le mouillage et la nucléation au cours de laquelle les modèles de croissance fractale (les noyaux) sont construits et la deuxième étape est la croissance par coalescence qui montre un comportement de structuration fractale.

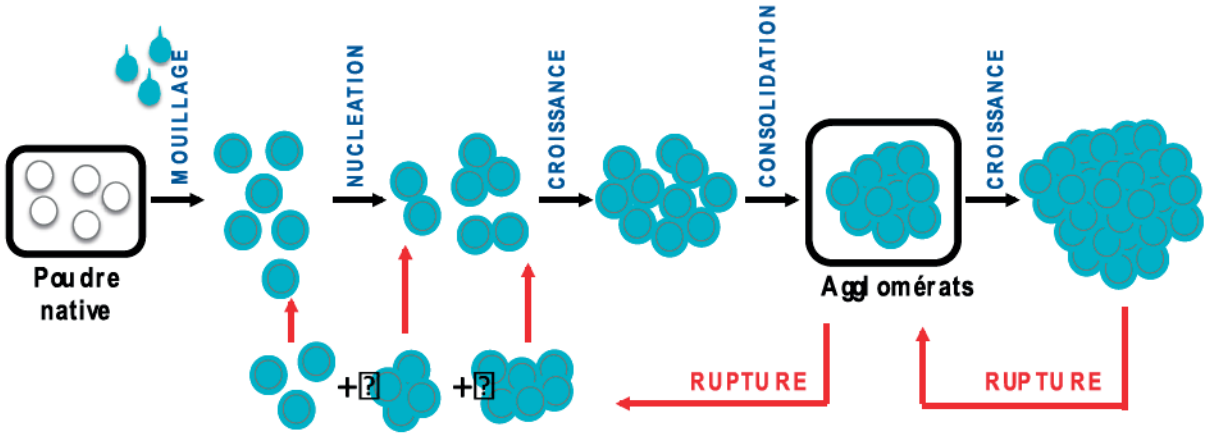


Figure II.2.1.1. Schéma des mécanismes impliqués dans l'agglomération par voie humide (adaptée de Cuq et al., 2013)

II.2.1.1. Mouillage et nucléation

Le mouillage consiste à apporter un liquide au contact de la poudre sèche et à le distribuer de façon homogène au sein de cette poudre. Cette opération permet la formation des premiers nucléi. La distribution du liquide doit être considérée à deux échelles : à l'échelle du lit de poudre où elle dépend des paramètres du mélange et à l'échelle de la particule où elle est fonction de la capillarité à l'interface

des particules (Saleh et Guigon, 2009b). La nucléation correspond à la formation de structures primaires, les nucléi, issues de l'assemblage de quelques particules natives. Ces particules sont stabilisées entre elles par la formation de ponts liquides.

Deux mécanismes de nucléation ont été identifiés en fonction de la taille des gouttes du liquide de mouillage. Un mécanisme de distribution, dans lequel la taille des gouttes est inférieure à la taille des particules natives. Une fine couche de liant entoure les particules natives et la nucléation est promue par l'agitation mécanique et la formation de ponts liquides entre les particules mouillées. Les nucléi sont caractérisés par une structure poreuse. Un mécanisme de nucléation par immersion, dans lequel la taille des gouttes est largement supérieure à la taille des particules natives. La nucléation est promue immédiatement et une goutte d'eau permet la formation d'un nucléi. Le nucléi est saturé en liant et caractérisé par une structure plus compacte. Enfin lorsque le rapport entre la taille des gouttes et la taille des particules natives est proche de 1, il est considéré que les deux mécanismes occurrent dans le malaxeur (Iveson et al., 2001).

II.2.1.2. Croissance

Au cours de la phase de croissance, les nucléi interagissent par des collisions aléatoires pour former des structures de taille supérieure : les agglomérats. Ce mécanisme d'agglomération est dominé par les conditions du procédé et la quantité de liquide ajoutée (Ax et al., 2008). A la suite des impacts entre les agglomérats ou avec les pales et la paroi du mélangeur, les caractéristiques hydro-texturales des agglomérats évoluent et leur degré de saturation en eau s'accroît. La croissance des agglomérats dépend de leur capacité à se déformer, à résister aux collisions et au broyage induit par la pale et le bol et enfin, de la disponibilité en liquide à leur surface.

Les deux principaux phénomènes susceptibles d'entraîner la croissance des agglomérats sont le « layering » et la « coalescence ». Le « layering » consiste en l'adhésion de particules ou de petits agglomérats à la surface d'un agglomérat de plus grande taille. La « coalescence » correspond à la rencontre de deux entités du même ordre de taille. Deux types de croissance peuvent être observées suivant la nature du liant de granulation, les caractéristiques des particules formant les agglomérats et les propriétés mécaniques de ces derniers (Iveson et Litster, 1998) : les systèmes à croissance continue où la taille de l'agglomérat augmente linéairement avec le temps et les systèmes à croissance après induction où il existe une période durant laquelle la croissance ne se manifeste que faiblement. Au cours de la croissance, une collision entre agglomérats ne peut conduire à leur coalescence que si l'énergie cinétique de collision est complètement dissipée lors de l'impact (choc non-élastique). Ce mécanisme peut avoir deux sources : *(i)* une dissipation visqueuse suite aux déplacements des agglomérats dans la couche liquide et *(ii)* une déformation plastique des agglomérats au moment de la collision, au point de contact solide-solide.

II.2.1.3. Consolidation

Le mécanisme de consolidation renforce les agglomérats. Les impacts entre ces derniers diminuent leur porosité interne et leur taille par éjection du liant à leur surface. La migration du liant renforce d'un côté le caractère collant et la capacité de coalescence des agglomérats. D'un autre côté, le mécanisme de consolidation limite la capacité de déformation des agglomérats et diminue leur capacité de coalescence (Bika et al., 2001).

II.2.1.4. Rupture et usure

Le mélange du lit de poudre amène également des mécanismes de désintégration et de rupture des agglomérats. Les agglomérats formés se fragmentent lorsque les forces de rupture dépassent les forces de liaisons des nucléi. C'est un mécanisme essentiel puisqu'il permettrait une « re-distribution » du liquide de mouillage entre les différentes classes de taille d'agglomérats (Knight, 2004). La rupture influence voire contrôle la distribution granulométrique finale (Reynolds et al., 2005), la taille maximale des agglomérats (Watano et al., 1995; Knight et al., 2000) ainsi que leur résistance mécanique (Van Den Dries et al., 2003). Les conditions de rupture sont cependant complexes et restent difficiles à prédire quantitativement. Il est à noter qu'un procédé d'agglomération en voie humide nécessite un déséquilibre entre les mécanismes de croissance et de rupture des agglomérats en faveur de la croissance de façon à créer des agglomérats.

II.2.2. Régimes d'agglomération

L'étude des procédés d'agglomération particulaires nécessite une approche multi-échelle (produit - procédé - processus) où la qualité du produit final est déterminée à l'échelle microscopique (échelle de la particule), mésoscopique (échelle de l'agglomérat) et macroscopique (échelle du procédé).

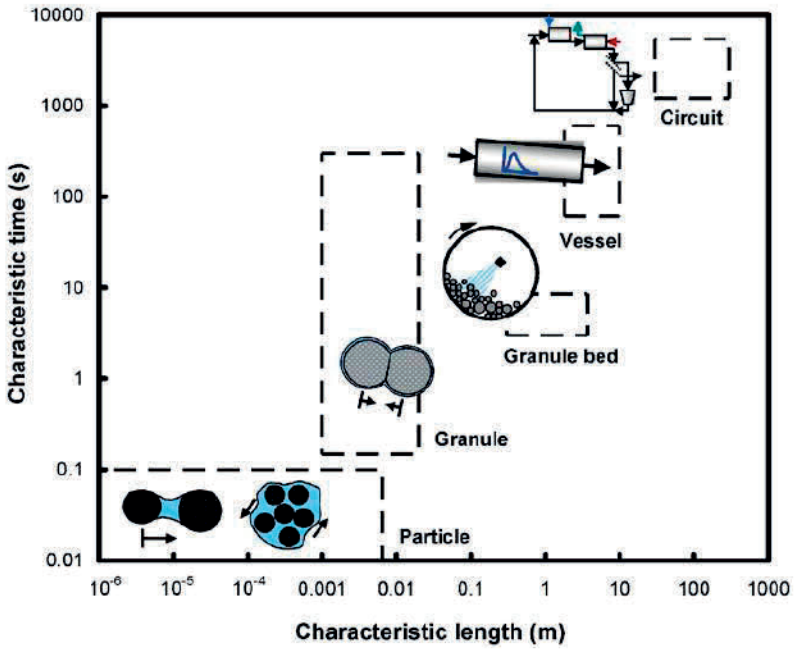


Figure II.2.2.1. Carte multi-échelles d'un processus d'agglomération (Ingram et Cameron, 2004)

Ingram et Cameron (2004) ont établi par exemple une carte multi-échelles (Fig. II.2.2.1) qui représente les échelles de temps caractéristiques et de longueur caractéristiques d'un système d'agglomération. La littérature fait état de plusieurs travaux qui aident à définir et à améliorer la maîtrise des différents mécanismes au cours de la nucléation, de la croissance et de la consolidation, dont voici quelques éléments de synthèse.

II.2.2.1. Régimes de nucléation

Hapgood, Litster, et Smith (2003) ont défini 3 régimes majeurs de nucléation : un régime de nucléation contrôlé par la goutte, un régime de nucléation contrôlé par la dispersion mécanique et un régime intermédiaire. Ces derniers sont représentés sur la carte des régimes de nucléation (Fig. II.2.2.2).

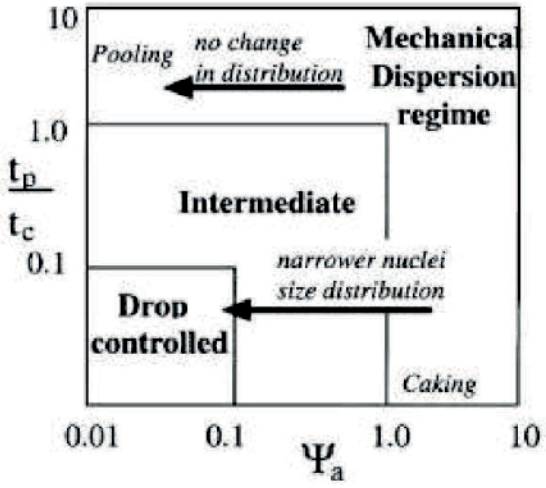


Figure II.2.2.2. Carte des régimes de nucléation (Hapgood et al., 2003)

L'axe des ordonnées représente le rapport entre le temps de pénétration (*tp*) de la goutte et le temps de circulation de la particule (*tc*) dans le mélangeur. L'axe des abscisses représente le flux d'atomisation adimensionné (Ψa : Eq. II.2.2.1). Le flux d'atomisation adimensionné est un nombre adimensionnel qui représente le rapport de la vitesse d'aspersion d'une aire liquide mouillante et de la vitesse de circulation d'une aire solide mouillable ($\dot{V}$ est le débit volumique de la buse, $\dot{A}$ est le flux surfacique de poudre traversant la zone de mouillage, $d_d$est la taille moyenne des gouttes produites par la buse). Il permet de mieux représenter les conditions opératoires relatives à la zone de mouillage.

$$\Psi_a = \frac{3\dot{V}}{2\dot{A}d_d} \qquad \text{(Eq. II.2.2.1.)}$$

Ψa est un outil qui rend compte à la fois la qualité de la distribution du liquide et le type de mécanisme de nucléation. Une valeur faible (<0.1) assure une bonne dispersion du liant. Une valeur élevée (>1) rend la nucléation difficile à contrôler car le débit du liant est supérieur à celui de la poudre (Litster et al., 2001). Dans le régime contrôlé par la goutte, le liquide pénètre dans le réseau poral généré par les particules de poudre presque instantanément et la distribution de taille des nuclei reflète celle des gouttes. Dans le régime intermédiaire, plus difficile à contrôler, la dynamique de pénétration de la

goutte et les forces de cisaillement générant la dispersion ont une importance égale sur la nucléation. La relation entre la distribution de la taille des gouttes et la distribution de taille des nuclei va disparaître progressivement jusqu'au régime de dispersion mécanique (lorsque Ψa > 1) où la nucléation et la dispersion du liant interviennent grâce à l'agitation (Hapgood et al., 2003). Cette carte présente l'avantage de s'approcher d'une relation fonctionnelle faisant intervenir des variables opératoires directement ajustables (*e.g.* vitesse d'agitation, débit de liquide, angle de pulvérisation du liquide, *etc.*). Cependant, elle est peu utilisée par les industriels car la détermination de certains paramètres, comme le temps de pénétration ou le temps de passage des particules, ne peut être distinctement établie face à la variabilité des produits. Il est à noter également que par un manque de données quantitatives, les limites précises entre les différents régimes sont encore mal définies.

Ruiz (2012) propose une adaptation du flux spray adimensionné, en intégrant deux caractéristiques importantes dans le processus de nucléation : le diamètre relatif des grains versus celui des gouttes et la compacité du lit. Ruiz (2012) définit le rapport entre la surface mouillante d'une goutte et la surface mouillable d'un grain par : $\zeta = \frac{S_{md}}{S_{mp}}$. En supposant que l'aire mouillable de chaque particule soit égale à l'aire d'une sphère de diamètre équivalent : $S_{mp} = \pi d_p^2$. Il vient $S_{mp} \propto d_{dp}^2$ avec $d_{dp} = \frac{d_d}{d_p}$, le rapport entre les diamètres médian de goutte et de grain. Le spray flux adimensionné, lorsque le système de convoyage du lit granulaire est un bandeau linéaire de largeur L avançant à la vitesse v_p, s'écrit alors de la façon suivante :

$$\Psi = \frac{6\dot{V}}{L v_p \phi d_{dp}^2 \mathrm{d_d}} \qquad \text{(Eq. II.2.2.2.)}$$

Des travaux menés par Wildeboer et al. (2007), ont permis de modéliser la distribution de taille des nuclei dans le régime de nucléation contrôlé par la goutte et dans le régime de transition ainsi que d'étudier l'influence des différents paramètres opératoires sur la variation de la répartition de taille des nuclei.

$$K_a = \frac{a_n}{a_d} \qquad \text{(Eq. II.2.2.3.)}$$

a_n et a_d sont les valeurs projetées des aires des nuclei et des aires des gouttes. La valeur de K_a est dépendante de la nature du liant et de celle de la poudre. Ceci montre que, dans le cadre du contrôle de l'opération de nucléation, une grande attention doit être portée sur la nature de l'association entre le liant et les particules (Rondet, 2008).

II.2.2.2. Régimes d'agglomération - croissance

Le modèle de Ennis, Tardos, et Pfeffer (1991) concerne la coalescence d'agglomérats non déformables. Ce modèle prévoit qu'il y aura coalescence quand le nombre de Stokes St est inférieur à une valeur seuil St' donnée par la relation ci-dessous :

$$S_t = \frac{8\rho U_0 a}{9\mu} \qquad \text{(Eq. II.2.2.4.)}$$

$$S_{t'} = \left(1 + \frac{1}{e}\right) ln\left(\frac{h}{h_a}\right) \qquad \text{(Eq. II.2.2.5.)}$$

Dans l'équation II.2.2.4, ρ, U_0, a et μ représentent respectivement la densité des particules, la vitesse des collisions, le rayon des particules et la viscosité du liant ; e, h, h_a représentent respectivement l'épaisseur de la couche de liquide, la hauteur caractéristique des aspérités de surface et le coefficient de restitution. Selon la valeur de S_t et S_t' , trois régimes de croissance sont observés : lorsque $S_t << S_t'$, toutes les collisions conduisent à une coalescence quelle que soit la taille des agglomérats, il s'agit du régime non-inertiel ; lorsque $S_t > S_t'$, il s'agit d'un régime inertiel et l'aptitude à la coalescence va dépendre de la taille des agglomérats entrant en collision ; enfin quand $S_t >> S_t'$, le système atteint le régime de dépôt, à ce stade, aucune collision ne conduit à la coalescence. Ce modèle permet de prédire la taille maximale des agglomérats susceptibles de coalescer. Il n'informe cependant pas sur la cinétique de consolidation qui va être fonction de la fréquence des collisions entre les agglomérats (Barkouti et al., 2014).

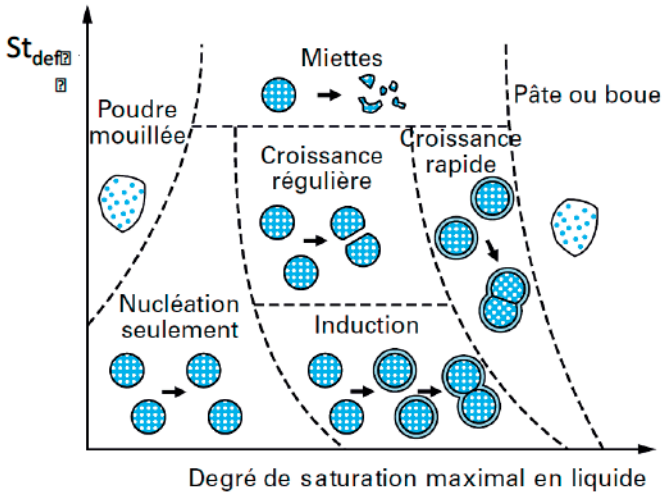


Figure III.2.2.3. Carte des régimes d'agglomération d'après Saleh et Guigon (2009b) adaptée de Iveson et Litster (1998b)

Iveson et al. (2001) ont introduit la carte des régimes d'agglomération croissance à partir de la saturation maximale (S_{max}) des pores en liquide et le nombre de Stocke (St_{def}). La carte des régimes d'agglomération représente plusieurs régimes d'agglomération (Fig. II.2.2.3). Elle permet de décrire les régimes de croissance d'agglomérats déformables, en fonction du taux de saturation maximale des pores des agglomérats et de la déformation de ces derniers au cours des collisions successives dans le bol. Ce modèle de croissance permet de prédire la taille maximale accessible aux agglomérats en fin de procédé et l'effet des différentes variables sur leur croissance. Cependant, il est peu utilisé industriellement pour contrôler le procédé d'agglomération (Iveson et al., 2001) car la définition de certains paramètres, tout particulièrement ceux relatifs à la rhéologie des milieux, à la fréquence, ainsi qu'à la vitesse des impacts est compliquée.

$$St_{def} = \frac{\rho_g U_c^2}{2Y_g} \qquad \text{(Eq. II.2.2.6.)}$$

U_c est la vitesse des collisions dans le malaxeur, ρ_g est la densité des agglomérats, Y_g est le seuil de contrainte plastique.

$$S_{def} = \frac{w\rho_s(1-\varepsilon_{min})}{\rho_l \varepsilon_{min}} \quad \text{(Eq. II.2.2.7.)}$$

w est la teneur en eau, ρ_s est la densité du solide, ρ_l est la densité du liquide, ε_{min} est la porosité minimale des agglomérats.

II.2.2.3. Régime de consolidation

Le modèle de Ennis, Tardos, et Pfeffer (1991) envisage pour sa part l'effet de la viscosité du liant sur la consolidation. Il prédit que la consolidation augmente à chaque collision selon la loi :

$$\frac{\Delta_x}{h} = 1 - \exp(-S_t) \quad \text{(Eq. II.2.2.8.)}$$

Δx représente la réduction de l'espace interparticulaire h et St est le nombre de Stokes. Ainsi, l'augmentation de la viscosité du liant et la diminution de la taille des particules va diminuer la vitesse de consolidation. A l'opposé, l'augmentation de l'énergie des impacts va augmenter la vitesse de consolidation.

II.2.3. Diagramme hydrotexural

Les mécanismes de l'agglomération par voie humide ont également été étudiés grâce à l'approche hydrotexturale (Ruiz et al., 2005) en particulier dans le cas des procédés impliquant de faibles taux de cisaillement.

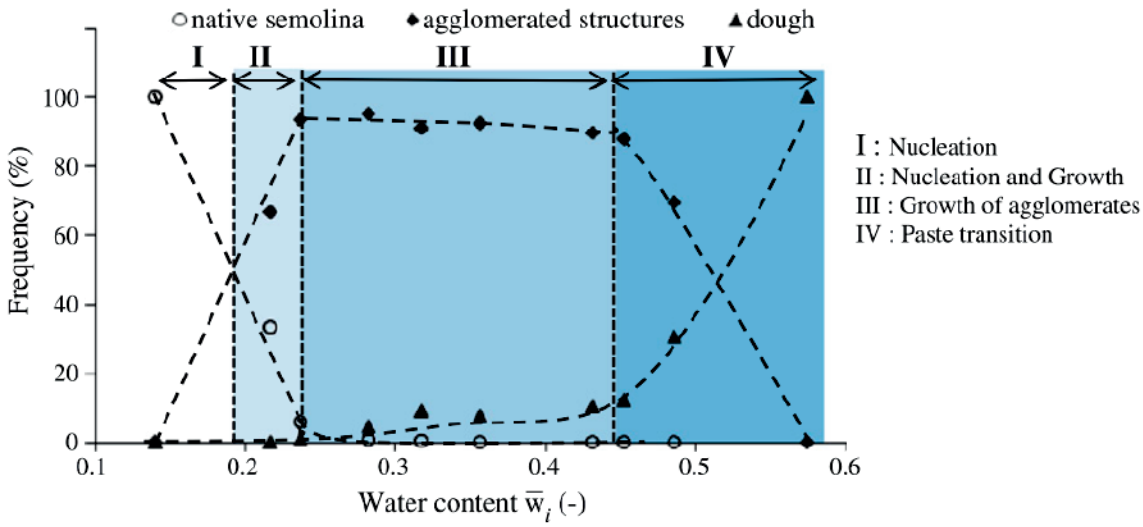
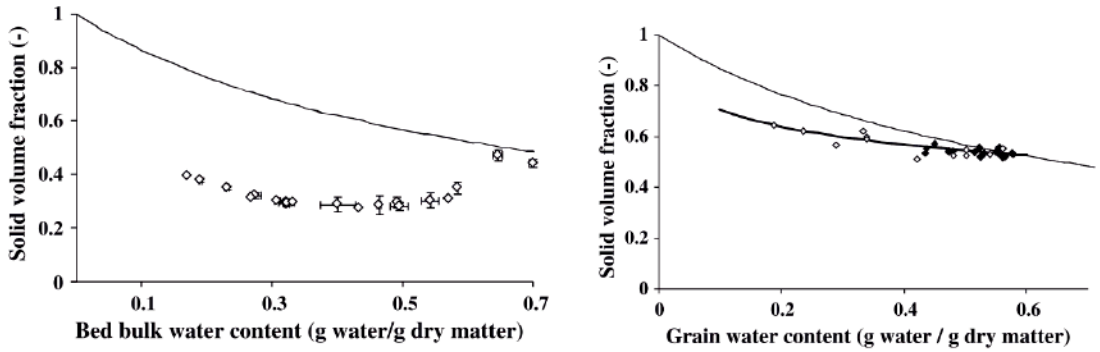


Figure II.2.3.1. Evolution des populations en fonction de la teneur en eau du lit de poudre (adaptée de Barkouti et al., 2014)

Cette approche prend en compte quatre paramètres : la teneur en eau, la taille, la compacité et le degré de saturation des agglomérats (Rondet et al., 2008). Ces paramètres permettent de décrire les mécanismes d'agglomération à l'échelle du lit de poudre et à l'échelle des agglomérats.

Saad et al. (2011) et Barkouti et al. (2014) ont étudié les mécanismes de l'agglomération de poudre de blé à partir de cette approche hydrotexturale. Ils montrent que l'agglomération en voie humide de particules de semoule comprend 4 étapes majeures. La nucléation est la première étape, au cours laquelle le milieu n'est composé que de particules de semoules natives et de nucléi. Les nucléi sont caractérisés par une teneur en eau dont la valeur est proche de la limite de capillarité ($w_{cap} \approx 0.21$) et la taille moyenne est de l'ordre de 600 µm. Lorsque la teneur en eau augmente, les agglomérats apparaissent dans le milieu. Ils résultent de l'association des nucléi. Les agglomérats ont une teneur en eau plus élevée et une compacité plus faible. Cette étape est appelée la nucléation croissance, le milieu est alors composé de particules de semoule, de nucléi et d'agglomérats et la teneur en eau moyenne se situe autour de $w \approx 0.25$. A saturation, les agglomérats s'associent entre eux pour former des morceaux de pâte. A la teneur en eau proche de $w_p \approx 0.59$ (le seuil de percolation), l'ensemble du milieu granulaire entre en transition pâteuse et forme une seule et même entité appelée morceau de pâte (Fig. II.2.3.1).



a) b)

Figure II.2.3.2. Evolution de la fraction volumique solide (compacité) en fonction de la teneur en eau, échelle du lit (a) et échelle du grain (b) (Saad et al., 2011).

A l'échelle du lit, la fraction volumique solide en fonction de la teneur en eau suit une évolution en trois phases : foisonnement, densification et dilution, tandis qu'à l'échelle des agglomérats, la nucléation croissance entraine une diminution de la fraction volumique solide et une augmentation du diamètre médian pendant le mouillage (Fig. II.2.3.2) (Barkouti et al., 2014; Saad et al., 2011). Ces résultats montrent que les agglomérats ne se consolident pas pendant la croissance contrairement au cas décrit lors de mélange avec de forts taux de cisaillement (Iveson et al., 2001). Au contraire, la croissance est associée à une expansion relative de leur structure interne et une incorporation de vide. Au cours de la croissance le liquide ajouté remplit progressivement le réseau de pores des agglomérats. L'augmentation du degré de saturation, analysée par l'écart entre la courbe de saturation et la courbe texturale des structures agglomérées, montre que le remplissage du réseau de pores se produit plus rapidement que son expansion de volume. Ces deux phénomènes (croissance et expansion) ne sont généralement pas observés dans un mélangeur à fort cisaillement. Il a été démontré expérimentalement qu'au cours de l'agglomération par voie humide, la relation entre la compacité et le diamètre médian

des agglomérats suit une loi puissance, caractéristique des structures fractales. Ce phénomène de croissance fractale est décrit par Rondet et al. (2010) et Barkouti et al. (2014).

II.2.4. Modèle fractal

L'agrégation de colloïdes, qui a fait l'objet de très nombreuses études (Jullien and Botet, 1987; Vicsek, 1983), met en lumière l'existence de processus d'agrégation s'effectuant par « itérations successives à partir d'un motif élémentaire », le générateur, lui-même constitué par l'association d'éléments d'échelle inférieure : les initiateurs. Les structures formées présentent une géométrie fractale et peuvent simplement être décrites par l'évolution de leur fraction volumique (ϕ) qui est une fonction décroissante en loi puissance d'une de leur dimension caractéristique. Dans le cas de mécanisme d'agglomération, la dimension caractéristique est la taille des agglomérats qui peut être représentée en première approximation par le diamètre médian. Rondet (2008) et Saad et al. (2011) ont mis expérimentalement en évidence que la description de la phase d'agglomération peut être envisagée comme un processus de type fractal, respectivement dans le cadre d'agglomération de poudre utilisée en galénique et de semoule de blé dur. Avec l'augmentation de teneur en eau, les agglomérats incorporent de plus en plus de vide alors que leur diamètre et leur volume augmentent. Ils ont mis en évidence expérimentalement que l'agglomération obéit à une loi puissance applicable aux structures fractales (Eq. II.2.4.1).

$$\phi = A_i d_{50}^{D_f - 3} \qquad \text{(Eq. II.2.4.1.)}$$

Où D_f est la dimension fractale et A_i est un préfacteur, caractérisant l'amplitude, dépendant des grandeurs retenues et de leur mode de détermination.

Afin de donner une signification physique au préfacteur de la loi fractale, Rondet et al. (2010) ont introduit une dimension caractéristique, en définissant d_{50}^{N}comme le diamètre du nucleus, générateur de la structure ultérieure de l'agglomérat et Φ_N comme la compacité du nucléus. Cette relation est définie dans l'équation ci-dessous :

$$\phi_a = \phi_N \left(\frac{d_{50}}{d_N^{50}}\right)^{Df-3} \qquad \text{(Eq. II.2.4.2.)}$$

II.2.5. Technologies pour l'agglomération en voie humide

Les technologies pour l'agglomération humide reposent sur l'agitation des particules et la dispersion du liquide de mouillage. Les appareils utilisés pour l'agitation des particules présentent l'avantage de pouvoir opérer avec des poudres dont la distribution granulométrique est très large. Ils permettent une bonne distribution des liants plus ou moins visqueux. Les mélangeurs bousculent l'ordre des constituants pour former des volumes unitaires contenant chacun une partie homothétique des entités présentes dans la cuve. D'autre part, ils permettent de rapprocher ces entités, afin de donner au matériau des propriétés homogènes. Les paramètres opératoires autour du mode d'apport de l'énergie mécanique et du liquide de mouillage impactent fortement les mécanismes lors de l'agglomération de poudres.

II.2.5.1. Equipements pour l'apport d'énergie mécanique

Nous distinguons deux types de technologies pour l'apport d'énergie mécanique: l'agitation pneumatique (lit fluidisé à base conique, ou à fond tournant, à jet de vapeur...), qui utilise un courant d'air chaud pour agiter et sécher les agglomérats et l'agitation mécanique conduite soit dans des mélangeurs à parois rotatives (assiette tournante, tambours rotatifs...) soit dans des mélangeurs à mobiles d'agitation (mélangeur granulateur) (Saleh et Guigon, 2009b). Les paramètres de l'équipement, tels que la géométrie ou les vitesses d'air ou vitesses de rotation, définissent les contraintes de cisaillement imposées au lit de poudre (faibles, modérées ou fortes).

II.2.5.1.1. Agitation pneumatique

Le lit fluidisé - consiste à pulvériser un liquide de mouillage au sein d'un lit de particules solides mises en suspension par un courant d'air chaud. Ils existent plusieurs variantes de cet équipement d'agitation pneumatique (ou lit fluidisé) et l'apport du liquide de mouillage peut se faire par le haut ou le bas du cône (Fig. II.5.1.1). Plusieurs mécanismes simultanés et compétitifs se déroulent au sein de l'appareil (mouillage, mélange, séchage, et pelliculage) et permettent l'agglomération, la mise en forme, le séchage et la classification par taille des agglomérats.

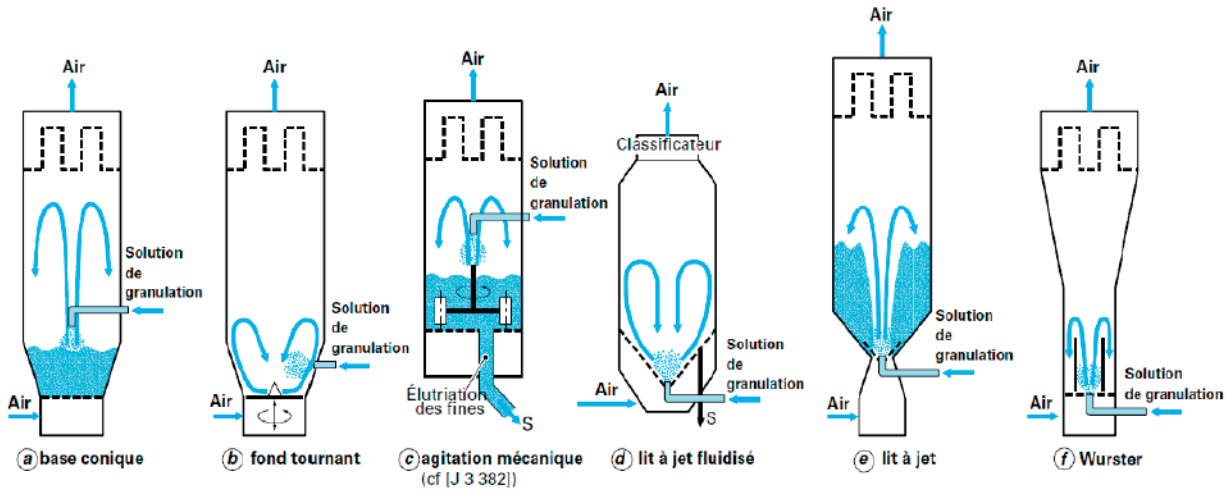


Figure II.2.5.1. Les différents types d'agitation pneumatiques (Saleh et Guigon, 2009b)

II.2.5.1.2. Agitation mécanique

Le plateau tournant ou l'assiette granulatrice - est constitué d'un plateau circulaire à rebord, de faible élancement (H/D < 0.2) tournant autour de l'axe central et incliné de 30 à 70° par rapport à l'horizontale. Les particules sont chargées dans le plateau et le liquide de mouillage est dispersé sur les particules en mouvement (Fig. II.2.5.2). La formation d'agglomérats a lieu selon différents mécanismes : nucléation, coalescence et recouvrement en surface (Saleh et Guigon, 2009b).

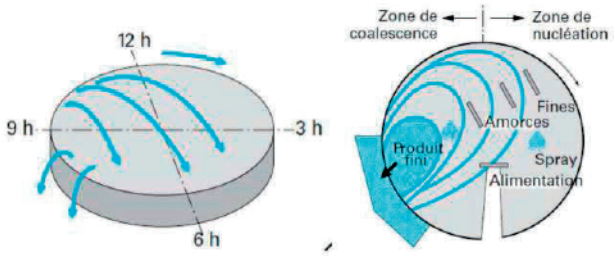


Figure II.2.5.2. Schéma de fonctionnement du plateau tournant (Saleh et Guigon, 2009b)

Le tambour rotatif - est constitué d'une enveloppe cylindrique tournant sur des supports et inclinée de quelques degrés par rapport à l'horizontale. Le produit à granuler est introduit à l'extrémité la plus élevée et progresse dans le tambour sous l'effet de l'inclinaison et de la rotation. Le liant est généralement ajouté par pulvérisation progressive le long du tambour (Figure II.2.5.3) (Saleh et Guigon, 2009b).

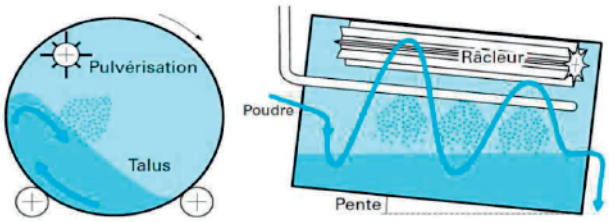
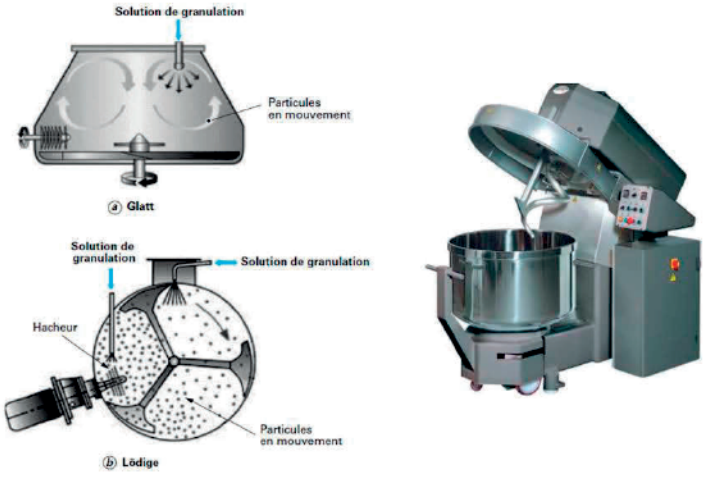


Figure II.2.5.3. Principe d'un tambour rotatif (Saleh et Guigon, 2009b)

Les malaxeurs - peuvent fonctionner avec des poudres de distribution granulométrique très étendue et permettent une bonne distribution des liants très visqueux.



(a) (b)

Figure II.2.5.4. Exemple de mélangeurs à fort taux de cisaillement (a) (Saleh et Guigon, 2009b) et à faible taux de cisaillement (b) (mélangeur à spirale, VMI, France)

La vitesse de rotation des mobiles est élevée pour les malaxeurs à fort taux de cisaillement (≈ 1000 tours/min) et faible pour les malaxeurs à faible taux de cisaillement (≈ 100 tours/min). Le mode de fonctionnement du malaxeur dépend de la position de l'axe principal de malaxage : verticale, horizontale ou inclinée. La cuve du malaxeur peut être fixe ou animée d'un mouvement de rotation. Les pales sont soit montées sur des bras tournant autour d'un axe, soit fixées directement sur la cuve du malaxeur alors animée d'un mouvement de rotation (Charonnat, 1999) (Fig. II.2.5.4).

II.2.5.2. Influence des paramètres du procédé

Le type de buses de pulvérisation, la distribution de taille des gouttes formées, les formes du jet et de la zone de mouillage sont des paramètres du procédé importants qui ont une forte influence sur les mécanismes d'agglomération (Waldie et al., 1987).

II.2.5.2.1. Mode d'apport du liquide

Le mode d'apport du liquide de mouillage est susceptible d'influencer la qualité du mélange solide – liquide dans la mesure où une bonne distribution induit un mouillage uniforme et une nucléation contrôlée. Il existe différents modes d'apport d'un liquide de mouillage. Les deux modes les plus fréquents sont un versement direct du liquide sur le lit de poudre ou une pulvérisation de fines gouttelettes sur le lit de poudre. La modalité d'apport du liquide de mouillage modifie la taille des nuclei de départ et le mode de croissance des agglomérats (Knight et al., 1998). La méthode par versement génère une inhomogénéité de répartition du liquide créant des zones d'humidité élevées au niveau desquelles la croissance est préférentielle (Knight et al., 1998). La méthode par pulvérisation permet une répartition plus homogène du liquide. La distribution du liant a lieu à deux échelles : *(i)* à l'échelle macroscopique où la distribution du liant est principalement fonction des paramètres procédé qui déterminent l'homogénéité et la finesse de la distribution du liquide, et *(ii)* à l'échelle microscopique où la distribution du liant se fait par capillarité suite aux interactions physico-chimiques entre les phases en contact.

II.2.5.2.2. Types de buses de pulvérisation

Les systèmes de pulvérisation sont utilisés pour disperser un jet de liquide, former des gouttelettes, et les pulvériser sur les particules de poudre. Au moment du passage du liquide au niveau de la buse de pulvérisation, le mécanisme de pulvérisation crée des forces de friction à la surface du liquide provoquant sa désintégration en gouttes.

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

Les atomiseurs à pression (mono-fluide) - Le jet se forme par conversion de l'énergie de pression en énergie cinétique quand le liquide traverse la buse sous pression (5 à 7 MPa). En fonction des applications, le diamètre de l'orifice d'injection varie de quelques dizaines jusqu'à plusieurs centaines de micromètres (*e.g.* pour les injecteurs de moteurs Diesel). La taille des gouttes créées dépend de la taille de l'orifice d'injection et du niveau de pression d'injection (Le Moyne, 2010).

Les atomiseurs pneumatiques (bi-fluides) - Les jets d'air peuvent être dirigés vers le liquide injecté pour augmenter les contraintes exercées sur le liquide et obtenir des gouttes plus fines (5 à 300 µm). Cela permet en particulier de garder des niveaux modérés de pression liquide et des orifices de dimensions acceptables pour générer des gouttes de taille très faible (Le Moyne, 2010).

Les générateurs de mousse – Un nouveau mode d'apport de liquide de mouillage, sous forme de mousse, fait l'objet d'études récentes. La mousse est réalisée dans un générateur de mousse, pesée et directement introduite dans le bol du malaxeur. Les recherches montrent que la mousse permet une meilleure dispersion du liquide et améliore la nucléation (la distribution de taille des nucléi est plus resserrée qu'avec les technologies à spray « classiques »). Les nucléi formés ont une taille supérieure, comparés à ceux formés avec une goutte de même volume (Keary et Sheskey, 2004; Cantor et al., 2009; Tan et al., 2009; Tan et Hapgood, 2011).

D'autres types d'atomiseurs sont aussi utilisés pour des applications spécifiques, à savoir les atomiseurs à swirl, à effervescence, les systèmes soniques, électrostatiques et flashing (Le Moyne, 2010; Liu, 1999).

II.2.5.2.3. Taille des gouttes

La taille des gouttes est un paramètre clé qui a fait l'objet de nombreuses études dans le cas du procédé d'agglomération humide avec apport de liquide par pulvérisation (Mandato et al., 2012). Elle joue un rôle sur le temps de pénétration au sein du lit de poudre (Ax et al., 2008), sur la répartition de liquide au sein du mélangeur pendant la phase de nucléation, sur la durée de la phase de consolidation (Gluba, 2003) et sur la cinétique de croissance des agglomérats (Nienow, 1995; Waldie, 1991). Le paramètre de taille des gouttes est d'autant plus influent que la granulation s'effectue dans des mélangeurs-granulateurs à faibles taux de cisaillement où la taille de la goutte est conservée jusqu'à ce qu'elle arrive en contact des particules primaires de poudre. Dans ces conditions, il est montré qu'une goutte tend à former un agglomérat, selon la relation en loi puissance :

$$d_g = d_d^n \qquad \text{(Eq. II.2.5.1.)}$$

où d_g est le diamètre de l'agglomérat, d_d est le diamètre de la goutte et n est un exposant dépendant de la nature du liant et de la poudre humide (Schaafsma et al., 1998; Waldie, 1991).

Un nucleus est supposé être créé à partir d'une goutte et plus la taille de la goutte va être importante, plus celle de l'agglomérat final est importante (Fig. II.2.5.5) (Abberger et al., 2002). Abberger et al. (2002) montrent également que dans un mécanisme d'immersion, les agglomérats formés ont une

structure plus dense que les agglomérats formés par un mécanisme de distribution qui ont une structure plus ouverte.

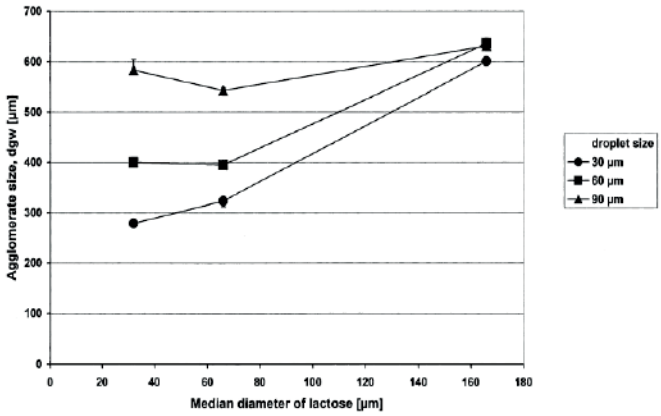


Figure II.2.5.5. Influence du rapport taille des gouttes/tailles de particules de lactose sur la taille de l'agglomérat (Abberger et al., 2002)

La hauteur de la buse par rapport au lit de poudre constitue un paramètre opératoire important qui gouverne la taille des gouttes. En effet, la taille des gouttes formée varie avec la distance par rapport au nez de la buse.

Le débit du liquide mouillant est aussi à prendre en compte puisque la vitesse de croissance des agglomérats et la taille des agglomérats augmentent avec le débit de liquide (Schaafsma et al., 1999). Cependant, l'augmentation du débit de liquide s'accompagne souvent d'une augmentation de taille des gouttes pouvant être à l'origine de l'augmentation de taille des agglomérats.

II.2.5.2.4. Temps de pénétration du liquide

Le temps de pénétration du liquide de mouillage joue un rôle sur la formation des nuclei et l'établissement de ponts capillaires. Dans le cas où le mouillage est thermodynamiquement possible, le liquide n'a souvent pas assez de temps pour atteindre son état d'équilibre. Il est admis en première approximation, que la pénétration du liant dans le lit de poudre est analogue à la pénétration d'une goutte dans un milieu poreux. Cette approche permet d'utiliser l'équation de Washburn ($h^2=(r\sigma/2\eta).t$; r est le rayon du pore, σ est la tension du liquide et η est la viscosité dynamique du liquide) qui décrit la vitesse stationnaire de l'écoulement d'un fluide dans un tube induit par la pression capillaire, freiné par les dissipations visqueuses et pour lequel l'inertie est négligée. Certains travaux sont consacrés à l'étude de l'influence du coefficient de transfert du liant sur les particules au cours de l'agglomération humide. Ainsi Smirani-Khayati et al. (2009) montrent une corrélation entre le coefficient de transfert et le d_{50} des agglomérats. Il est à noter que ce coefficient de transfert dépend lui-même de la vitesse d'agitation : une vitesse d'agitation élevée augmente ce coefficient.

L'angle de contact solide-liquide et le coefficient d'étalement solide-liquide sont aussi à prendre en compte puisque la cinétique d'agglomération et les propriétés des agglomérats dépendent également des paramètres thermodynamiques relatifs à la mouillabilité. L'agglomération est favorisée lorsque le liant est susceptible de mouiller le solide à savoir lorsque l'angle de contact formé entre les deux phases est compris entre 0° et 90° (Saleh and Guigon, 2009b).

II.2.5.2.5. Vitesse d'agitation

La vitesse d'agitation est aussi un paramètre opératoire pertinent. Les travaux de Knight (1993) et Saleh, Vialatte, et Guigon (2005) dans des malaxeurs, mais aussi ceux de Tan, Salman, et Hounslow (2006) sur des lits fluidisés montrent que l'augmentation de la vitesse d'agitation accroît le diamètre médian grâce à une augmentation de la fréquence de collision (qui accroît la probabilité de rencontre entre les particules et/ou les grains) et à une augmentation de l'énergie de collision (qui engendre des coalescences efficaces). L'augmentation du diamètre moyen avec la vitesse d'agitation n'est valable que pour des grains déformables (Iveson et al., 2001). Pour des grains non déformables, l'augmentation de la vitesse d'agitation entraîne une diminution du diamètre moyen des grains par rupture des agglomérats (Ramaker et al., 1998; Knight et al., 2000).

A débit de liquide constant, une augmentation de la vitesse de cisaillement augmente le flux de poudre au niveau de la zone de nucléation, ce qui diminue la quantité de liquide disponible par volume de poudre et facilite donc la dispersion du liquide de mouillage (Tan, Salman, et Hounslow 2006; Iveson et al., 2001). De plus, la force de cisaillement exercée au sein du malaxeur influe sur la structure interne (porosité) et sur la forme des agglomérats. L'augmentation de la vitesse d'agitation favorise les mécanismes de consolidation et induit une réduction de la porosité (Ohno et al., 2007; Oulahna et al., 2003; Saleh et al., 2005), du taux de friabilité (Oulahna et al., 2003) et du taux de fines (Chevalier et al., 2007).

II.2.5.3. Influence des paramètres de formulation

II.2.5.3.1. Taille des particules natives

Comme nous l'avons précédemment évoqué, la taille des particules natives a un effet majeur sur la taille, la porosité et la teneur en eau des agglomérats. Une augmentation de la taille des particules conduit à l'obtention de structures plus poreuses en favorisant les mécanismes de coalescence et de rupture. La taille des particules natives augmente également l'hétérogénéité de taille des agglomérats dans le bol de l'appareil de mélange. L'effet de la taille des particules peut être modulé par la viscosité du liant. Ainsi une viscosité élevée joue le même rôle que la taille élevée des particules : elle augmente l'hétérogénéité et la porosité intra-granulaire. Des particules de taille inférieure avec un liant moins visqueux permettent, en revanche, une distribution granulométrique étroite et des structures plus compactes (MacKaplow et al., 2000; Schæfer et al., 2004).

II.2.5.3.2. Teneur en liquide

Certains auteurs indiquent que l'augmentation de la teneur en liquide de mouillage est propice à l'accélération du phénomène de consolidation (Tan et al., 2006 ; Iveson et al., 1996) du fait du pouvoir lubrifiant du liquide de granulation qui permet un réarrangement des particules dans une configuration plus compacte. Au-delà d'un certain seuil, la poursuite du mouillage va cependant conduire à une transition mécanique au cours de laquelle les agglomérats deviendront plus déformables (Knight, 1993).

II.2.5.3.3. Viscosité et tension superficielle du liquide

Dans les mélangeurs à fort taux de cisaillement, il apparaît qu'une viscosité du liquide élevée va altérer la distribution du liant dans le mélangeur, modifier les mécanismes de nucléation et faciliter la coalescence par les dissipations visqueuses (Iveson et al., 1996). De même la résistance des agglomérats diminue avec la tension superficielle du liant (Iveson et al., 1998 ; Knight, 2001) du fait de sa relation avec la succion capillaire. Des travaux de Iveson et al. (1998) ont montré que la diminution de la tension superficielle du liant va augmenter la vitesse de consolidation des agglomérats et diminuer le seuil de contrainte dynamique de la formulation.

Barkouti et al. (2012) ont étudié les mécanismes d'agglomération humide en fonction des caractéristiques physico-chimiques du liquide dans des mélangeurs à faible taux de cisaillement. Les résultats obtenus confirment que l'agglomération humide de la semoule suit une morphogenèse fractale pour les différents liants liquides appliqués. La dimension fractale est constante quelle que soit les caractéristiques du liquide. Cette observation signifie que les caractéristiques du liant (*e.g.* la viscosité et la tension superficielle) n'ont pas d'impact sur les mécanismes de nucléation dans ce type de mélangeur.

Table II.2.5.1.

Influence des paramètres opératoires du mélangeur-granulateur sur les caractéristiques des agglomérats obtenus (adapté de Saleh et Guigon, 2009b)

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

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

Pour conclure, ils existent de nombreuses recherches sur les paramètres influant la croissance, les distributions de tailles et la morphologie des agglomérats. Néanmoins, il est encore très difficile

d'identifier l'influence spécifique des variables opératoires sur les mécanismes d'agglomération. La formation d'agglomérats résulte de l'effet couplé de ces variables. Le tableau (Table II.2.5.1) proposé par Castel (1995) résume l'effet de certains paramètres opératoires sur les caractéristiques des agglomérats obtenus dans des malaxeurs. Tan, Salman, et Hounslow (2006) montrent que les mêmes effets sont retrouvés dans des mélangeurs type lit fluidisé.

II.3. Modélisation

La modélisation consiste à établir un ensemble d'équations ou de règles pour décrire un système soumis à des phénomènes en se basant sur les principes de la physique et de la thermodynamique et ce de façon reproductible et simulable. Le modèle qui en découle sert à prédire le comportement d'un système en fonction de sollicitations connues. Dans la modélisation des procédés, les bilans de matière et d'énergie sont des outils essentiels pour décrire les changements intervenant au cours d'une réaction chimique ou physique.

Il existe différentes approches pour la modélisation d'un système. L'approche mécanistique intègre la physique et la chimie fondamentale dans un modèle. Elle repose sur deux aspects majeurs qui sont *(i)* l'application des principes thermodynamiques de conservation de masse et d'énergie et *(ii)* les bilans de population qui expriment les changements de la distribution de taille des particules au cours du temps. Le système est alors décrit à l'aide d'équations de transferts de masse et d'énergie, ainsi que des équations qui décrivent les phénomènes de croissance et de rupture des agglomérats qui occurrent dans le système. Il existe également une approche empirique. Les modèles sont développés à partir de plan d'expériences et d'une grande quantité de données « entrée » et « sortie » du système. Le modèle est construit à partir d'une structure existante qui corrèle au mieux les données recueillies par le plan d'expériences. Ces deux approches sont complémentaires : l'approche empirique permet un contrôle rapide du procédé, pour les systèmes qui ne nécessitent pas une compréhension fine des mécanismes, tandis que l'approche mécanistique permet d'établir les relations constitutives du phénomène mais peut être relativement complexe.

II.3.1. Bilans de population

Les bilans de population sont les outils les plus fréquemment utilisés pour décrire et contrôler une large gamme de phénomènes qui mettent en jeu une distribution hétérogène comme par exemple, la floculation, la cristallisation et l'agglomération. La description du procédé d'agglomération par un modèle de bilan de population permet de réduire les facteurs influents sur la distribution à un seul paramètre. Les variations de ce paramètre permettent d'analyser l'impact d'un changement des conditions opératoires, mais permettent également, par la connaissance de son évolution et en fonction des variations des principaux paramètres du procédé, d'envisager la prédiction de la distribution de taille des agglomérats pour un ensemble de conditions opératoires fixées (Biggs et al., 2003).

La structure du modèle d'un bilan de population général a la forme suivante :

$$\frac{\partial n(v,t)}{\partial t} = \frac{1}{2}\int_0^v n(v-v',t)n(v',t)Q(v-v',v)dv' - n(v,t)\int_0^\infty n(v',t)Q(v,v')dv' + \int_v^\infty \beta(v,v')\tau(v')n(v',t)dv' - \tau(v)n(v,t) \quad \text{(Eq. II.3.1.1.)}$$

Avec *n(v,t)*, la densité en nombre de particules de volume *v* à l'endroit considéré à l'instant *t*.
$\frac{1}{2}\int_0^v n(v-v',t)n(v',t)Q(v-v',v)dv'$, un terme source lié à l'agrégation.
$\int_v^\infty \beta(v,v')\tau(v')n(v',t)dv'$, un terme source lié à la rupture.
$-n(v,t)\int_0^\infty n(v',t)Q(v,v')dv'$, un terme puit lié à l'agrégation.
$-\tau(v)n(v,t)$, un terme puit lié à la rupture.

Les milieux granulaires sont caractérisés par un grand nombre de propriétés comme la taille, la forme, la porosité, ou la composition. La distribution de taille est sans doute la propriété la plus importante pour la caractérisation d'un objet granulaire. Ainsi Ranodolph et Larson (1988) expliquent qu'aucune particule d'un milieu granulaire n'a exactement la même taille. C'est pourquoi la distribution de tailles est nécessaire pour la caractérisation. Les bilans de population expriment les changements de la distribution de tailles des particules au cours du temps et permettent de prédire l'évolution du nombre de particules (*N*) d'une taille donnée *i* au cours du procédé.

Traditionnellement, les bilans de population sont des modèles unidimensionnels dans lesquels la taille est la seule propriété indépendante considérée comme étant susceptible d'évoluer au cours de l'agglomération. Cependant, dans de nombreux cas, cette hypothèse s'avère inexacte. D'autres propriétés (la porosité, la saturation et la composition des agglomérats), qui sont susceptibles de varier au cours du procédé, sont également responsables de la croissance des agglomérats (Verkoeijen et al., 2002). C'est pourquoi les bilans de population multidimensionnels se développent, dans le champ spécifique de l'agglomération, (Gantt et Gatzke, 2006).

Une des limitations à l'utilisation des bilans de population réside dans le fait qu'ils impliquent une simplification de la nucléation qui est un phénomène complexe à implémenter : elle est ici modélisée par l'ajout de nuclei de taille spécifique à vitesse constante au cours du processus. Cette vitesse étant un des paramètres de calage du modèle. De plus, ils considèrent la coalescence et la compaction comme les principaux mécanismes responsables du changement de volume des agglomérats et les effets de « layering », de la rupture et de l'usure sont négligés (Verkoeijen et al., 2002). Enfin, une des hypothèses de départ de cette méthodologie consiste à considérer les agglomérats comme des entités parfaitement sphériques ce qui est loin d'être le cas dans la plupart des applications. Néanmoins, les bilans de population constituent une véritable avancée, si ce n'est dans la compréhension, du moins dans la modélisation du processus d'agglomération.

II.3.2. Analyse dimensionnelle

II.3.2.1. Définition et intérêt de l'analyse dimensionnelle

L'analyse dimensionnelle est un outil très utilisé en génie des procédés. Elle permet d'étudier des problèmes industriels complexes, dans lesquels de fortes interactions entre les phénomènes existent. Elle intervient dans des domaines très différents tels que les industries agroalimentaires, la biotechnologie, les industries chimiques ou cosmétiques, l'environnement, les industries pétrolières ou pharmaceutiques, *etc*.

Les phénomènes de transformation de la matière sont généralement décrits par des équations de transport de quantité et de mouvement, de matière et d'énergie, couplées à des équations de cinétiques chimiques ou biologiques et associées aux conditions limites du domaine d'écoulement et aux conditions initiales. La résolution numérique de ces équations est difficile, d'abord parce que la forme des équations peut être fortement non-linéaire pour être intégrée sur l'ensemble du domaine et ensuite parce que les modèles eux-mêmes à mettre en place pour avoir une résolution approchée sont souvent incomplets pour décrire la physique des phénomènes. L'analyse dimensionnelle se révèle être un outil efficace pour formuler des hypothèses simples sur les grandeurs qui gouvernent l'état d'un système physique, à partir de la forme générale de l'équation régissant les phénomènes. Les nombres adimensionnels retrouvés dans ces équations générales permettent ensuite de définir les régimes de fonctionnement du système étudié.

Les essais expérimentaux sont le plus souvent réalisés sur des « équipements pilotes ». Cela se justifie notamment par le fait que l'expérimentation sur le système industriel n'a pas la souplesse d'emploi d'un pilote et présente la plupart du temps un coût trop élevé. Ces études expérimentales fournissent en première analyse des relations empiriques reliant la variable étudiée à un jeu de variables dimensionnelles. L'analyse dimensionnelle permet de regrouper les variables dimensionnelles influençant l'opération sous la forme agrégée d'un ensemble de nombres sans dimension caractéristiques de l'état du système et généralement dotés d'un sens physique précis. Il est alors possible de déterminer les gammes de conditions opératoires à choisir pour obtenir une identité phénoménologique de type scale-up entre le pilote et le système réel, en vérifiant l'égalité de la valeur numérique de chaque nombre sans dimension à ces deux échelles.

Pour conclure, l'analyse dimensionnelle donne accès à une représentation globale du système sous la forme de corrélations semi-empiriques, extrapolables à une autre échelle ou un autre produit. Elle s'accompagne également d'une réduction de l'espace des grandeurs décrivant le phénomène physique et minimise ainsi les expériences à entreprendre pour établir la relation de procédé. Elle permet d'identifier les phénomènes physiques prédominants et donne accès à une représentation graphique simplifiée. Elle représente une aide essentielle dans la compréhension et la conduite des procédés (Delaplace et al., 2014).

II.3.2.2. Construction d'une analyse dimensionnelle

Les règles fondatrices pour la construction des nombres sans dimensions à partir d'une analyse dimensionnelle sont décrites en 4 étapes. Il est à noter que la construction des nombres adimensionnels en génie des procédés est le plus souvent réalisée par une analyse dimensionnelle conduite « en aveugle ».

La première étape d'une analyse dimensionnelle est le choix de la variable cible et la liste des grandeurs physiques indépendantes. La variable cible est un indicateur quantifiable des performances du procédé, par exemple le diamètre médian des particules à la fin de l'opération. Les grandeurs physiques choisies doivent, quant à elles, être indépendantes physiquement. Il est nécessaire de s'assurer qu'aucune grandeur physique, hormis la variable d'intérêt, n'est conditionnée par les variations des autres grandeurs.

Les grandeurs physiques listées sont ensuite exprimées en termes de dimensions fondamentales. L'objectif de cette deuxième étape est de construire la matrice aux dimensions (souvent notée D), avec le nombre de colonnes égal au nombre de grandeurs physiques listées et le nombre de lignes égal au nombre de dimensions fondamentales.

Une fois la matrice aux dimensions établie, il convient d'appliquer le théorème de Vaschy-Buckingham en troisième étape. Ce théorème permet de déterminer les nombres sans dimensions (notés π_i) qui décrivent la relation de cause à effet du processus physique étudié. La détermination des nombres sans dimension est la troisième étape. Elle consiste à passer des grandeurs physiques à l'espace des nombres adimensionnels. La base initiale est constituée de l'ensemble des dimensions fondamentales tandis que la nouvelle base est constituée des variables physiques répétées. Les variables physiques répétées permettent la construction des nombres sans dimension. Chaque nombre sans dimension est associé à une variable physique restante, appelée « non répétée ».

Enfin la quatrième et dernière étape consiste à modifier l'espace des nombres sans dimension en élevant à la puissance certains nombres sans dimension, et en les multipliant entre eux ou en les additionnant et/ou soustrayant. L'objectif de cette étape est de faire apparaître certains nombres sans dimension usuels dont le sens physique est déjà bien établi, d'éliminer les exposants fractionnaires et de faire disparaître une grandeur physique d'un nombre sans dimension pour obtenir une mesure interne indépendante de celle-ci. Ces nombres sans dimensions sont ensuite dotés d'un sens physique plus ou moins explicite, suivant la maturité scientifique du procédé et produit étudiés.

L'explication détaillée et la description d'une analyse dimensionnelle peut être trouvée chez Delaplace et al. (2014). Cette référence bibliographique expose certains cas et études de procédés menés par exemple sur l'analyse dimensionnelle de mélange de poudres dans un agitateur triaxes (André et al., 2014) ou encore pour modéliser la taille de gouttes en sortie de buse de pulvérisation mono et bi-fluides (Mandato et al., 2012).

II.3.2.3. Nombres adimensionnels – cas des milieux granulaires

Le domaine d'applications majeures des nombres adimensionnels reste la mécanique des fluides. Mais il existe des centaines de nombres dont une grande partie réservée à des sujets très spécialisés. Il n'existe en revanche que très peu de nombres adimensionnels pour décrire et modéliser le comportement d'un milieu granulaire. Quelques nombres sans dimension sont retrouvés dans la littérature, parmi eux, il est cité entre autres le nombre inertiel qui caractérise un écoulement, le nombre de puissance et le nombre de Froude.

Le nombre de puissance - En génie chimique, un nombre de puissance représente l'énergie nécessaire pour homogénéiser un système. Il correspond au coefficient de trainer de l'agitateur dans le fluide. Il est utilisé en génie des procédés pour caractériser une agitation. Il définit les conditions d'une agitation et notamment la relation entre puissance dissipée dans le milieu et vitesse de rotation de l'agitateur :

$$Np = \frac{P}{\rho . N^3 . ds^5} \qquad \text{(Eq. II.3.2.1.)}$$

Où P est la puissance dissipée, ρ est la masse volumique de la poudre, N est la vitesse de révolution et d_s est les diamètre de la pale d'agitation.

Le nombre de Froude - Le nombre de Froude (détaillé plus haut dans cette partie bibliographique) est un rapport entre les forces d'inertie et les forces de gravité. Il représente la dissipation de l'énergie mécanique dans un système. Ce nombre est intéressant lorsqu'il est utilisé pour une dissipation d'énergie dans un fluide. Dans le cas de poudres, comme la dissipation de l'énergie mécanique dans le lit n'est pas homogène et la déformation résultante de la contrainte appliquée sur le lit de poudre est limitée spatialement, son utilisation est à relativiser.

$$Fr = \frac{N^2 . ds}{g} \qquad \text{(Eq. II.3.2.2.)}$$

Où N est la vitesse de révolution, d_s est les diamètre de la pale d'agitation et g est la constante universelle de gravitation.

II.4. Procédé de transformation de la semoule de blé dur en grains de couscous

Le grain de couscous, appelé couscous, est un aliment très ancien initialement conçu par les Berbères d'Afrique du Nord, il y a environ 3000 ans. Il est consommé en Afrique du Nord et Centrale, en Europe et aux Etats-Unis. Les français sont les premiers consommateurs de couscous industriel, avec environ deux tiers de la consommation mondiale (Abecassis et al., 2012). Le *Codex Alimentarius* (Codex Standard 202-1995) définit le couscous comme le produit élaboré à partir de semoule de blé dur (*Triticum Durum*) agglomérée avec de l'eau qui subit ensuite des traitements physiques et thermiques. Le couscous peut être utilisé dans différentes recettes : en salades comme le taboulé ou en repas traditionnel accompagné de légumes cuits à la vapeur et de morceaux de viande (ce plat étant aussi appelé « couscous »). La simplicité de préparation, la haute valeur nutritionnelle (index glycémique faible) et le fait d'être bon marché sont les raisons principales de la grande popularité de cet aliment (Abecassis et al., 2012).

Les industries spécialisées dans la fabrication du couscous sont localisées autour du bassin méditerranéen. Le design des équipements industriels pour la production de couscous est basé sur les mêmes techniques que celles utilisées de façon artisanale (Kaup et Walker, 1986; Fabriani et Lintas, 1988). Il existe à ce jour peu de publications techniques et scientifiques (moins de 20 publications et brevets sont disponibles) (Abecassis et al., 2012; Debbouz et al., 1994; Debbouz and Donnelly, 1996; Hébrard, 2002) ce qui explique en partie « l'empirisme » relatif dans la maîtrise du procédé de production. Il est à noter que la semoule de blé dur est aussi utilisée pour la production de pâte alimentaire et autour du bassin Méditerranéen pour la fabrication de pâtisseries/biscuiteries et de pain (Licciardello et al., 2013; Sapirstein et al., 2007).

II.4.1. Semoule de blé dur

La semoule de blé dur est obtenue après mouture des grains de blé dur (Fig. II.4.1.1). Elle correspond à l'extraction de la partie de l'albumen amylacé des grains. Elle possède une teneur en eau comprise entre 14 et 15 %, sa taille est de l'ordre de 300 µm et sa forme relativement complexe.

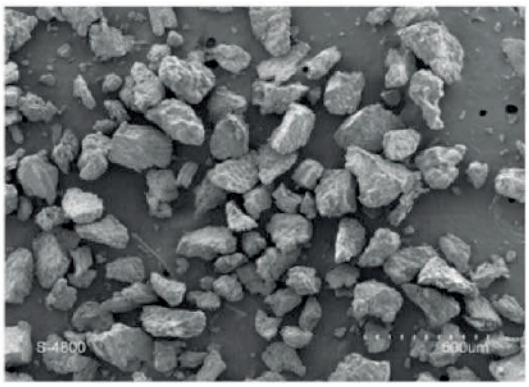


Figure II.4.1.1. Image de particules de semoule obtenues par microscope électronique à balayage

II.4.1.1. Composition de la semoule de blé dur

L'amidon est le constituant majoritaire (82%) de la semoule de blé dur (Cuq et al., 2014). Au niveau macromoléculaire, l'amidon est un assemblage de molécules d'amylose (*i.e.* de chaînes linéaires d'unités glucose) et de molécules d'amylopectine (*i.e.* de chaînes ramifiées d'unités glucose). Ces molécules interagissent entre elles par des liaisons hydrogène H. À l'état natif, les molécules d'amidon sont regroupées au sein d'objets individualisées sous la forme de sphères aplaties : les granules (Figure II.4.1.2), de diamètre compris entre 1 à 20 µm. Dans les granules, les assemblages de macromolécules sont organisés sous forme de couches concentriques alternativement cristallines et amorphes.

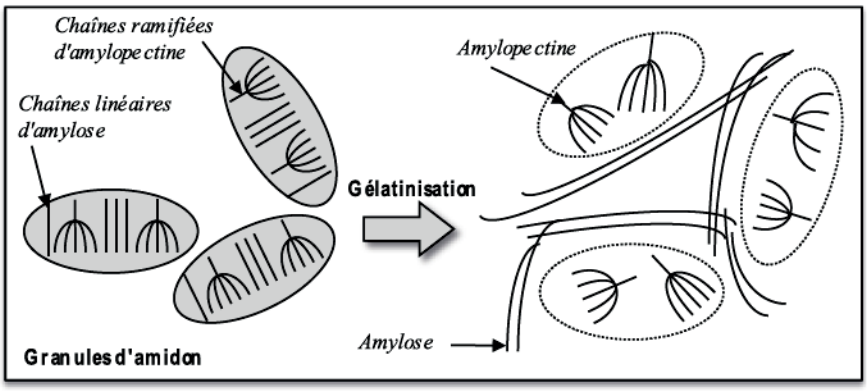


Figure II.4.1.2. Schéma des granules d'amidon (Cuq et al., 2014)

Dans le processus de fabrication du couscous, l'amidon intervient principalement par ses propriétés techno-fonctionnelles d'absorption d'eau et de gélatinisation, qui s'expriment au cours des traitements hydrothermiques. La gélatinisation de l'amidon correspond à la transformation des structures granulaires par l'application d'un traitement thermique en présence d'eau (Fig. II.4.1.2), qui conduit dans un premier temps à la libération et à la solubilisation des chaînes d'amylose à l'extérieur des granules. Lorsque la gélatinisation se poursuit, la structure granulaire disparaît et les chaînes ramifiées d'amylopectine sont libérées (Cuq et al., 2014). La teneur en amidon endommagé joue un rôle important sur les interactions avec l'eau et sur la capacité d'absorption d'eau.

Les protéines sont présentes dans la semoule de blé dur à des teneurs comprises entre 10 et 14%. Elles sont organisées sous la forme de structures fibrillaires individualisées amorphes, localisées autour des granules d'amidon. La stabilité des protéines provient de la présence entre les chaînes d'une densité importante de liaisons de faible énergie (essentiellement des liaisons H, mais également des interactions hydrophobes et de Van der Waals) et de quelques liaisons covalentes disulfure (-SS). Les protéines du blé, riches en groupements thiol (-SH) sur les chaînes latérales des cystéines, peuvent participer à des réactions de réticulation (Fig. II.4.1.3) par formation de ponts -SS-. Parmi la grande variété de protéines présentes dans le blé, la fraction protéique appelée gluten de blé joue un rôle primordial dans l'élaboration de la structure et de la texture des pâtes alimentaires : les protéines du gluten sont capables de former un réseau continu viscoélastique, après hydratation et apport d'énergie mécanique. La semoule de blé dur contient également quelques protéines à activité enzymatique (*e.g.* lipoxygénase, polyphénol oxydases, etc.) qui peuvent être impliquées dans des réactions

d'oxydoréduction pouvant avoir des conséquences technologiques (*e.g.* évolution de la coloration et de la qualité culinaire) (Feillet, 2000). La qualité et la teneur en protéines sont importantes sur les mécanismes impliquant notamment la formation d'un réseau protéiques ou des réactions de réticulation des protéines, sous l'effet de contraintes mécaniques et/ou thermiques. Le rôle de la teneur et de la qualité des protéines du blé a été démontré pour le procédé de fabrication des pâtes alimentaires (Bruneel et al., 2010; Magallanes-López et al., 2017). Par contre, il n'existe quasiment pas d'information sur le rôle des protéines (teneur et qualité) dans le procédé de fabrication du couscous et dans les réactions de structuration des agglomérats. La contribution à l'élucidation de ce point sera l'un des enjeux de ce travail.

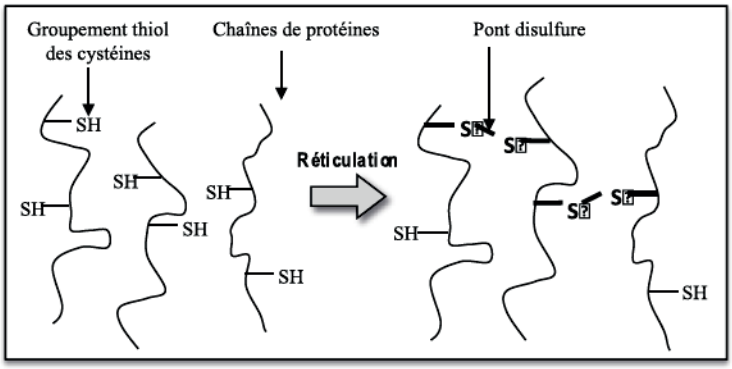


Figure II.4.1.3. Schéma de réticulation des chaines de protéines (Cuq et al., 2014)

Les lipides sont présents dans la semoule de blé dur à environ 1.4 %. Selon Feillet (2000), les acides gras non saturés représentent la fraction d'acides gras la plus importante de semoule (75-80 %) avec 16-18 % d'acide oléique, 55-60 % d'acide linoléique et 4-5% d'acide linolénique. Les acides gras saturés représentent seulement 20-25 % des acides gras totaux composés à 18-20 % d'acides palmitiques et 2-4 % d'acide stéarique.

II.4.1.2. Réactivité physico-chimique des grains de semoule

La description des mécanismes d'élaboration des grains de couscous selon une approche physique nécessite de prendre en considération la réactivité des particules de blé au contact de l'eau. L'addition d'eau aux particules de semoule, nécessaire pour initier les mécanismes d'agglomération, induit des phénomènes spécifiques : solubilisation partielle des constituants de surface des particules, absorption d'eau par les particules, activation de réactions enzymatiques, *etc*. Ces phénomènes participent aux mécanismes de structuration des grains de couscous sur des échelles de temps qu'il est important de connaître (Ruiz et al., 2014). La construction du diagramme d'état des constituants du blé dur en fonction des conditions de température et de teneur en eau permet de définir des régimes de mobilité et de réactivité des macromolécules, séparés par les courbes de transition vitreuse et de fusion (Fig. II.4.1.4).

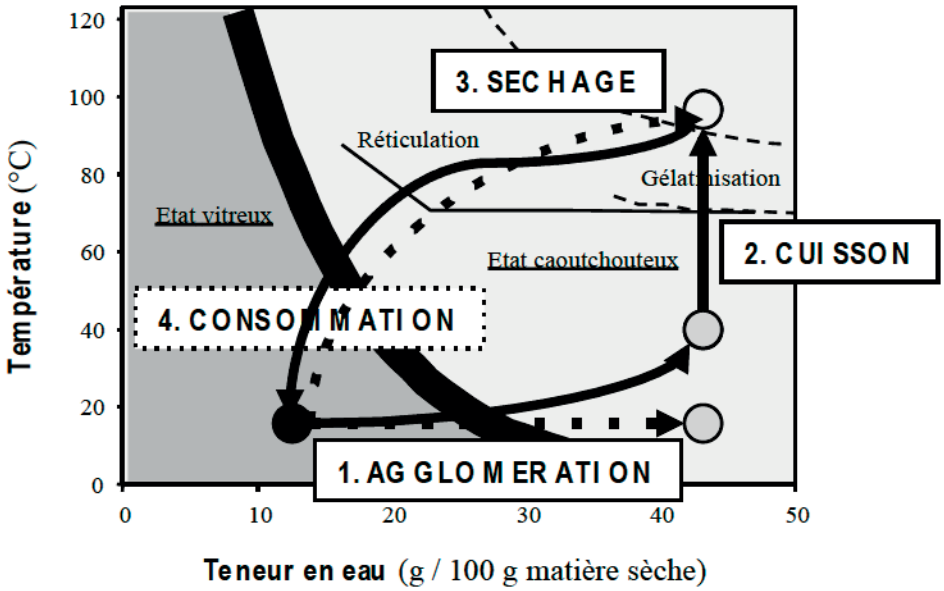


Figure II.4.1.4. Diagramme d'état des macromolécules du blé (amidon et protéines) en fonction des conditions de température et de teneur en eau. Représentation du passage de l'état vitreux à l'état caoutchouteux lors des étapes de la fabrication d'un grain de couscous et à la consommation (adaptée de Cuq et al., 2014)

La transition vitreuse des organisations amorphes sépare deux états :

- en dessous de la transition vitreuse (*i.e.* à basse température et/ou à basse teneur en eau), la forte densité des liaisons intermoléculaires de faible énergie décrit l'état « vitreux ». Les macromolécules sont rigides, peu mobiles et peu disponibles pour les réactions.

- au-dessus de la transition vitreuse (*i.e.* à haute température et/ou à forte teneur en eau), la faible densité des liaisons intermoléculaires de faible énergie décrit l'état « caoutchouteux ». Les macromolécules sont plus mobiles et disponibles pour participer aux réactions.

La zone de transition vitreuse est classiquement décrite par une température (à une teneur en eau donnée) dite température de transition vitreuse. La diminution de la température de transition vitreuse sous l'effet d'une augmentation de la teneur en eau traduit l'équivalence des phénomènes de plastification thermique et moléculaire. La transition vitreuse concerne la structure amorphe des assemblages de protéines, mais également les régions amorphes des chaînes d'amidon au sein des granules.

Pour les protéines, le passage de la transition vitreuse induit principalement une forte augmentation de la mobilité moléculaire et de la réactivité, c'est à dire de leur capacité à participer à des mécanismes de structuration sous apport d'énergie mécanique. L'apport d'énergie mécanique permet la génération de contacts efficaces entre les macromolécules réactives, induisant des échanges de liaisons H et la formation de liaisons inter-chaîne à la place de liaisons intra-chaines. Ces mécanismes conduisent au développement de structures tridimensionnelles de type réseau. Au-dessus de la transition vitreuse, les

protéines sont également disponibles pour participer à des réactions de réticulation : à des températures supérieures à 80°C, elles sont capables de former des liaisons covalentes disulfure (-SS-) entre les chaînes.

Pour l'amidon, l'augmentation de mobilité moléculaire au niveau de la transition vitreuse ne touche que les zones amorphes de la structure des granules. Cette augmentation de mobilité est nécessaire pour que les mécanismes de fusion des zones cristallines puissent se produire à des températures ou des teneurs en eau plus importantes. Le phénomène de fusion concerne les zones cristallines des granules d'amidon. La fusion est une transition de type "solide - liquide" qui traduit la désorganisation des assemblages cristallins. La zone de fusion est classiquement décrite par une température, dite température de fusion. Comme pour la transition vitreuse, la diminution de la température de fusion sous l'effet d'une augmentation de la teneur en eau traduit l'équivalence des phénomènes de plastification thermique et moléculaire. En présence de fortes quantités d'eau, la fusion est généralement associée au phénomène de gélatinisation de l'amidon. La gélatinisation se produit dès 60°C en présence de fortes quantités d'eau (Cuq et al., 2014).

Une augmentation de teneur en eau à température ambiante active également les enzymes de la semoule, qui peuvent alors catalyser des réactions conduisant à une dégradation de la couleur. La solubilité de certaines substances amorphes à la surface de la molécule peut aussi induire des mécanismes de solubilisation. Ces mécanismes impliquent alors des changements de viscosité et de tension de surface du liquide.

II.4.2. Opérations unitaires de la fabrication des grains de couscous

Le procédé de fabrication comprend quatre grandes étapes l'agglomération, le roulage/classification, la cuisson et le séchage. Il est présenté dans la Figure II.4.2.1.

L'**agglomération**, aussi appelée granulation, est la première étape. Elle est définie comme le procédé au cours duquel les particules primaires de semoule de blé dur sont assemblées pour former des grains ou des agglomérats plus gros dans lesquels la particule originale peut encore être distinguée.

La deuxième étape du procédé est le **roulage/classification**. Cette étape, réalisée dans un appareillage initialement dédié à la classification, permet de donner une forme plus sphérique aux agglomérats humides et simultanément de les classer en trois fractions selon un critère de taille (trop petits, cibles, trop gros).

L'étape de **cuisson** est réalisée à l'aide d'un cuiseur-vapeur à la vapeur d'eau. Enfin, l'étape de **séchage** est la dernière étape du procédé.

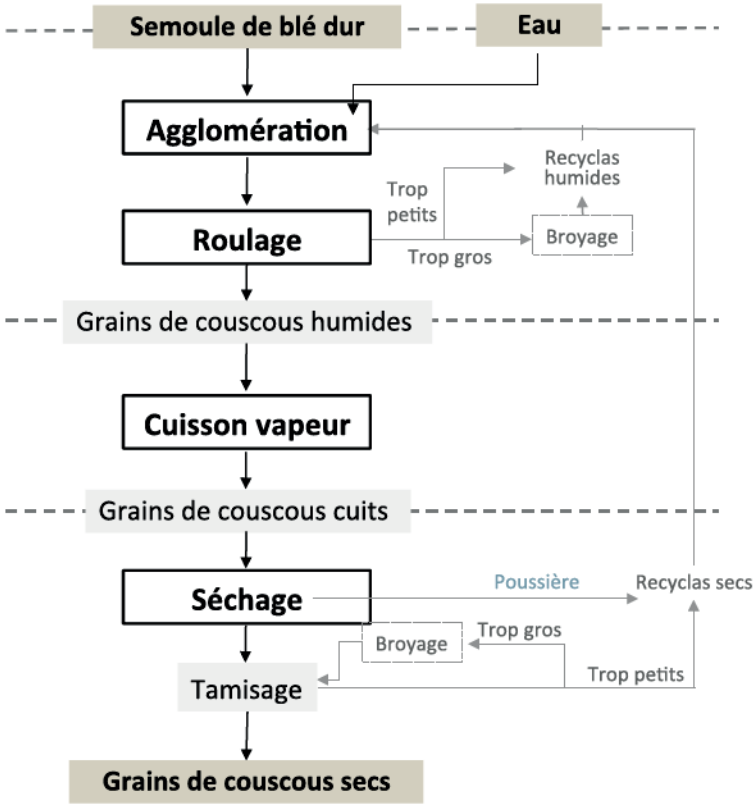


Figure II.4.2.1. Schéma de fabrication industrielle du couscous

II.4.2.1. Agglomération de la semoule de blé dur

L'agglomération de la semoule de blé dur est le plus souvent conduite dans un mélangeur horizontal à pales plates. L'apport d'eau se fait par versement en petits filets liquides à proximité des parois du mélangeur (Fig. II.4.2.2). Les agglomérats sont formés par la mise en contact de la semoule de blé dur avec de l'eau, en présence d'énergie mécanique.



Figure II.4.2.2. Photo d'un équipement de mélange mécanique à l'échelle industrielle (Cuq, 2016. Technologie du couscous : du blé dur à la graine de couscous. Document support de cours. Montpellier SupAgro)

La teneur en eau ajoutée à la semoule doit être comprise entre deux limites : une limite basse en-delà de laquelle la teneur en eau sera trop faible pour permettre une totale gélatinisation de l'amidon à la

cuisson, et une limite haute (*i.e.* la limite de transition agglomérats-pâte) au-delà de laquelle il y a formation d'une pâte continue. La teneur en eau nécessaire à une "bonne" agglomération est d'environ 47 g d'eau / 100 g de matière sèche (Guezlane, 1993; Saad, 2011).

Les travaux antérieurs sur l'agglomération par voie humide de semoule de blé dur, dans le cadre de la fabrication du couscous, ont porté sur l'identification des mécanismes au cours de l'agglomération et l'impact des conditions du procédé sur les caractéristiques des grains de couscous finaux (Saad, 2011; Barkouti, 2012; Hafsa, 2014). Concernant les mécanismes, il a été démontré que les structures composant le lit vrac subissent des modifications importantes. Ces modifications ont été étudiées à deux échelles d'observation : à l'échelle du lit vrac et à l'échelle de l'agglomérat, grâce au diagramme hydrotextural (Fig. II.4.2.3).

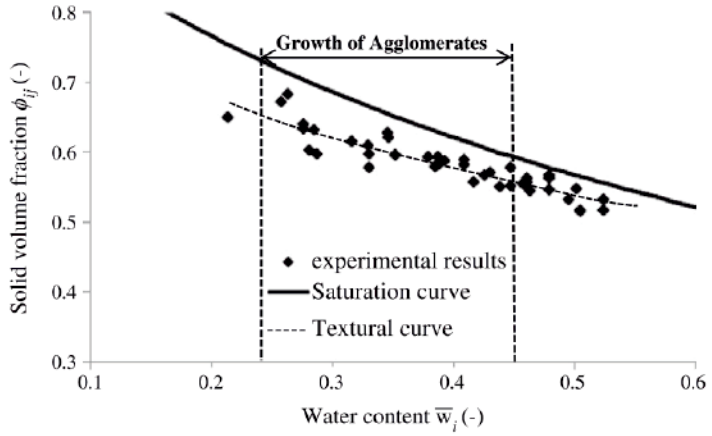


Figure II.4.2.3. Evolution de la fraction volumique solide à l'échelle des agglomérats en fonction de leur teneur en eau (la courbe de texturation correspond au modèle décrit par Eq. II.4.2.2.) (Barkouti, 2012)

A l'échelle du lit vrac, la fraction volumique solide en fonction de la teneur en eau suit une évolution en trois phases : foisonnement, densification et dilution.

A l'échelle des agglomérats, cette étude montre d'abord qu'au cours de l'agglomération, les agglomérats deviennent de plus en plus gros et se saturent progressivement avec l'augmentation de la teneur en eau. Barkouti (2012) a modélisé cette saturation progressive des structures agglomérées avec l'augmentation de la teneur en eau par une loi puissance qui rend compte de la percolation progressive de l'eau dans l'agglomérat (Eq. II.4.2.1).

$$S_a = \left(\frac{w}{w_{sat}}\right)^n \forall 0{,}11 \leq w \leq 0{,}58 \qquad \text{(Eq. II.4.2.1.)}$$

où w_{sat} est la teneur en eau à saturation et n est un exposant représentatif du couplage hydromécanique dont le matériaux est capable (dans le cas de matériaux indéformables : $n = 1$).

En intégrant cette équation (Eq. II.4.2.1) dans l'équation (Eq. II.1.4.9), il est montré que la compacité des agglomérats est uniquement dépendante de la teneur en eau (Eq. II.4.2.2) et des deux paramètres w_{sat} et n.

$$\phi_a = \frac{1}{1+\rho_s^* \frac{w}{S_a}} = \frac{1}{1+\rho_s^* w_{sat}^n w^{n-1}} \qquad \text{(Eq. II.4.2.2.)}$$

Ce modèle représente effectivement ses données expérimentales, comme le confirme la Figure II.4.2.3.

Barkouti (2012) montre également que la relation entre la compacité et la taille des agglomérats de semoule de blé dur peut-être modélisée par une loi puissance, confirmant un processus de croissance fractale, décrit par Rondet et al. (2010) (Eq. II.2.4.1). La dimension fractale est D_f = 2,89 et le préfacteur A_i = 0,56. La dimension fractale est élevée car la structure se rapproche de la saturation. Cette équation constitue un outil de prévision des caractéristiques des agglomérats au cours du mouillage/malaxage et un outil de contrôle de l'agglomération de la semoule de blé dur au cours de la fabrication du couscous.

Saad et al. (2011) et Hafsa et al. (2015) ont également étudié l'impact des conditions d'agglomération sur les caractéristiques finales de grains. Saad et al. (2011) ont fait varier le taux d'hydratation et la taille des particules de semoule de blé dur. Ils ont montré qu'une augmentation de la taille des particules de semoule impacte les qualités finales du grain de couscous. Ainsi, l'augmentation de la taille des particules entraîne une augmentation de la capacité d'absorption de l'eau et de la capacité de gonflement et diminution de l'indice de solubilité. Elle agit aussi sur la couleur, puisque des grains de couscous issus de plus grosses particules de semoule sont plus clairs, moins rouges et plus jaunes. Le taux d'hydratation n'impacte, en revanche, que la couleur des grains de couscous. Hafsa et al. (2015) ont étudié différentes technologies de mélange, dont un mélange par agitation pneumatique. Ils montrent que les procédés influent sur les propriétés morpho-granulométriques (taille et forme), hydrotexturales (compacité) et les propriétés d'usage (couleur, capacité de gonflement et indice de solubilité) des grains de couscous issus d'une même matière première.

II.4.2.2. Roulage des agglomérats de couscous

Immédiatement après l'agglomération, les agglomérats humides sont conduits à l'étape de roulage/classification. Cette étape permet d'obtenir les agglomérats de forme et taille correctes et de renforcer la structure des agglomérats. Cette étape de roulage semble avoir un impact direct sur les caractéristiques physiques (forme, compacité, taille) des agglomérats. L'énergie mécanique apportée au cours du roulage induit des changements internes de structure des agglomérats humides. Entre autres, les phénomènes de compression et de chocs entre les agglomérats augmentent la compacité des structures. La présence localisée d'eau liquide au niveau de la surface des particules peut induire des mécanismes de solubilisation partielle de certains constituants solubles (par exemple de protéines ou de fibres solubles). Ces mécanismes de solubilisation contribuent en partie à la stabilité des ponts liquides et à la résistance des agglomérats (Abecassis et al., 2012)

Deux équipements peuvent être utilisés par les industriels pour cette étape de roulage : les tamis vibrants, appelé « planchisters », ou les tambours tournant inclinés, avec plusieurs mailles de tamisage (Fig. II.4.2.4). Les paramètres de réglage des deux équipements sont : la taille des mailles des tamis, la longueur du tambour et la vitesse de rotation. Hébrard (2002) montre que les conditions de roulage sur un planchister n'influencent pas les caractéristiques des agglomérats en termes de forme, compacité et taille. En revanche, il semblerait que les agglomérats roulés dans un tambour tournant incliné soient circulaires et plus compacts que les agglomérats roulés sur un planchister.



(a) (b)

Figure II.4.2.4. Photo d'un équipement de roulage/tamisage (a) et de « planchister » (b) à l'échelle industrielle (Cuq, 2016. Technologie du couscous : du blé dur à la graine de couscous. Document support de cours. Montpellier SupAgro)

La fonction de classification demeure la fonction majeure de cette étape. Au cours du roulage, les agglomérats sont classés en trois fractions : gros, moyen et fins. Seuls les agglomérats moyens qui correspondent au calibre voulu (entre 1 et 2 mm) continuent sur la ligne de production. Les agglomérats trop gros sont broyés puis recyclés à l'étape de malaxage/agglomération tandis que les agglomérats trop fins sont directement réintroduits dans les malaxeurs. Guezlane (1993) indique que les technologies de roulage peuvent avoir une influence sur le rendement au tamisage. Les planchisters semblent favoriser un plus faible pourcentage d'agglomérats trop gros : l'énergie mécanique apportée entrainerait des mécanismes de rupture des gros agglomérats.

L'étape de classification joue un rôle primordial dans la suite du procédé. Cette opération unitaire est conduite de façon à ce que 100% des agglomérats soient correctement classés, puisque ces derniers sont considérés comme les agglomérats humides qui formeront les grains de couscous de bon calibre. Il est évident qu'une mauvaise classification aurait pour conséquences des pertes économiques considérables dues au coût du traitement thermique et au nécessaire recyclage des grains de mauvais calibre en fin du procédé.

II.4.2.3. Cuisson-vapeur

A la suite de l'opération unitaire de roulage, les agglomérats humides de couscous sont conduits à un

premier traitement thermique de cuisson/vapeur. A l'échelle industrielle, la cuisson vapeur s'effectue par injection de vapeur dans un cuiseur de type tunnel continu. Les agglomérats sont déposés en couche épaisse sur un tapis métallique perforé qui traverse le tunnel de cuisson (Fig. II.4.2.5). Un temps de séjour voisin de 15 minutes est nécessaire pour assurer les transferts de vapeur et de chaleur au sein de la couche d'agglomérats.

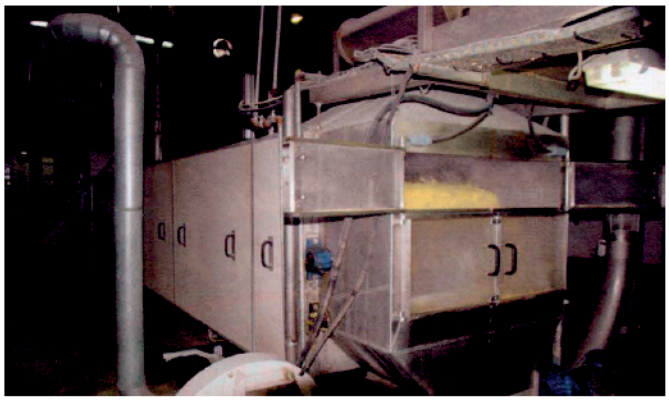


Figure II.4.2.5. Photo d'un tunnel de cuisson vapeur à l'échelle industrielle (Cuq, 2016. Technologie du couscous : du blé dur à la graine de couscous. Document support de cours. Montpellier SupAgro)

La cuisson vapeur se traduit par une élévation de la température jusqu'à 100°C et par une légère élévation de la teneur en eau des agglomérats humides, jusqu'à environ 50% base sèche (Guezlane et al., 1998). Les agglomérats humides sont étalés sur une couche d'épaisseur comprise entre 8 et 12 cm et environ 500 à 800 g de vapeur sont utilisés pour cuire un kilogramme de couscous (Guezlane et al., 1998; Méot, 2006; Ounane et al., 2006). Les paramètres de réglages au cours de cette étape sont principalement l'épaisseur de la couche de grains, le temps de séjour dans le cuiseur et le flux de vapeur d'eau. La cuisson vapeur des agglomérats humides est un traitement hydrothermique qui engendre d'importants changements physicochimiques sur les composants du blé. Elle contribue également à renforcer la cohésion interne des agglomérats et leur résistance mécanique (Ruiz et al., 2014).

Elle permet d'abord la gélatinisation des granules d'amidon qui perdent leur structure cristalline. L'amylose sort du granule et peut alors participer au « collage » des particules de semoule. Ces modifications induisent une forte augmentation de la plasticité de la matière. L'intensité des mécanismes de gélatinisation détermine la capacité d'absorption de l'eau, de gonflement et l'indice de prise en masse du grain de couscous final (qui correspond au pourcentage de prise en masse de couscous formant des agglomérats supérieurs à 3 mm). La cuisson vapeur engendre également, après la gélatinisation des grains d'amidon, la formation de complexes amylose-lipides. Les chaines d'amylose libérées participent à des réactions avec les molécules lipidiques du blé (monoglycérides). Ce phénomène contribue à réduire la rétrogradation au cours du stockage et à limiter le collant et l'indice de prise en masse après réhydratation. Enfin, les protéines du blé sont impliquées dans des réactions de réticulation *via* la formation de ponts covalents disulfures. Ces réactions pourraient contribuer à diminuer le caractère collant des grains de couscous cuits (Abecassis et al., 2012). Ainsi,

la cuisson est une étape clé dans le processus de fabrication des grains de couscous, car elle induit des mécanismes physico-chimiques qui impactent fortement les qualités finales des produits, que ce soit la capacité d'absorption d'eau ou le caractère collant. En sortie de cuisson, la « couche » d'agglomérats cuits (une sorte de gâteau) présente une certaine cohésion, il est donc nécessaire de séparer mécaniquement les grains à l'aide d'un désagrégeur associé à un tamis de calibration (Ruiz et al., 2014).

II.4.2.4. Séchage

Après l'étape de cuisson, les grains cuits sont séchés. Le principe physique du séchage des grains de couscous est une simple extraction de l'eau par changement de phase et entraînement dans un courant d'air à vitesse, température et humidité relative contrôlées. Le séchage permet d'augmenter la durée de vie du produit en le stabilisant à une teneur en eau qui assure une bonne conservation des propriétés organoleptiques et microbiologiques. Il est admis que les grains de couscous sèchent facilement du fait de leur forme sphérique et de leur porosité qui favorisent une bonne circulation de l'air et un transfert rapide de l'eau (Ruiz et al., 2014).

L'opération de séchage est conduite à l'aide de diagrammes de séchage. Ils permettent de définir les conditions opératoires comme une succession d'étapes, définies par les caractéristiques hydrothermiques de l'air asséchant et des durées de traitement. L'objectif est d'assurer la déshydratation des grains de couscous jusqu'à une teneur en eau inférieure à 13,5 % pour respecter la législation en vigueur et garantir leur conservation. Les diagrammes de séchage sont construits à partir des isothermes de désorption de vapeur d'eau (qui donnent les teneurs en eau à l'équilibre en fonction de l'humidité relative de l'air) et du diagramme de l'air humide. Le séchage industriel du couscous est réalisé à des températures élevées (90-120 °C) sur des durées significatives (15-20 minutes).

L'étape de séchage des grains de couscous assure plusieurs fonctions. La principale est d'assurer la stabilité microbiologique et physico-chimique des produits par diminution de l'activité de l'eau jusqu'à environ 0,5 et garantir ainsi leur conservation. Les réactions de dégradation ne peuvent alors plus se dérouler, même sur de longues périodes de stockage. L'extraction de l'eau au cours du séchage induit aussi des phénomènes de rétraction de la matière. En effet, le volume d'eau extrait du produit est compensé par une contraction d'un volume équivalent. Ce retrait mécanique est associé à une diminution de la porosité intragranulaire par contraction des grains et réduction de diamètre. Le séchage contribue ainsi aux mécanismes de texturation des grains de couscous, *via* la compacification de la structure. Notons que ce phénomène reste plus subi que maîtrisé. Il est d'autant plus marqué que la matrice granulaire est plastique et que les conditions opératoires appliquées permettent aux grains un réagencement intragranulaire. À l'échelle industrielle, le séchage des grains de couscous est conduit sur des nacelles circulant dans un séchoir à air chaud (Fig. II.4.2.6).



Figure II.4.2.6. Photo d'un tunnel de séchage à l'échelle industrielle (Cuq, 2016. Technologie du couscous : du blé dur à la graine de couscous. Document support de cours. Montpellier SupAgro)

Le mouvement des nacelles permet un mélange « doux » des produits pour favoriser les échanges de matière avec le courant d'air chaud, en limitant la formation de couches limites au niveau des interfaces grains/air asséchant, couches dans lesquelles les transferts sont diffusionnels et donc lents. Le mouvement des nacelles au cours du séchage induit également des phénomènes d'érosion des grains qui se traduisent par la formation de fines particules de poudre sèche. Ces fines particules doivent alors être récupérées et intégrées dans les circuits de recyclage. Après l'étape du séchage, les produits secs (et chauds) sont refroidis jusqu'à la température ambiante dans un refroidisseur qui assure une mise en contact avec un courant d'air froid. Le refroidissement des grains secs permet leur rigidification par passage en dessous de la température de transition vitreuse (Ruiz et al., 2014).

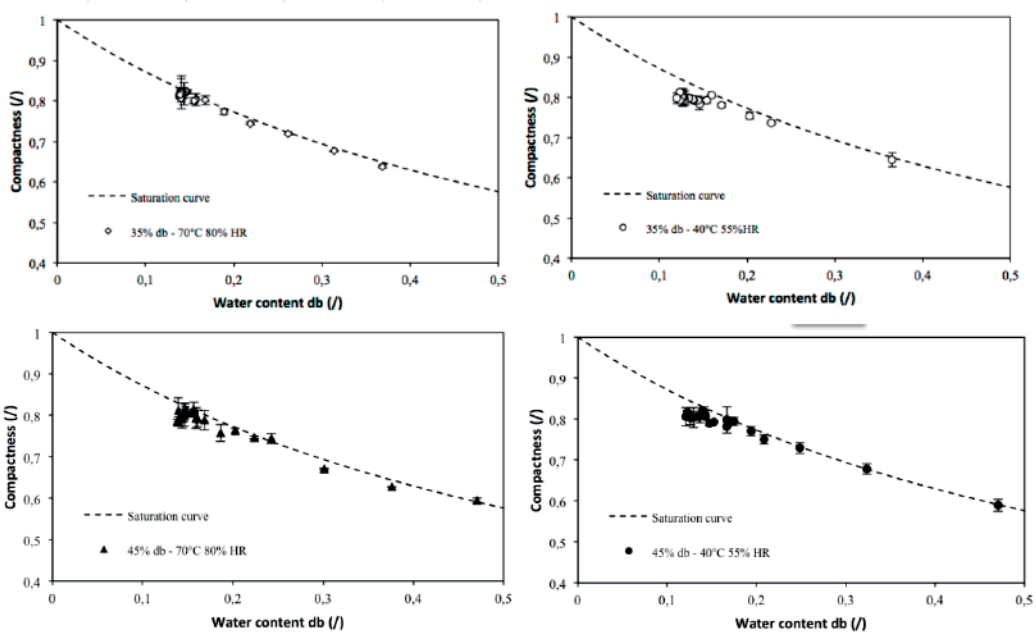


Figure II.4.2.7. Diagrammes hydrotexturaux représentant l'évolution de la compacité en fonction de la teneur en eau des agglomérats de blé dur sous différentes conditions de séchage (Hafsa, 2014)

Contrairement au séchage des pâtes alimentaires pour lequel de nombreuses études ont été conduites, le séchage des grains de couscous a fait l'objet de peu de recherches scientifiques. Les mécanismes qui occurrent au cours du séchage et la réactivité des constituants du blé ont été extrapolés des

connaissances acquises sur le séchage des pâtes alimentaires courtes. Hafsa (2014) a mené un premier travail afin de tester différentes conditions de séchages (en fonction de la température et de la vitesse d'extraction de l'eau des agglomérats humides) en lien avec les mécanismes physiques (rétraction et densification) (Fig. II.4.2.7). Elle montre notamment que, quelles que soient les conditions de séchage, les structures séchées se trouvent toutes sur la courbe de saturation. L'extraction (rapide ou lente) de l'eau au cours du séchage ne se traduit pas par la formation d'une porosité interne. Les mécanismes de déformation et de retrait de la structure des agglomérats permettent de compenser le départ de l'eau pour conserver une structure dense non poreuse avec un maximum de compacité.

II.4.2.5. Recyclage

Les grains de couscous sont classés en fonction de leur taille au cours de l'opération unitaire de roulage et après l'opération unitaire de séchage. Les agglomérats de couscous humides (après roulage) ou secs (après séchage), dont la taille n'est pas comprise entre 1 et 2 mm, sont recyclés. Les fractions fines sont directement envoyées à l'étape d'agglomération humide et les plus grosses sont préalablement broyées, avant d'être elles aussi renvoyées au niveau de l'agglomération. La composition biochimique des recyclas humides et secs diffère de la composition biochimique de la semoule native (Table II.4.2.1). L'introduction de ces recyclas à l'étape d'agglomération change par conséquent les conditions opératoires définie pour l'agglomération. Ainsi, pour maintenir la qualité des agglomérats et le rendement lors de l'agglomération, l'opérateur de ligne doit adapter les conditions opératoires. Par exemple, la teneur en eau des recyclas n'étant pas la même que celle de la semoule native, l'opérateur ajuste au mieux l'ajout d'eau en fonction de ce taux de recyclas.

Les recyclas humides (après le roulage) représentent plus de 2.5 fois le débit initial de semoule de blé dur. On constate industriellement que le flux principal de recyclas humides est issu des fractions fines. Il est environ 10 fois plus important que le flux provenant des plus grosses fractions. En comparaison à la semoule native, les recyclas humides ont une teneur en eau plus élevée (31.6%) et des teneurs en amidon (86%) et protéines (14%) proches. Ils ont aussi un taux de gélatinisation plus élevé (25%) que le taux de gélatinisation de la semoule native (5%) (Abecassis et al., 2012).

Les recyclas secs (après séchage) représentent seulement 10% du débit initial de semoule de blé dur. Leurs propriétés biochimiques et physico-chimiques sont différentes de la semoule native. Les recyclas secs sont caractérisés par une teneur en eau faible (8.7%) et des teneurs en amidon (86%) et protéines (13.5%) proches. Les recyclas secs sont caractérisés par un taux d'amidon gélatinisé très élevé (au moins de 75%) et une teneur en protéine solubles très faible (2.3%), comparée à la semoule de blé dur initiale (5.9% et 12.7%, respectivement). Ils sont aussi caractérisés par une dispersion de la distribution de taille des grains plus élevée (span = 1.4) et une masse volumique plus élevée (0.794 $g.cm^{-3}$) que la semoule de blé dur dont le span est de 0.9 et la masse volumique de 0.670 $g.cm^{-3}$. Ils sont globalement plus hétérogènes en taille et en densité (Abecassis et al., 2012). Ces différences biochimiques sont responsables d'une « processabilité » difficile, en terme de qualité des grains de couscous et de rendement à l'agglomération (Hébrard 2002). C'est pourquoi, ces recyclas secs ne sont pas directement

incorporés avec la semoule native dans les mélangeurs, mais préalablement stockés dans un silo et mélangés à part avec de la semoule native afin d'ajuster leur teneur en eau.

La réduction du taux de recyclage est un enjeu considérable à l'échelle industrielle. Il peut atteindre jusqu'à trois fois le flux initial de semoule au cours de la production des grains de couscous (Abecassis et al., 2012). Outre la contrainte de la gestion des flux de recyclas au cours de l'étape d'agglomération, le fort taux de recyclage amène une surconsommation énergétique due *(i)* à la production de couscous non conforme aux critères de qualité exigés, au broyage des gros grains de couscous et *(iii)* au transport des produits recyclés en début de ligne de production.

Table II.4.2.1.

Comparaison des compositions biochimiques et des propriétés physiques de la semoule de blé dur native, des recyclas humides et des recyclas secs (adapté de Abecassis et al., 2012)

Paramètres	Semoule de blé dur	Recyclas humides	Recyclas secs
Teneur en eau (%)	14.5 (+/- 0.4)	31.6 (+/- 0.9)	8.7 (+/- 0.3)
Teneur en amidon (%)	86.2 (+/- 6.0)	85.8 (+/- 6.0)	85.6 (+/- 6.0)
Teneur en amidon gelatinise (%)	5.9 (+/- 0.3)	26.5 (+/- 1.3)	75 (+/- 3.8)
Teneur en protéines (%)	13.5 (+/- 0.5)	13.2 (+/- 0.5)	13.3 (+/- 0.5)
Teneur en protéines solubles (%)	12.7 (+/- 0.6)	10.5 (+/- 0.5)	2.3 (+/- 0.1)
Teneur en pentosane (%)	1.7 (+/- 0.2)	1.8 (+/- 0.2)	1.7 (+/- 0.2)
Acide gras (%)	1.4 (+/- 0.1)	…	0.7 (+/- 0.1)
d50 (µm)	300 (+/- 30)	560 (+/- 30)	295 (+/- 30)
Span	0.9 (+/- 0.0)	1.3 (+/- 0.0)	1.4 (+/- 0.0)
Densité (g/L)	670 (+/-1.0)	652 (+/- 1.0)	794 (+/- 1.0)

II.4.3. Qualités du grain de couscous final

Abecassis et al. (2012) ont distingué les paramètres de qualité de couscous en trois catégories : la qualité des grains de couscous secs, la qualité à l'hydratation et la qualité à la consommation.

II.4.3.1. Caractéristiques des grains de couscous secs

Debbouz et al. (1994), Debbouz et Donnelly (1996), Ounane et al. (2006) considèrent que les critères de qualité d'un grain de couscous sec incluent l'uniformité de la taille des grains, la couleur et le gout. Le Tableau II.4.3.1 résume les principaux critères évalués pour un grain de couscous.

Un grain de couscous est caractérisé par une couleur jaune qui dépend essentiellement de la semoule de blé dur et du procédé de fabrication (Guezlane, 1993). Ainsi, les grains de couscous fabriqués à la main ont une couleur jaune plus prononcée (b* = 30.7) et sont plus clairs (L* = 71.3) que les grains de couscous industriels. Cela est dû aux pertes en pigments caroténoïdes qui sont moins importants lors d'une fabrication à la main.

Le *Codex Alimentarius* définit la taille d'un grain de couscous entre 1000 et 2000 µm. Le couscous industriel est généralement vendu en trois qualités, suivant sa taille : le couscous fin, moyen ou large.

Table II.4.3.1.

Critères de qualité d'un grain de couscous (adapté de Abecassis et al., 2012)

Paramètres	Valeurs
d_{50} (µm)	1500 (+/- 30)
Densité (Kg/m^3)	1260 – 1270 (+/- 5.0)
Couleur (L*/ a* / b*)	53.72 / -0.59 / 25.68
Circularité (-)	0.650 (+/- 0.1)
Propriétés d'écoulement (-)	Très bonnes
Teneur en amidon (%)	85.6 (+/- 6.0)
Teneur en protéines (%)	13.5 (+/- 0.5)
Teneur en pentosanes (%)	1.4 (+/- 0.1)
Teneur en amidon gélatinisé (%)	71.8 (+/- 3.6)
Teneur en eau (%)	9.8 (+/- 0.3)

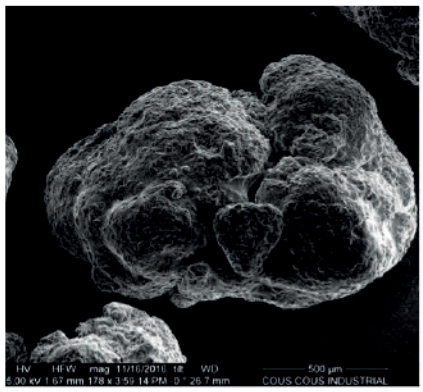


Figure II.4.3.1. Image d'un grain de couscous industriel obtenue au microscope SEM

La forme d'un grain de couscous est le plus souvent discutée en termes de circularité et d'élongation (Guezlane, 1993). Un grain de couscous doit avoir une circularité autour de 0.65 et un facteur d'élongation entre 0.70 et 0.74. Pour finir l'étude de la microstructure d'un grain montre le processus de construction par l'association de petites particules de semoule natives plus ou moins « fondues » et compactées les unes aux autres (Figure II.4.3.1). La rigidité des grains de couscous est due aux ponts liquides formés entre les particules de semoule native. La présence d'un vide résiduel entre les particules de semoule témoigne d'une certaine porosité à l'intérieur des grains de couscous.

II.4.3.2. Qualité à l'hydratation

Une bonne qualité d'hydratation d'un grain de couscous lui confère son goût de blé dur et son moelleux en bouche. Cette qualité peut être évaluée à chaud ou à froid par trois critères : le temps d'absorption de l'eau, l'indice de solubilité de l'eau et l'indice d'absorption.

Le temps d'absorption est défini comme le temps nécessaire pour que l'eau soit complétement absorbée par les grains (Debbouz et al., 1994; Debbouz et Donnelly, 1996). Les temps de réhydratation optimum se situent entre 10 et 16 min. La compacité du grain impacte le temps d'absorption de l'eau.

L'indice de solubilité mesure la désintégration d'un grain de couscous pendant l'absorption d'eau. Il est mesuré comme la quantité de solides dissous dans l'eau au cours de l'immersion des grains dans un excès d'eau. Un indice de solubilité faible (autour de 4%) garanti la bonne qualité du grain.

L'indice d'absorption d'eau mesure la variation de poids des grains de couscous immergés dans un excès d'eau à 30°C. Il est en moyenne autour de 475 g d'eau pour 100 g de couscous et il est corrélé à la teneur en amidon gélatinisé.

La capacité de gonflement est évaluée comme la variation de volume d'un échantillon de couscous après immersion dans l'eau chaude (100°C) ou dans l'eau froide (25°C) (Guezlane, 1993; Guezlane et Abecassis, 1991; Ounane et al., 2006). Une capacité de gonflement élevée est signe de grains de couscous d'excellente qualité. Elle témoigne d'une capacité d'absorption de l'eau et d'une résistance à la compaction des grains de couscous. Les valeurs moyennes se situent entre 380-410 mL / 100g de couscous à 100°C.

II.4.3.3. Qualité à la consommation

La qualité à la consommation est avant tout basée sur l'analyse sensorielle des grains de couscous cuits : le collant, la texture et le goût.

Le caractère « collant » peut être mesuré en utilisant un texturomètre selon une méthode déjà utilisée pour mesurer le « collant des pâtes » (Debbouz et al., 1994, Debbouz et Donnelly, 1996). Lors de la cuisson, la solubilisation de certaines molécules à la surface du grain peut augmenter le caractère « collant ». Il a été montré qu'il est positivement corrélé avec la teneur en amidon endommagée : une teneur en amidon endommagé faible améliore ainsi la qualité des grains de couscous à la consommation.

La texture d'un grain de couscous est également évaluée avec un texturomètre. Les propriétés de texture du couscous sont évaluées à partir de la fermeté, la recouvrance élastique et l'indice de viscoélasticité. Cependant, elles sont souvent mal corrélées avec l'analyse sensorielle (Guezlane, 1993). L'analyse sensorielle permet l'évaluation qualitative du produit par un panel de juges qui notent à la fois l'apparence du grain (couleur, forme et taille) mais également les propriétés de texture (collant, fermeté, élasticité...) et le goût du produit.

Enfin, il est à noter qu'à ce jour, très peu d'études ont étudié l'impact de la matière première sur les différentes formes de qualités d'un grain de couscous (Hébrard, 2002).

II.5. Conclusion

L'étude bibliographique met en lumière le foisonnement d'informations disponibles autour des deux champs disciplinaires de mes travaux de thèse : la physique des milieux granulaires et le génie des procédés, à travers un domaine d'application, la transformation de la semoule de blé dur en grains de couscous.

Les milieux granulaires présentent une variété de comportements et de propriétés exceptionnelles : à l'interphase entre les comportements des solides, des liquides et des gaz. L'étude des milieux granulaires fait partie intégrante du champ de la « physique de la matière molle », à la croisée de la physique statique, de la mécanique et de l'étude des milieux désordonnés. La technologie du blé dur présente également une grande richesse d'informations, même si la production de grains de couscous a été largement moins étudiée que la production de pâte alimentaire (Abecassis et al., 2012). Le peu de recherches techniques et scientifiques disponible est significatif du relatif « empirisme » dans le design, l'innovation et la production de grains de couscous. Témoin de cet état de fait, on ne trouve pas de filière pilote existante ni dans les centres industriels de R&D, ni dans les laboratoires académiques. L'enjeu de ce travail consiste donc à apporter de nouvelles connaissances pour la production de couscous, des diagrammes de fonctionnement rationnalisés, des aides à la conduite des procédés ou encore de nouveaux procédés en rupture avec les technologies actuelles. Il apparait clairement que l'introduction de sciences fondamentales comme la physique des milieux granulaires couplée au du génie des procédés, permettra d'identifier plus finement les mécanismes au cours de l'agglomération, de la cuisson et du séchage en lien avec les paramètres du procédé. C'est précisément dans ce contexte global que nous exploiterons ces données bibliographiques.

Chapitre III : MATERIELS ET METHODES

Ce Chapitre III présente une description générale de l'ensemble du matériel et des méthodes utilisés dans ce travail de thèse. Il est rédigé en anglais. Le lecteur trouvera également une description détaillée du matériel et méthodes spécifiques à chaque étude dans le Chapitre IV du manuscrit.

III.1. Raw materials

III.1.1. Standard durum wheat semolina

Industrial quality semolina (Panzani group, France) was used as standard durum wheat semolina. Semolina was stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out. Semolina was first characterized using standardized methods. The water content of semolina (14.8 (±0.08) g water/100 g dry semolina) was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying at 105°C for 24 h. The characteristics values (d_{10}, d_{50} and d_{90}) of particle diameter of semolina were measured by a laser particle size analyser (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature (Fig. III.1.1.1). The median value of particle diameter of semolina (d_{50}) was of 287 (±2) µm. The diameter span was $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 1.51$. The semolina true density ($\rho_s^* = 1.415$ (±0.003) g.cm^{-3}) was measured by using an nitrogen pycnometer. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content (12.44 (±0.04) g proteins/100 g dry semolina) was calculated according to TN - 5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970).

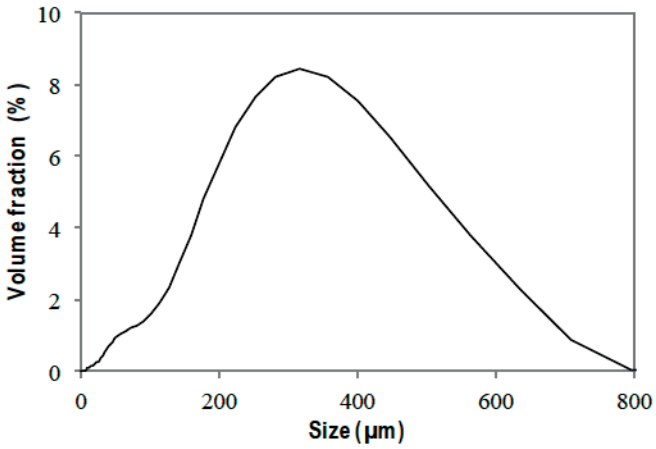


Figure III.1.1.1. Size distribution of durum wheat semolina

III.1.2. Specific durum wheat semolina

III.1.2.1. Durum wheat semolina with different median diameters

Durum wheat semolina of industrial quality (Panzani group, France) was used as "standard semolina". Four fractions of semolina with different particle size distributions were obtained by sieving the standard semolina over a column of 2 metallic sieves (0.315 and 0.25 mm). The fraction called "small semolina" was collected under the 0.25 mm sieve. The fraction called "low span semolina" was collected between the two sieves (0.25 and 0.315 mm). The fraction called "very coarse semolina" was

collected over the 0.315 mm sieve. In addition, the fraction called "coarse semolina" was collected over the 0.25 mm sieve, after sieving the standard semolina over only one sieve at 0.25 mm. The selected semolina were characterized using standardized methods (Table III.1.2.1 and Table III.1.2.2). The water content was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying at 105°C for 24 h. The particle size distributions and their characteristics values (d_{10}, d_{50} and d_{90}) were measured by a laser particle size analyser (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The true density (ρ_s^*) was measured by using an nitrogen pycnometer. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content was calculated according to TN x 5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970). All experimental measurements were carried out in triplicate. The selected raw materials allow studying separately the effects of selected variables (median diameter and span) to understand the effects of the physical and biochemical characteristics of the native particles on the wet agglomeration mechanisms.

Table III.1.2.1.

Physical characterisations of the four fractions of durum wheat semolina

	d_{10} (µm)	d_{50} (µm)	d_{90} (µm)	Span (/)	ρ_s^* (g/cm³)
Small semolina	55 (+/- 0.74)	129 (+/- 0.74)	259 (+/- 0.74)	1.58	1.461 (+/- 0.003)
Low span semolina	181 (+/- 2.46)	282 (+/- 2.46)	440 (+/- 2.46)	0.92	1.447 (+/- 0.004)
Coarse semolina	201 (+/- 1.54)	339 (+/- 1.54)	547 (+/- 1.54)	1.02	1.451 (+/- 0.006)
Very coarse semolina	269 (+/- 0.57)	393 (+/- 0.57)	573 (+/- 0.57)	0.77	1.453 (+/- 0.002)

Table III.1.2.2.

Biochemical characterisations of the four fractions of durum wheat semolina

	w (/)	Proteins content (g/ 100 g dry matter)
Small semolina	0.157 (+/- 0.01)	13.00 (+/- 0.1)
Low span semolina	0.160 (+/- 0.01)	12.70 (+/- 0.1)
Coarse semolina	0.139 (+/- 0.01)	12.40 (+/- 0.2)
Very coarse semolina	0.161 (+/- 0.01)	12.30 (+/- 0.1)

III.1.2.2. Durum wheat semolina with different proteins content

Three durum wheat semolina with different protein contents (called "very low protein semolina", "low protein semolina", and "high protein semolina") were also selected. These semolina were produced according to a standard milling process, using the durum mill pilot plant facility of the technological platform of the UMR IATE (Montpellier), from three different specific durum wheat grains (Miradoux, Dakter and Anvergur, respectively) produced in 2015 by the UMR AGIR (Toulouse) under the ANR Dur-Dur research project. All the semolina were stored in hermetic containers at 4°C until experiments. These fractions allow studying the influence of protein content at a same median diameter and span, any things (quasi) equal besides. Semolina data are presented in Table III.1.2.3 and Table III.1.2.4.

Table III.1.2.3.

Physical characterisations of the three fractions of durum wheat semolina

	d_{10} (µm)	d_{50} (µm)	d_{90} (µm)	Span (/)	ρ_s^* (g/cm³)
High proteins content	150 (+/- 3.00)	262 (+/- 3.00)	447 (+/- 3.00)	1.25	1.458 (+/- 0.003)
Low proteins content	135 (+/- 3.00)	234 (+/- 3.00)	401 (+/- 3.00)	1.14	1.448 (+/- 0.003)
Very low proteins content	119 (+/- 3.00)	227 (+/- 3.00)	402 (+/- 3.00)	1.13	1.462 (+/- 0.003)

Table III.1.2.4.

Biochemical characterisations of the three fractions of durum wheat semolina

	w (/)	Proteins content (g/ 100 g dry matter)
High proteins content	0.180 (+/- 0.10)	13.85 (+/- 0.11)
Low proteins content	0.177 (+/- 0.10)	9.38 (+/- 0.04)
Very low proteins content	0.178 (+/- 0.10)	7.72 (+/- 0.03)

III.1.2.3. Coarse durum wheat semolina **FB**

The coarse durum wheat semolina (FB) is semolina with higher median diameter, any things (quasi) equal besides. It was produced by the UMR IATE, INRA, France. It allows studying the influence of the median diameter in the **experiment using the fluidized bed**. Semolina data are presented in table III.1.2.5 and table III.1.2.6.

Table III.1.2.5.

Physical characterisations of the coarse durum wheat semolina

	d_{10} (µm)	d_{50} (µm)	d_{90} (µm)	Span (/)	ρ_s^* (g/cm³)
Coarse semolina **FB**	433 (+/- 3.00)	619 (+/- 3.00)	891 (+/- 3.00)	0.74	1.453 (+/- 0.003)

Table III.1.2.6.

Biochemical characterisations of the coarse durum wheat semolina

	w (/)	Proteins content (g/ 100 g dry matter)
Coarse semolina **FB**	0.150 (+/- 0.10)	11.56 (+/- 0.03)

III.2. Couscous grains processing

The production of couscous was conducted in batch (*i.e.* discontinuous process), according to the 4 stages: agglomeration, rolling, cooking and drying. The pilot line used in couscous production is composed of different equipments: mechanical mixers, rotating drum, steam cooker and drier.

III.2.1. Wet agglomeration experiment

The wet agglomerations of durum wheat semolina were carried out in four different mechanical mixers: a SPI10 (VMI, France), two horizontal mixers (Sercom, France) and a Kenwood Major 1200 (Kenwood, United Kingdom) in order to test different bowl and blades geometries and generated different low shear conditions of mixing.

III.2.1.1. Mechanical mixers

The planetary mixer (Kenwood Major 1200) (Fig. III.2.1.1a) is equipped with a 5 liters fixed bowl and a K blade that rotates around a vertical axis in an adjustable speed range. **The vertical low shear mixer** (SPI10 Labo V03, VMI, France) (Fig. III.2.1.1b) was equipped with a 10 litres rotating bowl and contain a spiral blade. Two different motors were used to induce both blade and bowl rotations. As a consequence, the rotation speed and direction of the blade and the bowl were independently controlled.



Figure III.2.1.1. Mechanical low shear mixers Kenwood Major 1200 (Kenwood, United Kingdom) equipped with a K blade (a) and SPI10 (VMI, France) equipped with a spiral blade (b)

The two horizontal low shear mixers were composed by a mixing a horizontal shaft axis positioned at the bottom of the tank, with metal rotating paddle blades. The axis is set so as to bring the bed of powder to the centre during 20 seconds and onto the ends of the mixer in order to improve the mixing step.

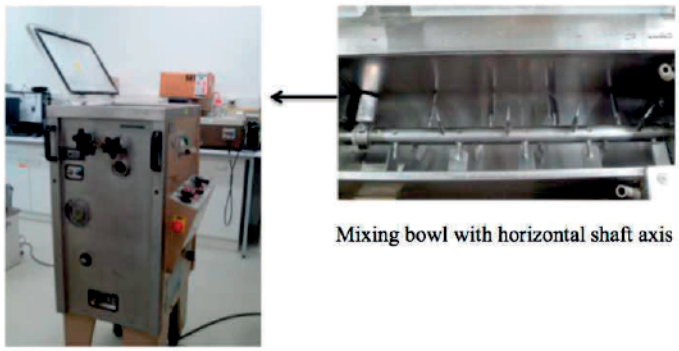


Figure III.2.1.2. Horizontal mixer with a capacity of 2 Kg

The **smaller horizontal mixer** ("mini presse à pâtes", Sercom, France) (Fig. III.2.1.2) was equipped with a mixing tank (30 cm length, 11.5 cm width, 16.5 cm height), with a capacity of 2 kilograms and a horizontal shaft axis, positioned at 5.5 cm from the bottom of the tank, with 14 metal rotating paddle blades (4 cm length, 2 cm width, 7.5 cm gap between 2 blades). The **larger horizontal mixer** ("presse à pates bassano", Afrem, France) (Fig. III.2.1.3) was equipped with a mixing tank (75 cm length, 20 cm width, 25 cm height), with a capacity of 10 kilograms and a horizontal shaft axis, positioned at 10 cm from the bottom of the tank, with 22 metal rotating paddle blades (6 cm length, 3 cm width, 12 cm gap between 2 blades).

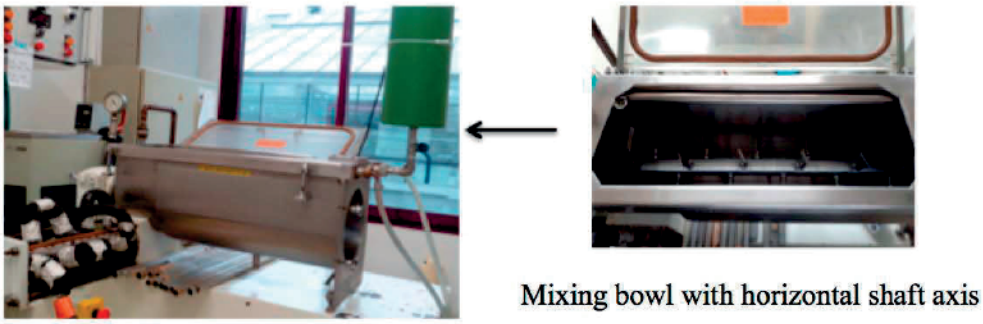


Figure III.2.1.3. Horizontal mixer with a capacity of 10 Kg

III.2.1.2. Water spraying systems

The tap water input during the agglomeration processes is mainly conducted using a **single-fluid atomizing system** (Spraying Systems Co., France, ref. TPU 6501) to produce a flat spray of droplets (Figure III.2.1.4). The flat spray nozzle is either connected to a regular water supply network with a stable pressure or to a peristaltic pump (520S/REM, Watson Marlow, France) in order to better control the liquid flow rate. The size of droplets of water was near to 242 µm using the equation of Mandato et al. (2012). The water addition flow rate is close to $\sim 2.10^{-6}$ $m^3.s^{-1}$. These process conditions induced a value of the dimensionless spray flux ψ_a close to 0.1. The ratio of drop penetration time to granular circulation time is close 0.01. The two latter values depicted on the nucleation regime map defined by Hapgood et al. (2003), locate the nucleation regime in the drop controlled zone of this diagram.

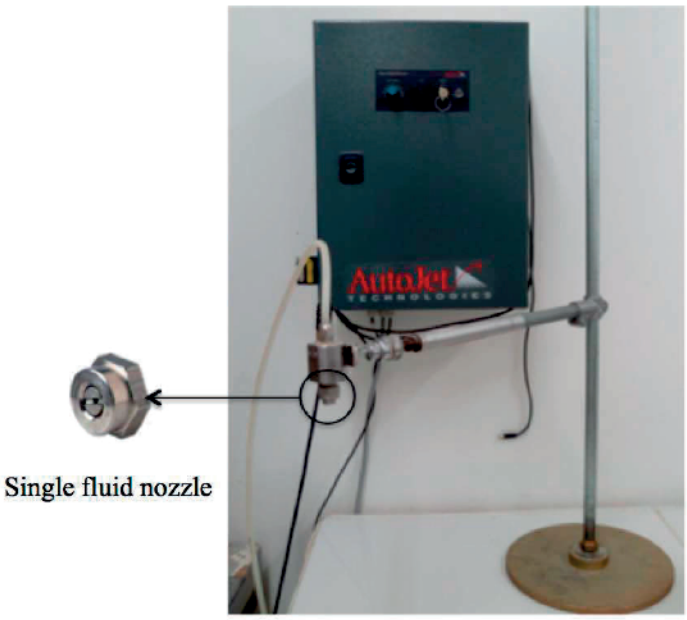


Figure III.2.1.4. Picture of the single-fluid atomization nozzle (Spraying Systems Co., France)

III.2.1.3. Wet agglomeration process

Wet agglomeration experiments were divided into three stages. The semolina is first mixed for 2 min without liquid binder addition in order to homogenize the powder and to equilibrate the temperature

(between 20 to 25°C). Water was then added either by spraying directly on the semolina bed using the spraying nozzle, or by using a funnel at constant flow rate (only for the wet agglomeration with the larger horizontal mixer). Different amounts of water were added in order to reach different hydration levels (between 0.20 and 0.59 g water / g dry matter). The flow rate was between 2 $g.sec^{-1}$ and 8 $g.sec^{-1}$, depending on the process. For the spraying method, the time of spraying was adjusted to reach the desired final water content. It ranged between 2 minutes and 12 minutes depending on the equipment used and the final water content. In all the equipments, the bowl is filled with a mass of semolina and water corresponding to 50% of their capacity (between 1 and 8 Kg). During the last step the wet masses were then mixed for homogenization during the desired mixing time (between 0 to 18 minutes).

III.2.2. Rolling experiments

Experiments were performed in the rotating screen drum as illustrated in Figure III.2.1.5. It consisted of a cylindrical stainless-steel screening device (0.5 m diameter and 1 m total length) that rotated to perform rolling and size separation of the agglomerates. The cylinder was supported by a central axis and rotated by an electric motor and belt drive. The rotating screen drum consists of 2 successive joined cylindrical screening cylinders, each of 0.5 m height, having a 0.44 mm effective screening length (screen area = 69 cm^2). Sieve holes were round holes of 1 and 2.2 mm diameter. Different inclinations (5.1, 6.2, 7.4, 9.7, and 12.0°) and different rotating drum speeds (2, 7.5, 13, 20, and 26 rpm) of the drum were tested. The wet agglomerates were continuously fed by using a vibrating feeder inside the rotating drum, tangentially to the bottom of the first screening ring. Different feed rates (6.7, 11.4, 20.7, and 25.3 $g.sec^{-1}$) were tested. Depending on the operating conditions, the total time of the rolling/screening stage was around 10 minutes.

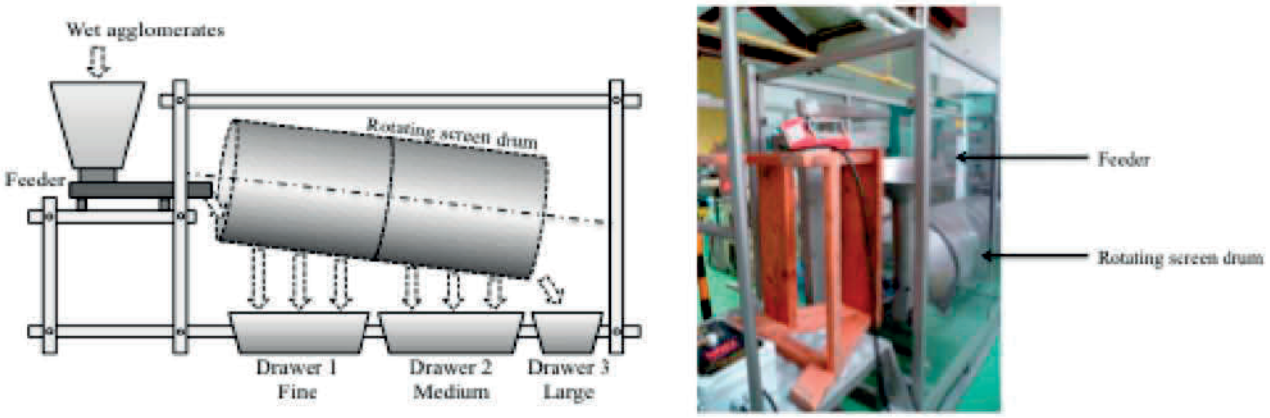


Figure III.2.1.5. Image and schematic representations of the experimental rotating screen drum

The fine agglomerates are first collected in a drawer under the first screen (1 mm). The medium agglomerates are collected in a drawer under the second screen (2.2 mm). The large agglomerates are discharged out of the drum and collected in a third drawer. For each experiment, the mass of the collected agglomerates in the three drawers was weighed.

**Notes:* In the case of the rolling experiments, the wet agglomeration process was conducted by using a horizontal low shear mixer. A sample of 5.0 kg of semolina was first introduced in the mixing tank. The sample of semolina was mixed for 2 min at constant mixer arm speed (80 rpm) to equilibrate the temperature at 25°C (± 2°C). Water was directly poured over the semolina under mixing at almost constant flow rate (8 $g.sec^{-1}$) during 2 minutes. Water addition was conducted to reach a final water content of 42.5 g water / 100 g dry matter. After the water addition step, the mixture was stirred for 18 min to homogenize and agglomerate. The wet agglomerates were then collected using a plastic bowl and directly introduced in the rotating drum equipment.

III.2.3. Cooking experiments

The wet agglomerates were spread as a thick (3 mm) layer over a stainless steel plate and steamed during different times (1, 3, 5 and 10 min) at 100°C under saturated steam flow (20 $kg.h^{-1}$) at atmospheric pressure, inside a 20 litres steam cooker (Fig. III.2.1.6) (Ravant Chaudronnerie, France).

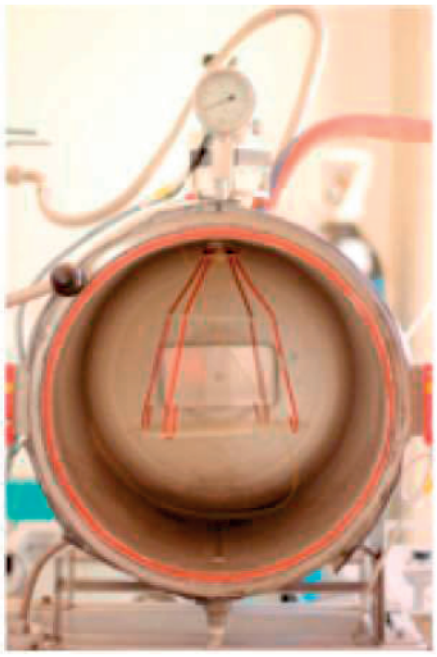


Figure III.2.1.6. The pilot steam cooker used during couscous production

III.2.4. Drying experiments

The cooked agglomerates were then stabilized by drying as thin (5 mm) layer, over seven stainless steel mesh by using a pilot scale dryer (Fig. III.2.1.7) (Afrem, Lyon, France). The agglomerates of couscous were dried under different conditions of temperatures (90, 70 and 50°C) at 50% of relative humidity and during different times (1, 3, 5, 7, 10, 15 and 20 min). The dried couscous grains were collected and stored inside hermetic plastic cups until characterization.

**Notes:* Before the cooking and drying experiments, the wet agglomeration process was conducted by using a horizontal low shear mixer. A sample of 780 g of semolina was first introduced in the mixing

tank. The sample of semolina was mixed for 2 min at constant mixer arm speed (100 rpm) to equilibrate the temperature at 25°C (± 2°C). Water was directly poured over the semolina under mixing at almost constant flow rate (2 $g.sec^{-1}$) during 2 minutes. Water addition was conducted to reach a final water content of 48.2 g water / 100 g dry matter. After the water addition step, the mixture was stirred for 10 min to homogenize and agglomerate. The wet agglomerates were then collected using a plastic bowl. The total mass of wet agglomerates was then transferred on a column of two sieves of decreasing meshes (2 mm and 0.9 mm). The sieve column was manually shaken for 2 min. Sieving yield was calculated by weighing the amount (g) of wet couscous grains with a size between 0.9 and 2 mm and obtained from the initial wet mass of agglomerates of durum wheat semolina.

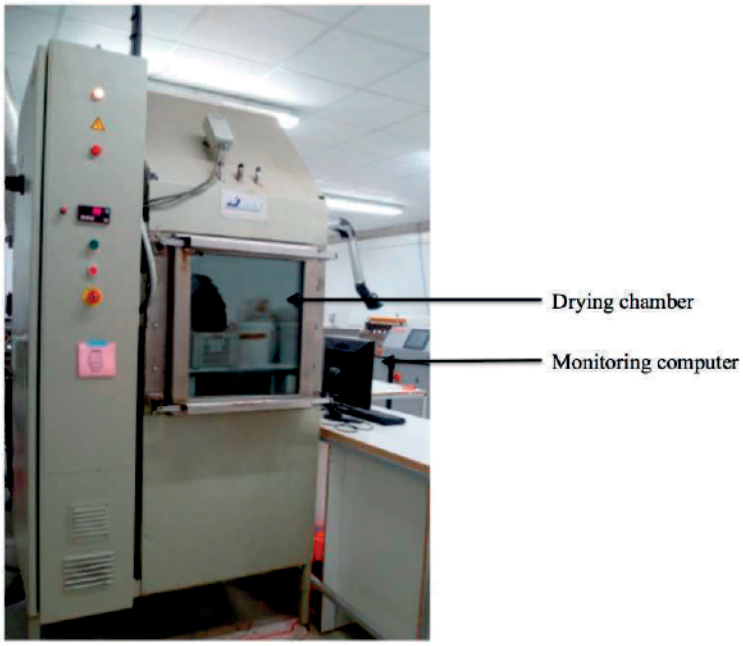


Figure III.2.1.7. The pilot scale dryer used during couscous production

III.2.5. Fluidized bed experiments

The wet agglomeration process was conducted by using a glass fluidised bed granulator (Mini-Airpro, ProcepT, Belgium) (Fig. III.2.1.8). Water was used as the liquid binder. Water was sprayed using a nozzle in a downward direction (*i.e.* in the counter current to the air flow). The temperature of the inlet air flow was kept constant during experiments (25°C) and controlled using a temperature probe (Fig. III.2.1.8). A constant weight of semolina (300 g) was first introduced inside the unit and was fluidized by ascendant air flow at constant rate (0.70 m^3/min) for 2 min to equilibrate the temperature. The flow rate of water was kept constant using a peristaltic pump (8 mL/min), and controlled by the continuous measurement of the weight of the water reservoir. The time for water addition (3, 6, 9, 12.5, or 16.3 min) was defined in regards with the amount of added water (24, 48, 72, 100, or 130 g) that was incorporated inside the reactor, in order to reach specific amount of added water (0.08, 0.16, 0.24, 0.33 or 0.43 g of added water / g of semolina) and formulation hydration levels (0.24, 0.33, 0.42, 0.53, or 0.65 g of water / g dry matter).

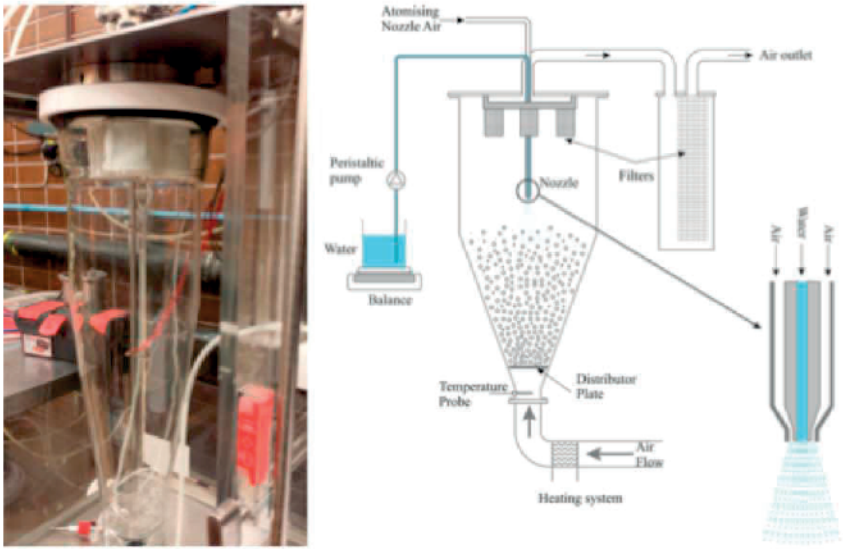


Figure III.2.1.8. Image and schematic description of the fluidized bed equipment

Immediately after the agglomeration stage, the collected wet agglomerates were sieved over a column of 2 metallic sieves of decreasing mesh (1.4 and 0.85 mm) for 2 min at ambient temperature. The sieve column was manually shaken to limit the possible breakage of the wet agglomerates. The range of mesh size was determined in regards with the capacities of the experimental equipment and with the values classically used in the couscous grain industry. The wet agglomerates that were collected over the 0.85 mm sieve, were immediately spread as a thin (3 mm) layer over a stainless steel plate inside a steam cooker (Kenwood rice cooker RC310), and steamed for 10 min at 100°C using saturated steam at atmospheric pressure. The steamed agglomerates were immediately collected, spread as a thin layer (again about 3 mm) over stainless steel mesh and then drying in an oven (GallenKamp Plus II oven 150L) for 25 min at 50°C and at 15% relative humidity. The dried agglomerates were collected and stored inside hermetic plastic cups until characterization.

III.3. Analytical methods to characterize the agglomerates of couscous

III.3.1. Physico-chemical properties

Water content - The water content (w) of agglomerates (dry basis) was determined on 3-5 g samples, by a drying method in an oven (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h (AACC Method 44-15A). Mean values were determined from triplicate: $w = m_w/m_s$, where w is the water content of agglomerates (g / g dry matter), m_w is the mass of water (g) and m_s is the mass of dry matter (g) in the sample.

Extent of starch gelatinization - Modulated differential scanning calorimetry (DSC Q200, TA Instruments, New Castle, DE, USA) calibrated with indium, was used to determine the extent of starch gelatinization of couscous grains, compared to semolina which is taken as reference. Before measurements, the couscous grains were first ground and sieved to pass through a 315 µm mesh screen. About 5 mg of sample were placed in a DSC aluminium pan and 12 µL of water were added with a micropipette. The pan was then sealed, reweighed and allowed to stand for 1 h at room temperature.

Analyses were performed from 30 to 110°C at a heating rate of 10°C.min^{-1} using an empty pan as a reference. For each endotherm, the onset (To), peak (Tp) and conclusion (Tc) temperatures and the gelatinization enthalpy (ΔH) were computed by using the TA Instruments analysis software. Experiments were carried out in triplicate. The starch gelatinization degree was determined by comparing sample gelatinization enthalpy (ΔH) with the reference gelatinization enthalpy ΔHR measured for native semolina. Degree of starch gelatinization (%) = $\left(1 - \frac{\Delta H}{\Delta HR}\right) \times 100$.

III.3.2. Physical properties

Size distribution - The size distribution was measured for the initial wet agglomerates by sieving a sample on the top of a column of 10 sieves of decreasing meshes (2, 1.25, 0.9, 0.8, 0.71, 0.63, 0.5, 0.4, 0.315 and 0,25 mm). The sieve column was shacked manualy for 2 min, to limit the particle breakage during the mechanical shaking process. The size distribution was obtained by weighing the mass of agglomerates on each sieve. The weight distribution according to size criteria was expressed as the percent of total weight. Measurements were conducted in triplicate.

Compactness - Samples of agglomerates (about 1 g) were used to determine the compactness, *i.e.* the solid volume fraction: $\phi = \rho_s / \rho_s^*$. The solid apparent density ρ_s of the wet agglomerates was calculated from the solid apparent density ρ (measured using a hydrostatic balance with paraffin oil): $\rho_s = \rho/(1+w)$. The solid true density ρ_s^* was measured by using a nitrogen pycnometer (Ultrapyc 1200e, Quatachrom) after drying the agglomerates in an oven at 105°C for 24 h.

Agglomerates strength - The agglomerate strength was measured only after the drying stage. A texture analyser (TA-HD Plus, Stable Micro Systems, UK) was used to measure the agglomerate strength, which is the force needed to compress one agglomerate over a distance of 0.40 mm. A 5 kg load cell was used with a compressive probe operating at 0.1mms^{-1}. Texture experiments were conducted by characterizing the agglomerates one by one. It was thus not possible to characterize a large number of agglomerates. A restricted number of agglomerates (about 10) having some homogeneity in their size, to be statistically representative of the sample were tested. Mean values were determined from 10 measurements.

III.3.3. Morphometric parameters

Four methods were used in this research work to study the morphometric parameters of the couscous grains: a simple camera (Lumix DMC-FS11, Panasonic, Tokyo, Japan) ; a Camsizer (Retsch, Germany) digital analyser, an AZ Macroscope (Nikon, JP) and a scanning electron microscopy (Inspect F by FEI operating at 5kV). We had to choose different camera as we were subjected to different availability periods of these equipments in the lab.

Camera Lumix - We sampled a number of agglomerates (between 10 to 30) to be statistically representative of the shape of the sample. The selected wet agglomerates were dispersed on glass slides

and observed by a camera (Lumix DMC-FS11, Panasonic, Tokyo, Japan). Image analyses were carried out with Fiji® software by following these steps:

- Image pre-treatment includes particle's border killing (removes particles that touch the border of the image), particle's silhouette hole filling (filling the holes within particle silhouette), separation function (breaks narrow isthmuses and separates touching particles), and morphological cleaning.
- Calibration step implies a translation from pixel unit into metric units.
- Measurements of the silhouette dimensions: Perimeter (P) and Area (A).
- The circularity shape factor is defined as the ratio of the perimeter of the silhouette (P) and the circumference of a disk that has the same area (A) as the silhouette. For a disk, circularity equals 1. Circularity value is lower than 1, when the projected shape of the particle departs from a disk, either because of a high roughness in particle surface or because of elongation. Circularity is equal to 0.89 for a square and to 0.50 for a long rectangle: $Circularity = P / 2\sqrt{\pi A}$. The presented values of the circularity shape factors were mean of the measured values.

Macroscope - Wet agglomerates were mounted on glass slides. Images were taken by a DS-Ri1 camera (color mode RGB, 16 bits per channel, 1280 x 1024 pixels) mounted on an AZ100 macroscope (Nikon, JP) (magnifications from x1 to x40) in light transmission mode. For each slide position, series of 15–17 images with different focal planes were taken in order to compose an extended focus image (image composed of the sharpest pixels between the Z-series). In addition, mosaic images were assembled by reconstructing 4 x 4 extended focus images using the imaging software NIS-Elements (Nikon, JP) operating the AZ100 system.

Camsizer - Samples of agglomerates (about 10 g) were analysed in the Camsizer digital analyser (Retsch, Germany). The sphericity is a measurement of the length/width relationship, with values in the range 0 - 1. A perfect circle has a sphericity of 1.0, while a needle shaped object has a sphericity close to 0. Measurements were conducted in triplicate.

Scanning Electron Microscopy - The microstructure of the agglomerates was also observed by scanning electron microscopy (Inspect F by FEI operating at 5kV). A sample of agglomerates was dispersed on a conducting carbon tape prior to analysis. Pictures were taken for each sample.

III.3.4. Statistical analysis

The statistical significance of results was assessed using single factor analysis of variance (ANOVA). Multiple comparisons were performed by calculating the least significant difference using Microsoft Excel 2010, at a 5% significance level.

Chapitre IV : RESULTATS

IV.1. Wet agglomeration of durum wheat semolina

L'agglomération de particules de semoule de blé dur a fait l'objet de travaux antérieurs sur des malaxeurs à très faibles taux de cisaillement. Ils ont permis d'apporter des connaissances sur les mécanismes de structuration du lit de poudre et des agglomérats à partir de la semoule de blé dur (Barkouti et al., 2014; Saad et al., 2011), ainsi que sur l'effet du liant sur ces mécanismes (Barkouti et al., 2012). Mandato (2012) a travaillé également sur les écoulements granulaires dans un malaxeur modèle simplifié. L'étude bibliographique et les enjeux industriels associés à l'opération d'agglomération de particules du semoule montrent la nécessité d'incrémenter les connaissances acquises sur les mécanismes d'agglomération par l'étude de cette opération dans différents équipements de malaxage. Les enjeux de l'ANR Dur Dur sont aussi de répondre à la question de l'impact de la teneur en protéines et de la taille des particules de semoule sur les rendements et la qualité du grain en sortie de chacune des opérations unitaires de la chaîne de fabrication. Le travail sur l'opération unitaire d'agglomération présenté dans ce chapitre a donc pour objectifs *(i)* d'améliorer les connaissances des mécanismes impliqués lors de l'agglomération de particules de semoule pour la fabrication de grains de couscous et *(ii)* d'étudier l'impact de la formulation et du procédé sur les mécanismes de structuration à l'échelle d'un grain.

Le chapitre est organisé en deux paragraphes.

Le paragraphe IV.1.1 reprend le texte en anglais de la publication : *Bellocq B., Duri A., Cuq B., Ruiz T. 2017. Impacts of the size distributions and protein contents of the native wheat powders in their structuration behaviour by wet agglomeration. Journal of Food engineering (accepted for publication).* Dans ce paragraphe, nous traitons de l'impact des caractéristiques physiques (la distribution de taille) et des caractéristiques biochimiques (la teneur en protéines) des particules de semoule sur les mécanismes d'agglomération.

Le paragraphe IV.1.2 présente les résultats relatifs à l'effet de trois équipements de malaxage à faible taux de cisaillement sur les mécanismes d'agglomération de la semoule de blé dur. Il s'intitule « low shears wet granulations processes: application to the structuration of the durum wheat semolina for the manufacture of couscous grains ». Il est rédigé en anglais, dans le format d'une publication en cours de rédaction.

IV.1.1. Impacts of the size distributions and protein contents of the native wheat powders in their structuration behaviour by wet agglomeration

IV.1.1.1. Introduction

The wet agglomeration process is broadly used in a wide range of industrial applications (*e.g.* food processing, pharmaceutical industry, chemical and civil engineering, *etc.*). This process is used to increase the diameter of particles by adding a wetting liquid and mechanical energy to promote attractive interactions and mobility (Iveson et al., 2001). The wet agglomeration mechanisms present a multifactorial inference of many interacting variables, responsible of the process complexity (Benali et al., 2009; Palzer, 2011). The knowledge and the modelling of mechanisms involved in the agglomeration processes widely progressed since about twenty years (Sanders et al., 2009; Washino et al., 2013). The twin product/process approaches, developed within the framework of science and technology of powders, allow purposing dimensional and process control tools, which help to solve the industrial challenges (Hapgood et al., 2009; Mangwandi et al., 2012). These approaches improve very effectively empiricism even guided by the experimental designs.

The development of population balance approaches have allowed ensuring a complete prediction of the size distribution of the agglomerates (Gerstlauer et al., 2006; Tan et al., 2005). This approach remain based on a simplified phenomenology and very dependent on the capacity to estimate the values of the kernel coefficients (Braumann et al., 2010). The increase of the size is relatively well mastered at lab scale and it is possible to predict values such as the median diameter of the agglomerates.

The investigation of the agglomeration mechanisms also requires taking into consideration the changes in the morphology or the hydro-textural characteristics of the agglomerates, such as the compactness or the sphericity. Among the multiple phenomena occurring simultaneously during the wet agglomeration, how to identify *a priori* the limiting phenomenon or the preferential reactive mechanisms?

The wet agglomeration process requires the addition of water to generate capillary bridges, which promotes the cohesion between particles. Agglomeration mechanisms result from the spatial arrangement of the native particles with the binder components, promoting attractive interactions and links. The contribution of liquid bridges between native particles largely overtakes the physical forces and the van der Waals interactions (Hapgood et al., 2003). For food powders, besides the contribution of physical phenomena, the mechanisms also depend on the physicochemical reactivity of the molecules, which strengthens the adhesion forces between particles, by adding a significant contribution of the viscous forces (Cuq et al., 2013). When the food powders are hydrated, some of their molecules are able to undergo irreversible physicochemical changes, such as solubilisation. The molecules have the capacity to establish with the surrounding molecules low energy interactions including hydrogen bonds, hydrophobic interactions, or ionic interactions. For examples, the wheat proteins can establish continuous macromolecular network when subjected to water addition and mixing, that contribute to irreversible mechanisms (Abecassis et al., 2012).

The couscous grains, a typical Mediterranean foodstuff, are produced by agglomeration process from durum wheat semolina. Recent works demonstrated different modes of agglomerate morphogenesis during the wet agglomeration of durum wheat semolina to produce couscous grains (Barkouti et al., 2014; Hafsa et al., 2015; Saad et al., 2011). Agglomeration mechanisms developed during the wetting/mixing of durum wheat semolina generated differences in agglomerated structures. Their multiplicity leads to a very large polydispersity of the size of the wet agglomerates. This is at the origin of the very high ratio (up to 60%) of out of scope of wet agglomerates (too large or too small) that are observed during the industrial processing of the couscous grains. A narrow size distribution of the agglomerates is one of the main quality criteria for the elaboration. The quantification of the fluctuations in these parameters around their mean values stays a challenge.

Only few works deal to describe the influence of the characteristics (size distribution and protein content) of native semolina on the wet agglomeration process, in order to investigate the specific contributions of the physical and biochemical mechanisms. Lefkir et al. (2017) have compared the ability of three different durum wheat semolina of industrial quality to be agglomerated. The yield of the wet agglomeration was significantly affected by the characteristics of native semolina, although it was not possible to know if it was an effect of the protein content or of size distribution of the semolina.

The aim of this work is to describe the wet agglomeration mechanisms by analysing the experimental investigations, to understand how the initial characteristics (particle-size distribution and protein content) of the native durum wheat semolina impact the characteristics of the wet agglomerates. Experiments were conducted using different durum wheat semolina, with different size characteristics or protein contents. The wet agglomeration process was conducted by using a low shear mechanical mixer. Wet agglomerates are considered as multiphase media described as a solid granular matrix that could be saturated or unsaturated by two fluids: liquid and gaseous phases (Rondet, 2008; Ruiz et al., 2011). The hydro-textural states of the wet agglomerates are defined by the distribution of the values of water content (w), compactness (ϕ) and saturation degree (S).

IV.1.1.2. Material and methods

IV.1.1.2.1. Raw material

Durum wheat semolina of industrial quality (Panzani group, France) was used as "standard semolina". Four fractions of semolina with different particle size distributions were obtained by sieving the standard semolina over a column of 2 metallic sieves (0.315 and 0.25 mm). The fraction called "small semolina" was collected under the 0.25 mm sieve. The fraction called "low span semolina" was collected between the two sieves (0.25 and 0.315 mm). The fraction called "very coarse semolina" was collected over the 0.315 mm sieve. In addition, the fraction called "coarse semolina" was collected over the 0.25 mm sieve, after sieving the standard semolina over only one sieve at 0.25 mm. Three durum wheat semolina with different protein contents (called "very low protein semolina", "low protein semolina", and "high protein semolina") were also selected. These semolina were produced

according to a standard milling process, using the durum mill pilot plant facility of the technological platform of the UMR IATE (Montpellier), from three different specific durum wheat grains (Miradoux, Dakter and Anvergur, respectively) produced in 2015 by the UMR AGIR (Toulouse) under the ANR Dur-Dur research project. All the semolina were stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out (less than 6 months to avoid significant changes).

Table IV.1.1.1.

Physical and biochemical characteristics of the different selected durum wheat semolina

	d_{50} (µm)	Span (/)	True density (ρ_s^*) (g/cm^3)	Water content (g/g dry matter)	Proteins content (g/ 100 g dry matter)
Standard semolina	287 (± 2) ^{f}	1.51 (+/- 0.01) ^{f}	1.415 (± 0.003) ^{a}	0.173 (± 0.001) ^{d}	12.4 (± 0.1) ^{c}
Low span semolina	282 (± 2) ^{e}	0.92 (+/- 0.04) ^{b}	1.447 (± 0.004) ^{b}	0.160 (± 0.004) ^{bc}	12.7 (± 0.1) ^{d}
Small semolina	129 (± 1) ^{a}	1.58 (+/- 0.02) ^{g}	1.461 (± 0.003) ^{c}	0.157 (± 0.001) ^{b}	13.0 (± 0.1) ^{e}
Coarse semolina	339 (± 2) ^{g}	1.02 (+/- 0.01) ^{c}	1.451 (± 0.006) ^{b}	0.139 (± 0.001) ^{a}	12.4 (± 0.2) ^{cd}
Very coarse semolina	393 (± 1) ^{h}	0.77 (+/- 0.00) ^{a}	1.453 (± 0.002) ^{bc}	0.161 (± 0.001) ^{c}	12.3 (± 0.1) ^{c}
Very low protein semolina	227 (± 3) ^{b}	1.13 (+/- 0.02) ^{d}	1.462 (± 0.003) ^{c}	0.178 (± 0.001) ^{ef}	7.7 (± 0.1) ^{a}
Low protein semolina	234 (± 3) ^{c}	1.14 (+/- 0.02) ^{d}	1.448 (± 0.003) ^{b}	0.177 (± 0.001) ^{e}	9.4 (± 0.1) ^{b}
High protein semolina	262 (± 3) ^{d}	1.25 (+/- 0.02) ^{e}	1.458 (± 0.003) ^{c}	0.180 (± 0.001) ^{f}	13.8 (± 0.1) ^{f}

The selected semolina were characterized using standardized methods (Table IV.1.1.1). The water content was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying at 105°C for 24 h. The particle size distributions and their characteristics values (d_{10}, d_{50} and d_{90}) were measured by a laser particle size analyser (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The true density (ρ_s^*) was measured by using an nitrogen pycnometer. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content was calculated according to TN x 5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970). All experimental measurements were carried out in triplicate.

The selected raw materials allow studying separately the effects of selected variables (median diameter, span, or protein content) to understand the effects of the physical and biochemical characteristics of the native particles on the wet agglomeration mechanisms.

IV.1.1.2.2. Wet agglomeration process

The wet agglomeration of durum wheat semolina was carried out in a horizontal low shear mixer (Sercom, France) composed by a mixing a horizontal shaft axis positioned at 6.7 cm from the bottom of the tank (30 cm length, 11.5 cm width, 16.5 cm height), with 14 metal rotating paddle blades (4 cm length, 2 cm width, 7.5 cm gap between 2 blades) (Fig. IV.1.1.1).

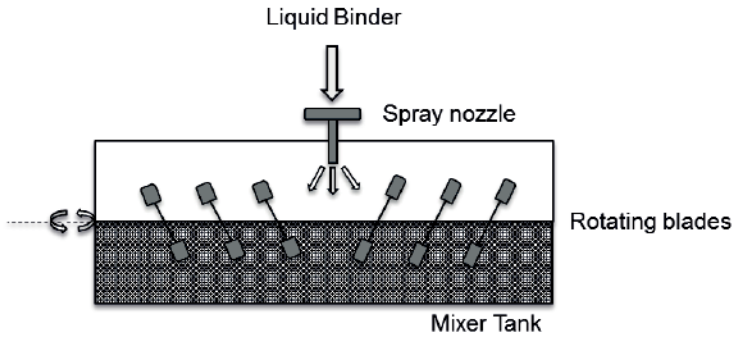


Figure IV.1.1.1. Sketch of the horizontal low shear mixer equipment

The direction of rotation of the shaft axis was inverted every 20 seconds to improve the effects of mixing and homogenization of the powder. The process can be qualified as low shear mixer because the mixing conditions do not lead to shear stresses as intense as those sitting within high shear mixers (Rondet et al., 2012).

A sample of 780 g of semolina was introduced in the mixing tank and first mixed for 2 min at constant mixer arm speed (100 rpm) to equilibrate the temperature at 20°C. The wet agglomeration was conducted at 100 rpm. Water was directly sprayed over the semolina under mixing, using a single-fluid atomizing system (Spraying Systems Co., France, ref. TPU 6501) to produce a flat spray of droplets. The flat spray nozzle was either connected to a regular water supply network with a stable pressure or to a peristaltic pump (520S/REM, Watson Marlow, France) in order to control the liquid flow rate. The water addition flow rate was 2.10^{-6} $m^3.s^{-1}$ and the diameter of droplets of water was estimated at 242 µm according to Mandato et al. (2012). The calculated $d_{50semolina}/d_{50droplet}$ ratio was found to range between 0.5 when using the small semolina, and 1.6 when using the very coarse semolina. These process conditions induced a value of the dimensionless spray flux (ψ_a) close to 0.1 (Litster et al., 2001). Taking into consideration the characteristics of the liquid and the native powders, the ratio of drop penetration time to granular circulation time was estimated close to 0.01, whatever the semolina tested. When depicting these values on the nucleation regime map (Hapgood et al., 2003), the nucleation regime could be located just near the drop controlled zone.

The spraying time (about 2 min) was adjusted with respect to the targeted water content of the wet mass (0.45 g water/g dry matter). After the water addition step, a mixing stage at 100 rpm for 10 minutes was conducted to homogenize the entire wet mass. Samples of the wet agglomerates were collected immediately after the end of the mixing step.

IV.1.1.2.3. Agglomerates characterization

Size distribution - Size distribution of the wet agglomerates was measured immediately after completing the wet agglomeration process. Samples of 250 g were collected and sieved over a column of eleven metallic sieves of decreasing mesh $D_j \in$ (2, 1.25, 0.9, 0.8, 0.71, 0.63, 0.5, 0.4, 0.315, 0.25, and 0.160 mm) to separate the different structures. The subscript j refers to the sieve number according

to the mesh openings. The sieve column was manually shacked for 2 min. The size distribution was obtained by weighing the mass of the products collected on each sieve. The weight distribution according to size criteria was expressed as the percent of total weight. Measurements were conducted in triplicate. Immediately after sieving, products were sampled from the remaining on the sieves with 2, 1.25, 0.9, 0.8, 0.71 mm mesh openings, and are then characterized by their water content (w_j) and compactness (ϕ_j).

Water content - The water content (g water / g dry matter) of wet agglomerates was determined on 3-5 g samples, by a drying method in an oven (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h (AACC Method 44-15A). Mean values were determined from triplicate.

Compactness - The compactness (*i.e.* the solid volume fraction: $\phi = \rho_s/\rho_s^*$) of wet agglomerates was determined on about 1 g samples, according to Rondet et al. (2009). The solid apparent density of the wet agglomerates (ρ_s) was measured by using a hydrostatic balance with paraffin oil, which ensures the wet agglomerates without penetrating them.

Saturation degree - The saturation degree is the ratio of the liquid volume to the pore volume of agglomerates: $S = V_w/(V - V_s)$, where V_s and V_w are respectively the volume of the solid phase and the volume of the liquid phase, in the apparent volume V of the agglomerate.

IV.1.1.3.4. Statistical analysis

The statistical significance of results was assessed using single factor analysis of variance (ANOVA). Multiple comparisons were performed by calculating the least significant difference using Microsoft Excel 2010, at a 5% significance level.

IV.1.1.3. Results

IV.1.1.3.1. Agglomeration of standard semolina

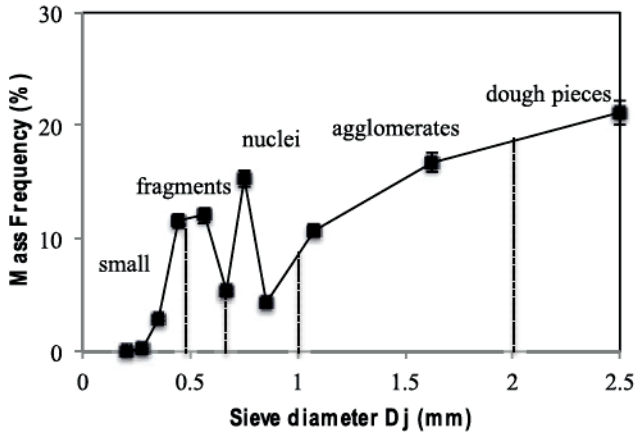


Figure IV.1.1.2. Distribution curve of the weight fractions as a function of the diameters of the wet agglomerates produced by the wet-agglomeration process of standard semolina

In the investigated experimental conditions (mean water content $\overline{w} = 0.44$), the wet-agglomeration process of the standard semolina gives the size distribution of wet agglomerates depicted in Figure IV.1.1.2. The wet agglomerates are characterized by a large dispersion in size, from 200 to 2500 µm. The shape of the curve of the particle size distribution is clearly not unimodal, with the formation of different structures at characteristics diameters.

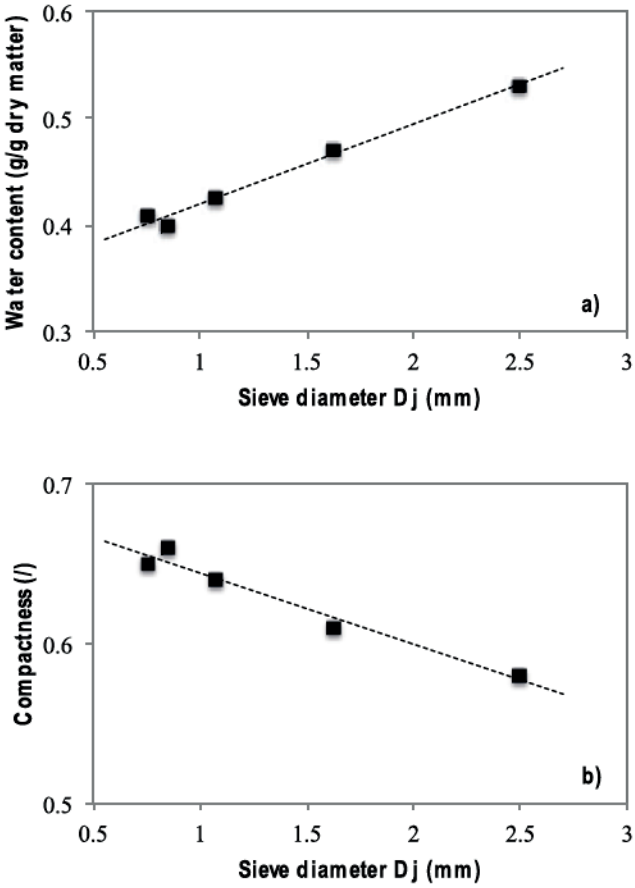


Figure IV.1.1.3. Distribution curves of the measured values of water content (a) and compactness (b), as a function of the diameter of the structures produced by the wet-agglomeration process of standard semolina

The water content and compactness of the wet structure (with diameter up to 710 µm) were measured for each class as a function to their diameter (Fig. IV.1.1.3). The water content of the wet structures was positively linearly correlated with their diameter (Fig. IV.1.1.3a). The compactness of the wet agglomerates was negatively linearly correlated with their diameter (Fig. IV.1.1.b). Previous works have already demonstrated that in almost comparable process conditions, the agglomeration growth of semolina to produce couscous grains leads to increasing water content and decreasing compactness, according to an increase in the median diameters of the structures (Barkouti et al., 2014; Bellocq et al., 2017; Rondet et al., 2010; Saad et al., 2011). In the present study at unique process water content, we observe that the structures obtained on the different sieves are characterized by the same trend.

Taking into consideration the specific shape of the particle distribution curve (Fig. IV.1.1.2) and the hydrotextural characteristics (Fig. IV.1.1.3) of the wet agglomerates of standard semolina, it makes possible to distinguish different types of structures according to their diameter (Benali et al., 2009; Iveson et al., 2001; Saad et al., 2011). The small structures (diameter < 0.5 mm) are the "native particles of semolina". Their water content is low and remains always smaller than the capillary condensation water content (0.21). The small structures can also contain slight amounts of fragments of the larger structures that could be generated by the mechanical erosion of larger structures due to the shear stresses during the wet-agglomeration. The structures called "fragments" (diameter close to 0.55 mm) are obtained by the breakage of the very large dough pieces due to the mechanical stress during process. The structures called "nuclei" (diameter between 0.63 and 0.9 mm) are structures obtained by primary association of the native semolina particles. The structures called "agglomerates" (diameter between 0.9 and 2 mm) are obtained by the association of fragments and/or nuclei. Their water contents are located between the values of capillary condensation (0.21) and the plastic limit (w_P = 0.59) of durum wheat semolina. The very large structures (with diameter > 2.5 mm) are called "the dough pieces". Their water content is higher than the plastic limit (w_P) of the semolina. The plastic limit is defined as the water content at which the sample maintains any applied deformation (Atterberg, 1911). The water content is then enough high to ensure their saturation (Rondet et al., 2013).

Table IV.1.1.2.

Impact of the characteristics of the native semolina on the weight fractions of the different structures produced during the wet agglomeration process

	Weight fractions of the different structures after agglomeration (%)				
	Small	Fragments	Nuclei	Agglomerates	Dough pieces
Standard semolina	22.7 (± 1.5) ^{e}	12.5 (± 2.0) ^{d}	10.9 (± 10.6) ^{abc}	27.2 (± 0.3) ^{b}	19.3 (± 2.2) ^{bcd}
Small semolina	0.3 (± 1.2) ^{a}	0.3 (± 2.6) ^{a}	36.5 (± 4.9) ^{e}	41.1 (± 3.6) ^{e}	7.6 (± 1.4) ^{a}
Low span semolina	3.7 (± 1.0) ^{b}	1.7 (± 0.8) ^{a}	41.0 (± 26.0) ^{cde}	27.6 (± 3.4) ^{bc}	17.0 (± 1.7) ^{bc}
Coarse semolina	13.9 (± 0.5) ^{d}	12.6 (± 6.5) ^{cde}	12.2 (± 1.0) ^{b}	27.9 (± 2.6) ^{bc}	22.1 (± 2.0) ^{d}
Very coarse semolina	28.0 (± 0.4) ^{f}	18.1 (± 0.0) ^{e}	7.4 (± 0.2) ^{a}	18.8 (± 0.3) ^{a}	20.6 (± 1.9) ^{cd}
Very low protein semolina	9.5 (± 0.1) ^{c}	7.3 (± 0.4) ^{c}	21.1 (± 1.1) ^{c}	34.8 (± 0.9) ^{d}	21.5 (± 1.1) ^{d}
Low protein semolina	13.2 (± 0.2) ^{d}	5.6 (± 0.3) ^{b}	22.1 (± 1.1) ^{c}	31.3 (± 0.8) ^{c}	22.2 (± 1.1) ^{d}
High protein semolina	1.3 (± 1.6) ^{ab}	1.1 (± 0.1) ^{a}	26.8 (± 1.3) ^{d}	35.4 (± 0.9) ^{d}	16.6 (± 0.8) ^{b}

The weight proportion of these different fractions is presented in Table IV.1.1.2. The amount of the agglomerates is relatively low (only 27.2%). Similar low values are classically observed during the wet-agglomeration stage and are typical of the low process efficiency of the manufacture of the industrial couscous grains (Abecassis et al., 2012).

IV.1.1.3.2. Influence of the diameter and the span of native particles

We investigated the impact of the size characteristics of the native particles, on the wet agglomeration mechanisms by testing the selected raw materials with different values of median diameter and/or span (Table IV.1.1.1). Experiments were conducted at similar mean water content. These selected semolina were characterized by almost constant values of protein contents (between 12.3 and 13.0%). The wet-agglomeration process generates different curves of size distribution of the wet agglomerates as

depicted in Figure IV.1.1.4. Whatever the characteristics of the raw materials, the curves of particle size distribution remain not unimodal. The unimodality reflects the formation of different types of wet structures, which are characterized by specific diameters (Saad et al., 2001).

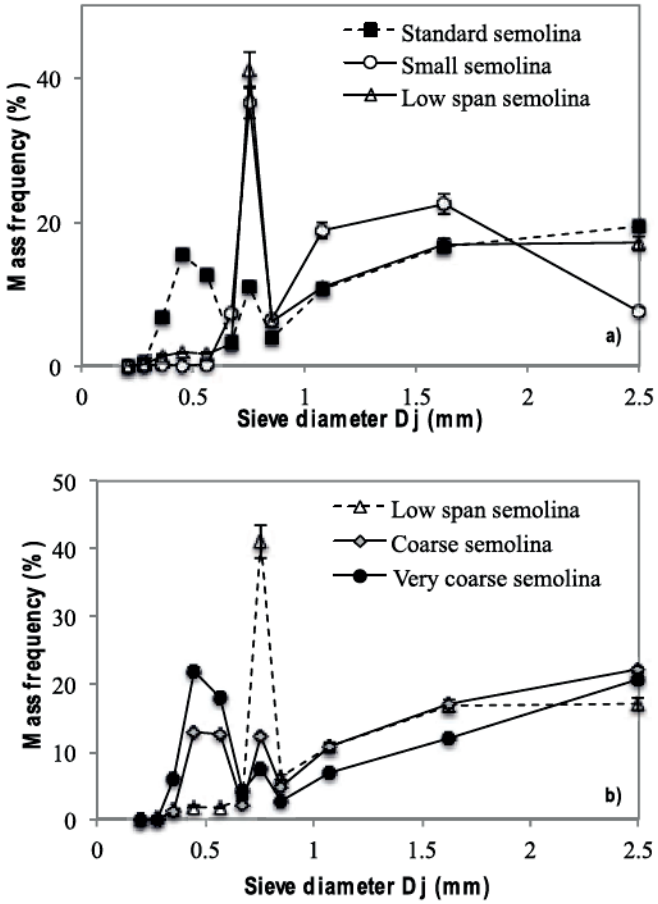


Figure IV.1.1.4. Impact of the median diameter at constant span (small semolina) and the span at constant median diameter (low span semolina) (a) and of the median diameter (at constant span) of the native semolina (b), on the distribution curves of the weight fractions as a function of the diameters of the wet agglomerates

The impacts of the median diameter or of the span on the weight fractions of the different structures (particles, fragments, nuclei, agglomerates, and dough pieces) are presented in Table IV.1.1.2. For each experiment, these different structures were also characterized by their water content and compactness as a function to their diameter (Fig. IV.1.1.5).

The impact of the span of the semolina (at similar median diameter) can be described by comparing the results obtained with the standard semolina and the low span semolina (Table IV.1.1.1). Using these two semolina with different span values (1.51 and 0.92) and almost similar median diameter (287 and 282 µm) generates similar wet agglomeration conditions according to the value of the diameter ratio ($d_{50semolina}$ / $d_{50droplet}$ = 1.2).

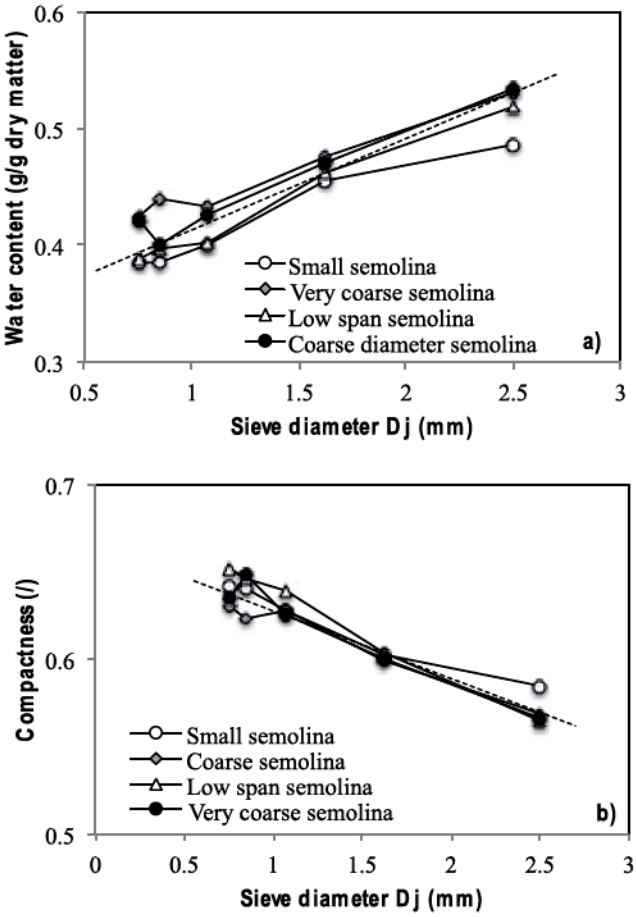


Figure IV.1.1.5. Impact of the median diameter or diameter span of the native semolina on the distribution curves of the measured values of water content (a) and compactness (b), as a function of the diameter of the wet agglomerates produced by the wet-agglomeration process of different semolina - the dotted line is the value of the standard semolina

The present results demonstrated a significant effect of the span of the semolina on the weight fractions of the different structures (Table IV.1.1.2). The distributions of the hydrotextural properties (water content and compactness) as a function of the size are in the same range (Fig. IV.1.1.5). Besides, the homogenization of the population of native particles around the median diameter (*i.e.* lower span) seems to lead to a strong decrease of the population of the "small particles" and of the "fragments" for the benefit of "nuclei" (Table IV.1.1.2). The high mass frequency observed for the population of nuclei suggests that the process of nucleation/growth is favoured. The conditions in which it takes place still lead to the formation of "dough pieces" and to lower contents of "agglomerates".

The impact of the median diameter of the semolina (at almost similar span) can be investigated at low values of span or at high values of span. The comparison of the small semolina (d_{50} = 129 µm) and the standard semolina (d_{50} = 287 µm) is done at similar high values of span (1.58 and 1.51) (Fig. IV.1.1.4a). The comparison of the results obtained with the low span semolina (d_{50} = 282 µm), the coarse semolina (d_{50} = 339 µm), and the very coarse semolina (d_{50} = 393 µm) is done at similar low values of span (0.92, 1.02, and 0.77) (Fig. IV.1.1.4b). Using these semolina generates very different

wet agglomeration conditions, according to values of the diameter ratio ($d_{50semolina}$ / $d_{50droplet}$) with values ranging from 0.5 to 1.6.

The decrease of the d_{50} of the semolina leads to an increase of the population of "agglomerates" and to a decrease of the population of "dough pieces". Experiments carried out using the semolina with the smallest median diameter (small semolina) induced the disappearance of the population of "fragments" (Table IV.1.1.2). This result suggests that the process of nucleation/growth seems exclusive. Indeed, when drops of water are larger than the native particles (ratio $d_{50semolina}$ / $d_{50droplet}$ = 0.5), the nucleation is essentially controlled by the size of the drops, which aggregate the particles. The nuclei generated by this way join themselves and give more compact agglomerates (Fig. IV.1.1.5), with a better yield, as far as the production of dough pieces is strongly limited. These two different modifications of the semolina population follow preferentially the nucleation/growth mechanism in comparison to the mechanisms of dough formation/fragmentation. The ratio $d_{50semolina}/d_{50droplet}$ plays an important role in the nucleation regime which is here a “drop-controlled” and corresponds to situation where the drop size controls preferentially the nucleation (Hapgood et al., 2003).

Experiments carried out using the semolina with the largest median diameter (low span semolina, coarse semolina, and very coarse semolina) were realized at high values of the ratio $d_{50semolina}/d_{50droplet}$ (up to 1). The increase of the diameter of semolina then generates a small increase in the weight fraction of the "dough pieces". The strongest trend comes from the increase of the weight fraction of the "fragment" in relation to the decrease of the weight fraction of the "nuclei". The increases of the weight fractions of "dough pieces" and "fragments", which have a pasty structure ("fragments" arising from the break of the "dough pieces"), induce lower compactness and higher water content than the other configurations (Fig. IV.1.1.5). These results indicate that the process leads to a higher heterogeneity in the agglomerated structures, due to the increase in the median diameters of the native particles.

IV.1.1.3.3. Influence of the protein content of semolina

We investigated the impact of the protein content (between 7.7 and 13.8%) of the native semolina on the wet agglomeration mechanisms by comparing three raw materials (Table IV.1.1.1). The experiments were conducted at similar mean water content ($\overline{w} = 0.44$) and at almost similar values of median diameter (227 to 262 µm) and span (1.25 to 1.13) of semolina.

The wet agglomeration process generates different curves of the size distribution of the wet agglomerates as depicted in Figure IV.1.1.6. Whatever the protein content, the wet agglomerates are characterized by a large diversity in size, and the curve of particle size distribution remain not unimodal.

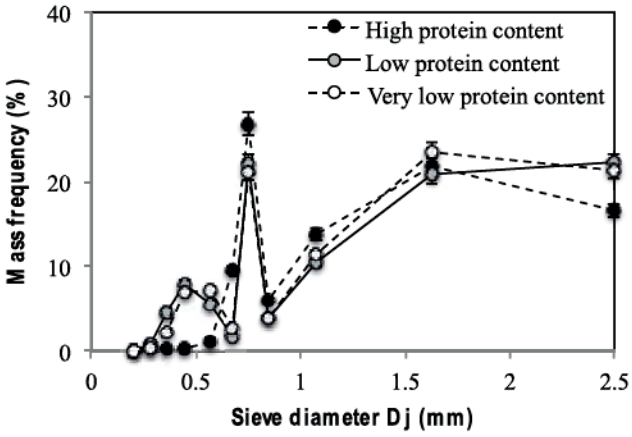


Figure IV.1.1.6. Impact of the protein content of the native semolina on the distribution curves of the weight fractions as a function of the diameters of the wet agglomerates

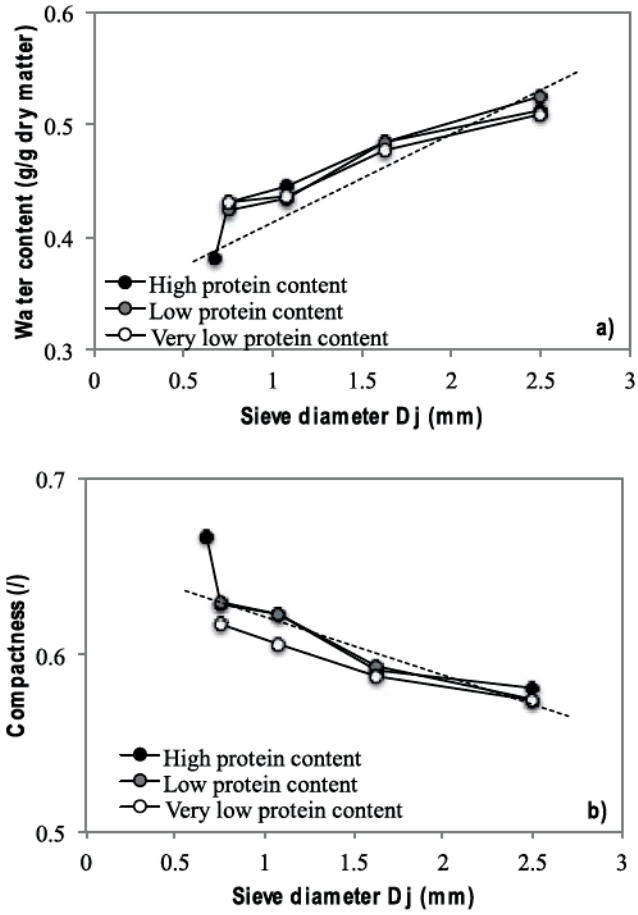


Figure IV.1.1.7. Impact of the protein content of the native semolina on the distribution curves of the measured values of water content (a) and compactness (b), as a function of the diameter of the wet agglomerates produced by the wet-agglomeration process of different semolina - the dotted line is the value of the standard semolina

The impacts of the protein content of the native semolina on the weight fractions of the different structures (small, fragments, nuclei, agglomerates, and dough pieces) are presented in Table IV.1.1.2. For each experiment, the different structures are also characterized by their water content and compactness as a function to their diameter (Figure IV.1.1.7).

We observe a slight difference in the particle size distribution curve obtained with the three native semolina, which have different protein content (Fig. IV.1.1.7). The weight fractions of each wet structures remain very close to each other using the very low, low and high protein contents semolina. The hydrotextural characteristics of the wet structures (Fig. IV.1.1.7) are also similar as a function of the values of protein content of the native semolina. We can note that the high protein semolina slightly could favour the population of "nuclei" and "agglomerates". "Fragments" are almost inexistent and the amount of “dough pieces” is slightly lower by using the high protein semolina. This result suggests that the process of fragmentation is restricted. These effects could be explained by the fact that proteins would promote semolina particles stickiness and limit the process of fragmentation. Nevertheless, changes in the protein content of semolina do not appear to have a significant influence on wet agglomeration mechanisms and the contribution of biochemical mechanisms does not therefore appear to be dominant.

IV.1.1.4. Discussion

IV.1.1.4.1. Mechanisms of the wet-agglomeration of semolina

By reporting on a hydrotextural diagram all the experimental values of water content and compactness for the different structures produced by the wet-agglomeration process (Fig. IV.1.1.8), we observe that structures on each sieve follow the saturation curve (Ruiz et al., 2011). For each structure, the saturation degree is equal to 1.

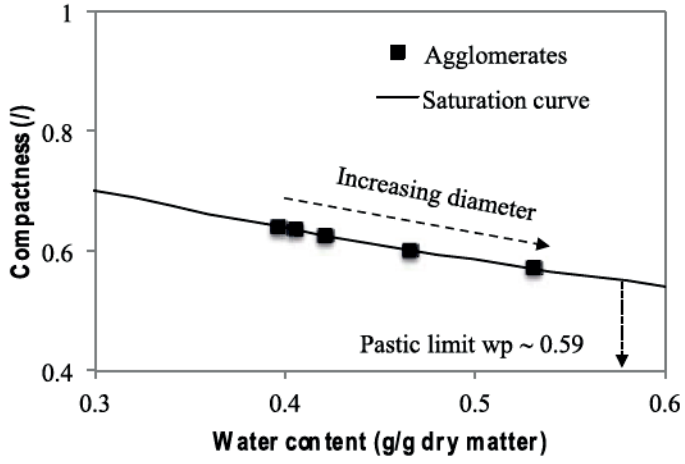


Figure IV.1.1.8. Hydrotextural diagram of the different structures collected on each sieve after the wet agglomeration of standard semolina

Figure IV.1.1.9 depicts the hydrotextural diagram of the wet-agglomerates obtained for the experiments using the different semolina. Results show that the different collected structures also follow the saturation curve, which means that the saturation degree is equal to 1. Changing the size characteristics of semolina or the protein content of semolina does not change the position of the experimental data on the saturation curve.

The present work demonstrates that the mechanisms leading to these agglomerated structures are different from these found in previous studies. As described by Saad et al., (2011), an agglomeration mechanism of nucleation/growing takes place, but mechanisms of dough formation/fragmentation are also observed (Iveson et al., 2001).

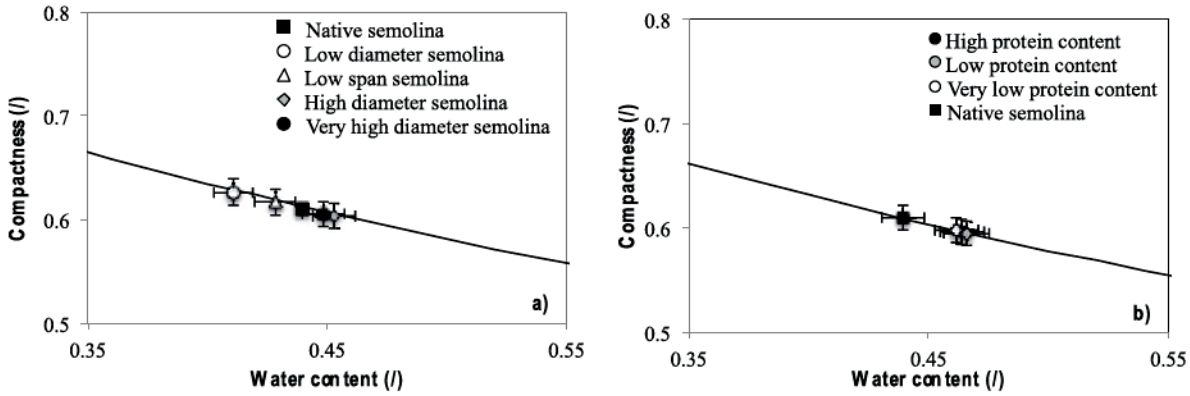


Figure IV.1.1.9. Hydrotextural diagram of the different structures collected on each sieve after the wet agglomeration of semolina with different size distributions (a) or with different protein contents (b)

Previous works in semolina agglomeration highlighted that the follow-up of both the textural and characteristic length (*i.e.* the diameter) of agglomerates allowed us identifying a fractal morphogenesis process (Barkouti et al., 2014; Rondet et al., 2010). The suggested model describing fractal growth of agglomerates can be written as: $\phi = \phi_N(\frac{d_{50}}{d_N^{50}})^{Df-3}$, where Df was the fractal dimension of the generated agglomerates; d_{50} was the median diameter of the agglomerate population, ϕ_N and d_{50N} were respectively the solid volume fraction and the median diameter of the nuclei (Rondet et al., 2010). Fractal structure of agglomerates elaborated by a wet agglomeration process had ever been highlighted (Pashminehazar et al., 2016; Turchiuli and Castillo-Castaneda, 2009). In the case of a fractal growth, this particular process involves nuclei association by homothetic scale up, where nuclei constitute the elementary structure of the generated agglomerates. Nuclei were identified after sieving and optical microscopy observations. Their median diameter and solid volume fraction were determined. This analyse is purposed to characterise the agglomerates.

Because small range of water contents has been explored, the present data are not completely related to growing mechanisms. The fractal dimension had been calculated: $Df \sim 3$. This value, which is an integer, is the fact of saturation. It indicates that agglomerate could be assimilated to geometrical structures in which nuclei do not play the role of a base unit.

The agglomeration mechanism of nucleation/growth, which takes place here, occurs in three major stages. *(i)* The nucleation stage is both depending on wetting/mixing parameters with physicochemical properties of fluid and surface particle (Ax et al., 2008; Chouk et al., 2009; Iveson et al., 2001). *(ii)* The growing stage could be described as the formation of large grains by the association of several nuclei following a fractal morphogenesis (Rondet et al., 2010; Saad et al., 2011). *(iii)* The "pasting" stage occurs by adding water and leads to the transformation of the agglomerates in dough pieces through percolation (Rondet et al., 2013; Ruiz et al., 2011). The transformation of agglomerates in dough structures results in a considerable increase in grain size and biochemical changes with the formation of partial dough structures involving the proteins inside the grains. The percolation mechanisms could be described as the formation of very large structures by hydration and adhesion. It can be associated with a mechanical deformation of large agglomerates to generate some dough pieces, when the water content is close to the plastic limit. The compactness of the dough pieces is smaller than that of agglomerates and nuclei (Fig. IV.1.1.8). These structures could exhibit stronger strain, and when they are maintained in condition of agitation within a bed of more compact particles, is going to favour their disintegration. This situation takes place generally in high shear mixer conditions, where the shear stress field does not allow the stability of dough (Iveson et al., 2001). The breakage mechanisms generate small-sized fragments, which are strengthened as observed on the size distribution curve (Fig. IV.1.1.2). Besides their slightly lower size, the difference with nuclei comes because having been very hydrated, they have a dough texture, whereas nuclei is made by associations of semolina particles. Fragments have lower water content and higher compactness than dough pieces, due to the strengthening of their structure during the mechanical agitation. As explained by Wade et al. (2015) and Rondet et al. (2016), the breakage mechanism of dough pieces is able to generate granules with high intragranular compactness, due to the complete filling of intra-particle pores by the binder liquid, but the addition of further powders can reduce the liquid saturation of the granules. So generated, fragments can interact with nuclei and contribute to build agglomerates with the same growing mechanism as ever described. This paste/fragmentation mechanism could be compared to a nucleation by downsizing, by difference with the "classic" nucleation, which is a bottom-up mechanism (Iveson et al., 2001).

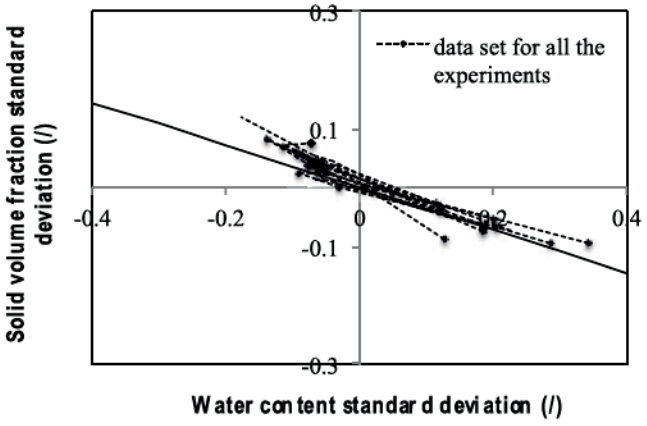


Figure IV.1.1.10. Variations of compactness standard deviation of agglomerates according to water content standard deviation for all trials

We can notice that this phenomenon could be totally developed in low shear mixer to generate agglomerates (Rondet et al., 2016). In the case of this study, the spray process conditions associated to mixing process conditions generate a very significant population of dough pieces (Fig. IV.1.1.2). It occurs here a concomitant paste/fragmentation mechanism, which generates fragments, associated to nuclei in the growing process.

We can notice that this phenomenon could be totally developed in low shear mixer to generate agglomerates (Rondet et al., 2016). In the case of this study, the spray process conditions associated to mixing process conditions generate a very significant population of dough pieces (Fig. IV.1.1.2). It occurs here a concomitant paste/fragmentation mechanism, which generates fragments, associated to nuclei in the growing process.

As mentioned in Barkouti et al. (2014), to identify the major mechanisms contributing to the structure layout during the growing stage, it seems interesting to combine the fluctuations of water content and compactness standard deviations. Figure IV.1.1.10 shows that for all the structures considered fluctuations of compactness and water content are correlated, whatever the semolina used as raw materials. Indeed, if the different types of structures (discriminated by size, water content, and compactness) were interacting by binding, the fluctuations of hydrotextural values would be independent. Nuclei and fragments contribute to the primary step of growing. Then, the correlation results can be interpreted as the fact that the agglomerates grow thanks to the association of structures that belong to the same category in terms of hydro-textural characteristics. As hydrotextural properties are related to structural size, the association law is based on an association by both size-class. However, as ever mentioned, the structures are poorly fractal.

IV.1.1.4.2. Specification of durum wheat semolina for wet agglomeration

The present results allow proposing some specifications for the durum semolina used for the production of the couscous grains by the wet agglomeration process. The protein content does not appear to be a significant factor affecting the wet agglomeration mechanisms. We have only observed slight changes in the wet agglomeration process when using semolina between 7.7% and 13.8% protein content. It was thus not possible to define a specification of the protein content to control the wet agglomeration mechanisms. This work will have to be completed by investigating the impact of the protein content of semolina on the final quality of the couscous grains.

On the other hand, the size characteristics of the native semolina significantly affect the wet agglomeration mechanisms. Changing the median diameter or the span of the native semolina generates large impact of the agglomeration yields. The higher amount of the fraction of agglomerates with diameter ranging between 1 and 2 mm was obtained when using semolina with low median diameter and low span. Additional work will be conducted to evaluate the impact on the final quality of the couscous grains.

IV.1.1.5. Conclusion

This work deals with the study of the impact of particle-size distribution and protein content characteristics of semolina on the wet agglomeration process. The results demonstrate that the span and the median diameter of the native powder have a significant influence. As the median diameter increases, the ratio of the dough pieces and fragments in the bed increases and the ratio of nuclei and agglomerates decreases. The impact of the protein content is lower. The different structures generated by the agglomeration process result from two major modes of agglomeration: nucleation/growing and dough formation/fragmentation. We show that structures as nuclei or fragments could be individually identify because they differ essentially from their hydrotextural properties. An increase in the amount of dough pieces leads to an increase in the fragments and an increase of the polydispersity of the structures. The configuration leading to the higher amount of the agglomerates population corresponds to the low diameter semolina. The relative size of native particles is the major parameter to modulate the formation of the fragments. In the same way, semolina with higher protein content could strengthen the structure by favouring the stickiness between the semolina particles. The process of fragmentation is limited and the ratio of fragment in the bed decreases.

Acknowledgements - *The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR-13-ALID-0002-01) for its financial support through the program "Dur Dur": Innovations agronomiques, techniques et organisationnelles au service de la DURabilité de la filière blé DUR.*

IV.1.2. Low shears wet granulations processes: application to the structuration of the durum wheat semolina for the manufacture of couscous grains.

IV.1.2.1. Introduction

The process of granulation is the assembly of fine powders together to form larger structures, such as granules. The wet granulation operation consists in mixing the native powder and a liquid binder, in order to create liquid bridges between the native particles and associate the sticky particles under shear stress (Iveson, 2001). These actions generate and strengthen the interactions between the particles and promote the growth of the granules (Saleh and Guigon, 2009c). The wet granulation is used in a wide range of industries, including mineral processing, agricultural products, detergents, pharmaceuticals, foodstuffs and chemicals (Reynolds et al., 2005).

Different technologies have been used for wet agglomeration processes. They can be classified in two categories according to the type of the mixing energy. The pneumatic mixing granulators (*e.g.* steam jet, spray drying, or fluid bed) use air flow to agitate the particles under low shear conditions. The mixing granulators (*e.g.* mechanical mixer, pan, disk or drum granulators) use mechanical mixers to agitate the particles (Cuq et al., 2013). These technologies mainly differentiate by their main mechanisms of particle growth, the intensity of shear stresses, the contribution of compaction forces and the processing times (Jacob, 2007).

Many scientific works have been devoted on the identification and understanding of the growth mechanisms of reactive powders during the agglomeration process under different hydro-mechanical conditions (Walker et al., 2006). A high degree of complexity has been described at the particles scale and at the reactor scale, due to the variability of the raw materials and the differences between the equipments. The complex nature of the process does not allow having fully predictive models. It remains difficult to determine representative coefficient to evaluate eco-efficient, and energy consuming yields.

In the food domain, the couscous grains are made by successive stages of wet agglomeration, rolling, cooking, and drying. The wet agglomeration stage of the durum wheat semolina is usually granulated using mechanical low shear mixers. Recent studies have investigated the wet agglomeration of wheat semolina and the impact of agglomeration conditions on the characteristics of the resulting grains (Barkouti et al., 2014; Hafsa et al., 2015; Hébrard, 2002; Oulahna et al., 2012; Saad et al., 2011). The wet granulation stage is found to be the critical step that determines the production yield, the final size and shape of the couscous grains. Knowledge on wet agglomeration of the couscous grains still remains partial and description of the physicochemical mechanisms, which are involved during the agglomeration, represents a real scientific stake (Abecassis et al., 2012).

The present work examines the effect of process conditions during the wet agglomeration stage using low shear mixers. The mechanisms of agglomeration were considered from the measurements of the changes of the size, water content and compactness of the wet agglomerates during processing. Energy

consumption by the wet agglomeration process is also determined at each stage of the experimentation (pre-mixing, water addition, final mixing). Mean values of experimental data and their fluctuations are both taken into account to describe the impact of the process on the agglomeration mechanisms. The present work will propose the basis of a unique description of the agglomeration mechanisms, whatever the mixer type under low shear conditions.

IV.1.2.2. Material and methods

IV.1.2.2.1. Raw materials

Durum wheat semolina of industrial quality (Panzani group, France) was used as raw material for the agglomeration experiments. Semolina was stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out. Semolina was characterized using standardized methods. The water content (w = 14.8 ± 0.8 g of water/100 g dry semolina) of semolina was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 130°C for 2 h. The characteristics values (d_{10} = 91 ± 3 µm; d_{50} = 287 ± 2 µm; d_{90} = 525 ± 3 µm) of particle diameter of semolina were measured by a laser granulometer (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The diameter span $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$ was 1.51. The semolina apparent density (ρ_s= 1.372 ± 0.01 g.cm^{-3}) was measured by a hydrostatic balance (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany). The semolina true density (ρ_s^*= 1.415 ± 0.003 g.cm^{-3}) was measured by nitrogen pycnometry (ULTRAPYC 1200e, Quatachrom) after oven drying at 105°C for 24 h. The compactness ($\phi = \frac{\rho_s}{(1+w).\rho_s^*}$) was 0.845. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content (12.4 ± 0.04 g protein/100 g dry matter) was calculated ac- cording to TN - 5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970).

IV.1.2.2.2. Mechanical mixers and spraying system

The process of wet agglomeration of durum wheat semolina was carried out using three different mechanical mixers (vertical mixer, horizontal mixer, and planetary mixer). The selected mixers allow investigating the contribution of bowl and blades geometries and of the shearing conditions (Fig. IV.1.2.1).

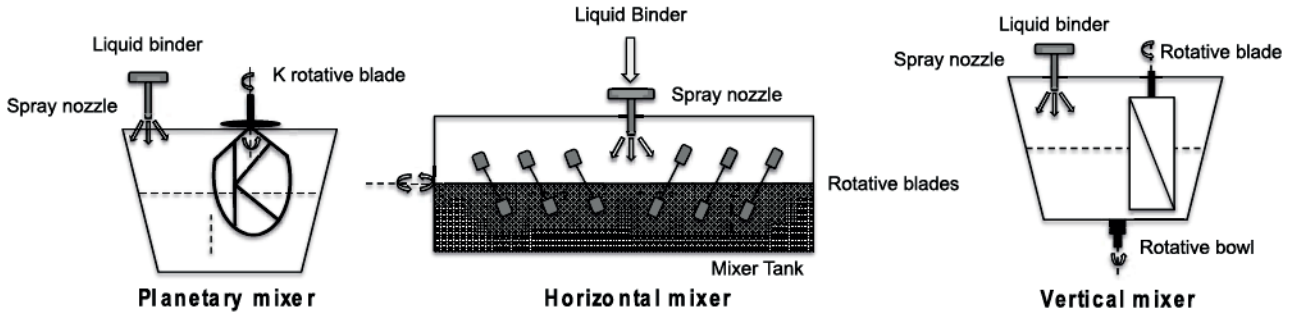


Figure IV.1.2.1. Sketch of the three low shear mechanical mixers

The vertical low shear mixer (SPI10 Labo V03, VMI, France) was equipped with a 10 L rotating bowl and one spiral blade. Two different motors generate the rotation of both blade and bowl. Different

rotation speeds of the vertical blade (80 or 200 rpm) were tested. The horizontal low shear mixer (Afrem, France) was equipped with a mixing tank (75 cm length, 20 cm width, and 25 cm height), with a capacity of 30 L and a horizontal shaft axis, positioned at 10 cm from the bottom of the tank, with 22 metal rotating paddle blades (6 cm length, 3 cm width, 12 cm gap between 2 blades). Different rotation speeds of the horizontal blade (114 or 228 rpm) were tested. The planetary mixer (Kenwood Major 1200) is equipped with 5 L static bowl and a K blade that rotates around a vertical axis in an adjustable speed range. Different rotation speeds of the K blade (70 or 180 rpm) were tested.

The water addition during the agglomeration processes is done with a single-fluid atomizing system (Spraying Systems Co., France, ref. TPU 6501) to produce a flat spray of droplets. The flat spray nozzle is either connected to a regular water supply network with a stable pressure or to a peristaltic pump (520S/REM, Watson Marlow, France) in order to better control the liquid flow rate. The water addition flow rate is between 1.5 to 2.10^{-6} $m^3.s^{-1}$.

IV.1.2.2.3. Granulation experiments

Whatever the mixer type (vertical, horizontal, or planetary mixer), the experiments were realized in similar conditions by adjusting the mass of raw materials, semolina and water (3, 5, or 2 kg, respectively) to reach similar apparent filling level of the mixer tank (*i.e.* 50% of the total volume of the tank) by the final wet agglomerates.

Wet agglomeration experiments were divided into three stages. The semolina was first introduced inside the mixer tank. The first step is the pre-mixing. Semolina was mixed for 2 min without liquid binder addition in order to homogenize the powder and equilibrate the temperature (between 20 to 25°C). The second step is the water addition. Water was added by spraying directly on the semolina under mixing. The amounts of added water were determined in order to reach different hydration levels (between 0.33 and 0.49 g water / g dry matter). The time of spraying of water was adjusted (between 3 and 10 min) to reach the desired final water content, depending on the equipment type and the final water content. After the spraying stage, the third step is the final mixing step. The wet masses were mixed during different times (0, 5, or 15 min). Fifty-two experiments were conducted varying mechanical mixers, impeller speeds, water levels, and mixing times.

The measurement of the electric consumption is continuously carried out during granulation experiments via a wattmeter (Wattcom®). The power curve was characterized by the values of the electric power (W) and the duration (sec) of the experiment. Experiments were conducted in triplicate. Energy consumption (kJ) was calculated for each stage of the agglomeration (pre-mixing, water addition and post-mixing) by using the surface under the power curves during the duration of the stage. The specific energy consumption (kJ/kg) was then calculated using the energy consumption divided by the mass in the mixer at each time of the process.

IV.1.2.2.4. Characterisation of agglomerates

Size distribution - Immediately after the granulation process, a sample of 250 g of the wet agglomerates was collected and sieved to separate the different structures according to their size. The

sample was mildly sieved for 2 min over a column of 11 metallic sieves of decreasing mesh (2, 1.25, 0.9, 0.8, 0.71, 0.63, 0.5, 0.4, 0.315, 0.25 and 0.160 mm). The size distribution was obtained by weighing the mass of the products on each sieve. The weight distribution according to size criteria was expressed as the percent of total weight. Measurements were conducted in duplicate. After sieving, about 2 g of sample were collected on the sieves 2, 1.25, 0.9, 0.8, and 0.71 mm and used to measure their water content (w) and compactness (ϕ).

Water content - The water content of agglomerates was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h. The water content w of agglomerates (g/g dry matter) was calculated by using: $w = m_w/m_s$, where m_w is the mass of water (g) and m_s is the mass of dry matter (g) in the sample. Mean values were determined from triplicate.

Compactness - Samples of agglomerates (about 1 g) were used to determine the compactness, i.e. the solid volume fraction: $\phi = \rho_s/\rho_s^*$. The solid apparent density ρs of the wet agglomerates was calculated from the solid apparent density ρ (measured using a hydrostatic balance with paraffin oil): $\rho_s = \rho/(1 + w)$. The solid true density ρs^* was measured by using a nitrogen pycnometer (Ultrapyc 1200e, Quatachrom) after drying the agglomerates in an oven at 105°C for 24 h. Mean values were determined from 2 measurements.

Data dispersion - For each experimental condition, the wet agglomerates were characterized by mean values of water content ($\bar{w}$) and compactness ($\bar{\phi}$). The wet agglomerates were separated using sieves in different fractions according to size. As proposed by Barkouti et al. (2014), it is possible to calculate for the remainder on each sieve, the relative deviations of water content and compactness: $x_j = (w_j - \bar{w})/\bar{w}$ and $y_j = (\phi_j - \bar{\phi})/\bar{\phi}$, where x_j and y_j were the relative deviation of water content or compactness for agglomerates from the sieve j. For each experimental granulation experiment, these relative deviations indicate the fluctuations of water content and compactness around their mean values.

IV.1.2.3. Results

IV.1.2.3.1. Wet agglomeration mechanisms in mechanical low shear mixer

As reference, the wet agglomeration mechanisms was first described for the vertical mixer for 15 min mixing time, at 80 rpm mixer rotation speed and water content ($\bar{w}$) close to 0.45 g of water / g of dry matter. The agglomeration process was analysed by the measured values of the specific mechanical energy consumptions (Table IV.1.2.1). Under these conditions, we found that the total mechanical energy consumption during the agglomeration process (76.3 kJ/kg) was mainly due to the final stage of mixing (48.3 kJ/k) and to the water addition stage (21.2 kJ/kg). As expected, the contribution of the initial stage of mixing of the native semolina before the water addition gave lower values of mechanical energy consumption (6.8 kJ/kg). The value of the total mechanical energy consumption was in the

same magnitude of order than the values previously obtained in similar conditions during the wet agglomeration process of durum wheat semolina at the pilot scale (Rondet et al., 2012).

The weight distributions of the different agglomerated structures and the distributions of water contents and compactness as a function of their diameters were measured (Fig. IV.1.2.2 and Table IV.1.2.2-3). Even if the particle size distribution curves were not unimodal, the apparent median diameters (d_{50}) and apparent spans ($(d_{90}-d_{10})/d_{50}$) of the size distributions were calculated as global apparent descriptors (Table IV.1.2.2).

The shape of the curve of the size distribution described the heterogeneity of the structures generated by the agglomeration process (Fig. IV.1.2.2a). Water contents and compactness of the wet structures (with diameter up to 400 µm) were measured for each class as a function to their diameter (Fig. IV.1.2.2b). Water content of the wet structures was positively correlated with their diameter. Compactness of the wet agglomerates was negatively correlated with their diameter (Fig. IV.1.2.2c). Previous works have already demonstrated that the wet agglomeration process of durum wheat semolina produced different structures that are characterized by a positive dependence between diameter and water content and by a negative dependence between diameter and compactness (Barkouti et al., 2014; Bellocq et al., 2017; Rondet et al., 2010; Saad et al., 2011).

The specific values of diameter, water content and compactness of the different structures produced by the agglomeration process have already been described according to the formation of four different types of structures (Rondet et al., 2013). *(i)* The small particles and fragments are characterized by low diameters (between 0.32 and 0.63 mm), low water contents (0.42) and high values of compactness (0.62). The measured value of water content and compactness are the mean values between the characteristics of the small particles and the fragments. The small particles are the residual native particles of semolina that have not been involved in the agglomeration mechanisms. Their water content is close to the water content of the semolina particles, lower than the water content of the capillary condensation (0.21). The fragments are mainly produced by fragmentation mechanisms of the dough pieces, due to mechanical shearing during the mechanical mixing. There are more hydrated and less compact than the semolina particles and their water content is higher than the capillary condensation (Bellocq et al., 2017). *(ii)* The nuclei are characterized by diameter values between 0.63 to 1.0 mm, water content equal to 0.44 g/g dry matter and compactness of 0.61. Nuclei come from the primary association of the native particles of semolina. *(iii)* The agglomerates are characterized by diameter values between 1.0 to 2.0 mm, water content of 0.46 g/g dry matter, and compactness of 0.60. The agglomerates are obtained by the association of the nuclei or by the breakage of large fragments of dough pieces. *(iv)* The dough pieces are characterized by high values of diameter (>2.0 mm), high water content and low compactness. Previous works have shown that their water content is higher than the plastic limit of the semolina (w_P = 0.59) (Saad et al., 2011, Barkouti et al., 2014, Bellocq et al., 2017). Their internal structure is made as pieces of continuous dough. It is not possible to identify the native semolina particles in the dough pieces.

Table IV.1.2.1.

Mechanical energy consumptions during each stage of the wet agglomeration process at different process water contents using the different types of mechanical mixers

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Pre-mixing stage		Water addition stage		Final mixing stage	
			Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)	Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)	Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)
Vertical	80	0.33	2	6.3 (± 0.3)	4.4	12.6 (± 0.6)	15	38.5 (± 1.9)
		0.38	2	5.9 (± 0.3)	5.2	14.6 (± 0.7)	15	42.2 (± 2.1)
		0.45	2	6.8 (± 0.3)	6.8	21.2 (± 1.1)	15	48.3 (± 2.4)
Horizontal	114	0.39	2	3.5 (± 0.2)	7.5	12.2 (± 0.6)	15	20.1 (± 1.0)
		0.42	2	3.9 (± 0.2)	8.0	14.7 (± 0.7)	15	23.6 (± 1.2)
		0.49	2	3.6 (± 0.2)	9.9	16.1 (± 0.8)	15	25.2 (± 1.3)
Planetary	70	0.38	2	4.6 (± 0.2)	3.3	7.0 (± 0.3)	15	35.7 (± 1.8)
		0.40	2	4.0 (± 0.2)	3.5	7.1 (± 04)	15	34.2 (± 1.7)
		0.44	2	4.4 (± 0.2)	4.4	7.5 (± 0.4)	15	38.3 (± 1.9)

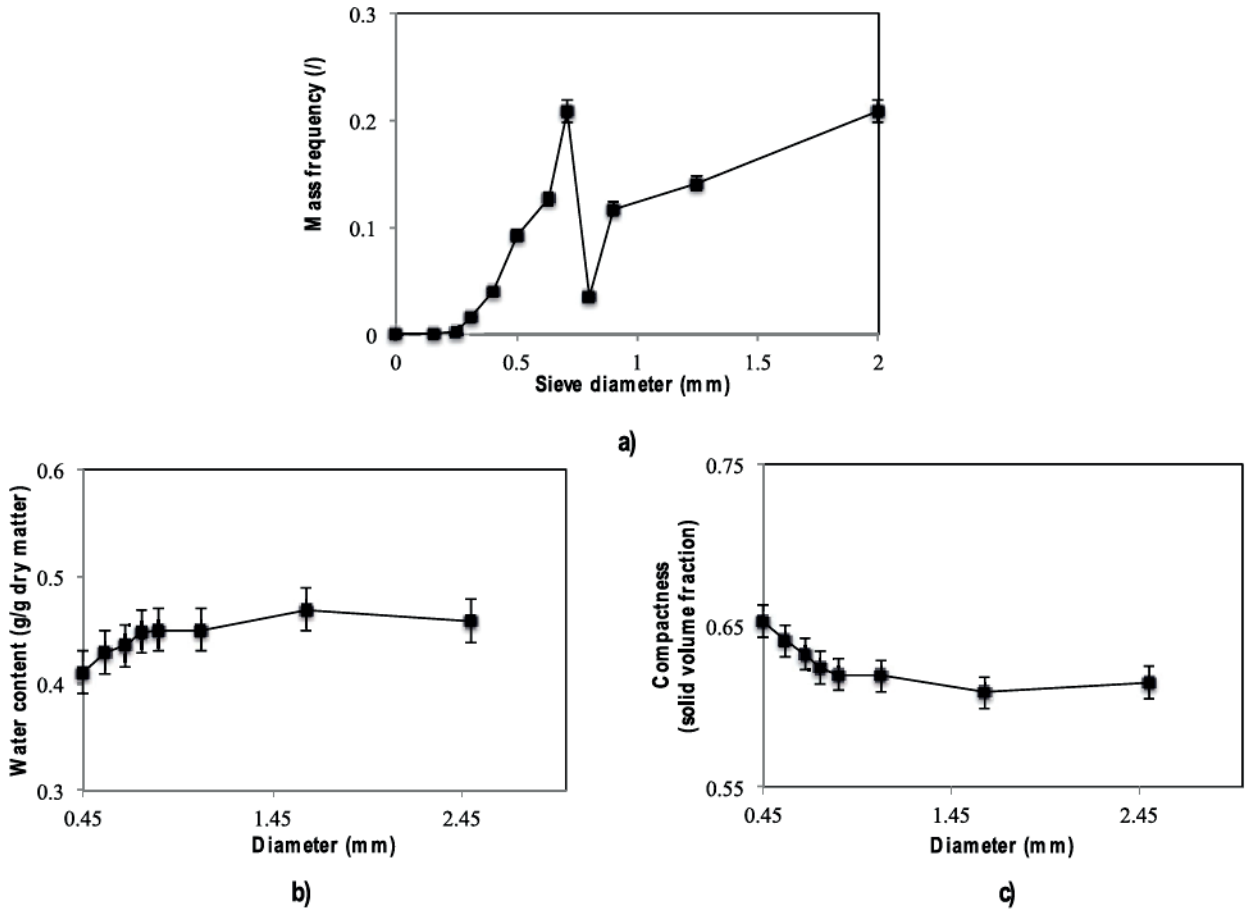


Figure IV.1.2.2. Distribution curves of the diameters of the wet agglomerates (a); changes in water content (b) and compactness (c) as a function of the diameter of the wet agglomerates - experiences processed in the vertical mixer, 80 rpm and water content 0.45 g/g dry matter

Table IV.1.2.2.

Median diameter (d_{50}) and span of the particle size distributions after the wet agglomeration process, at different water contents and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Mixing time (min)	d_{50} (mm)	Diameter span
Vertical	80	0.33	15	0.46 (± 0.01)	3.61 (± 0.01)
		0.38	15	0.59 (± 0.01)	1.37 (± 0.01)
		0.45	15	0.74 (± 0.01)	1.66 (± 0.01)
Horizontal	114	0.39	15	0.80 (± 0.01)	1.65 (± 0.01)
		0.42	15	0.80 (± 0.01)	1.48 (± 0.01)
		0.49	15	1.13 (± 0.01)	1.13 (± 0.01)
Planetary	70	0.38	15	0.49 (± 0.01)	2.33 (± 0.01)
		0.40	15	0.67 (± 0.01)	1.37 (± 0.01)
		0.44	15	0.65 (± 0.01)	1.54 (± 0.01)

Table IV.1.2.3.

Weight fractions of the different structures produced after the wet agglomeration process, at different water contents and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Mixing time (min)	Weight fractions of the different structures after agglomeration			
				Small particles & Fragments	Nuclei	Agglomerates	Dough pieces
Vertical	80	0.33	15	0.595 (± 0.02)	0.090 (± 0.01)	0.102 (± 0.01)	0.125 (± 0.01)
		0.38	15	0.412 (± 0.01)	0.216 (± 0.01)	0.281 (± 0.01)	0.089 (± 0.01)
		0.45	15	0.153 (± 0.01)	0.371 (± 0.02)	0.259 (± 0.01)	0.209 (± 0.01)
Horizontal	114	0.39	15	0.412 (± 0.01)	0.287 (± 0.01)	0.227 (± 0.01)	0.260 (± 0.01)
		0.42	15	0.123 (± 0.01)	0.382 (± 0.02)	0.288 (± 0.01)	0.197 (± 0.01)
		0.49	15	0.087 (± 0.01)	0.121 (± 0.01)	0.374 (± 0.01)	0.411 (± 0.01)
Planetary	70	0.38	15	0.524 (± 0.02)	0.125 (± 0.01)	0.213 (± 0.01)	0.131 (± 0.01)
		0.40	15	0.288 (± 0.01)	0.364 (± 0.01)	0.238 (± 0.01)	0.102 (± 0.01)
		0.44	15	0.433 (± 0.01)	0.196 (± 0.01)	0.261 (± 0.01)	0.106 (± 0.01)

IV.1.2.3.2. Impact of the water addition level

The impact of the water addition level during the agglomeration process was studied at three different levels, using the three different types of mixers. The range of the investigated water content was 0.33-0.45 g/g with the vertical mixer, 0.39-0.49 g/g with the horizontal mixer and 0.38-0.44 g/g with the planetary mixer.

As expected, no change of the specific energy consumption was observed during the pre-mixing phase (Table IV.1.2.1). Increasing the process water content induced significant increase of the specific energy consumption during the water addition phase and during the final mixing stage, whatever the mixer type. As example, when using the vertical mixer, an increase in the water content from 0.33 to 0.45 led to an increase of the energy consumption during the water addition stage from 12.6 to 21.2 kJ/kg and during the final mixing stage from 38.5 to 48.3 kJ/kg. The increase in the energy consumption during the water addition phase can be explained by the longer duration of this stage due to longer time required to spray the water at constant water feed rate. Concerning the increase in the energy consumption during the final mixing stage, Rondet et al. (2012) also observed an increase in the electric input power consumption during the agglomeration phase of durum wheat semolina, when the mass of added water increases. They proposed a non-linear relationship to describe the effect of

water content on the increase in electric input power consumption. They suggested that a significant part of the electrical energy consumed by the engine is consumed through the cohesion behaviour of the wet agglomerated powder.

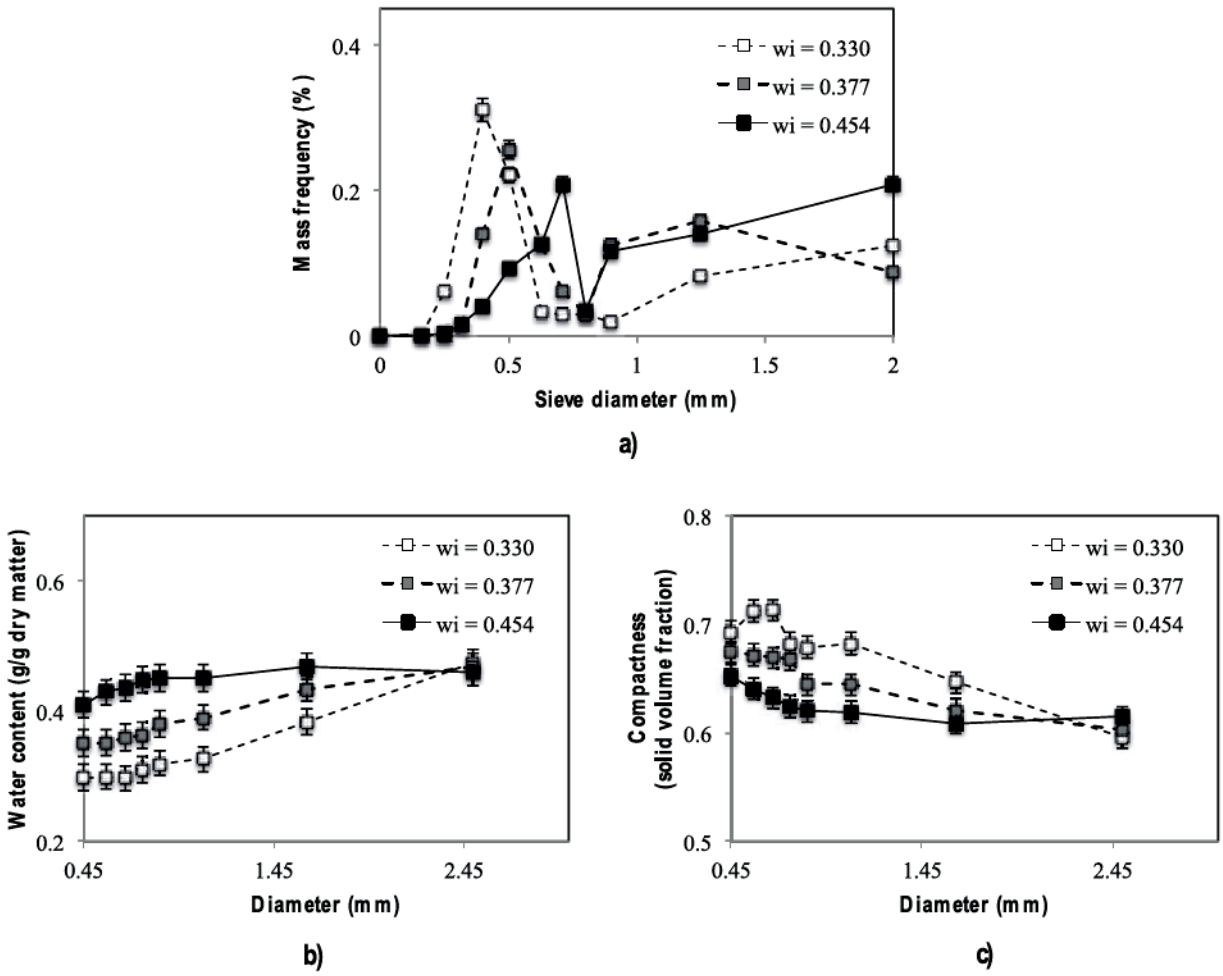


Figure IV.1.2.3. Distribution curves of the diameters of the wet agglomerates (a); changes in water content (b) and compactness (c) as a function of the diameter of the wet agglomerates - experiences processed in the vertical mixer, 80 rpm at different water content

As similar experimental curves were obtained when using the three different types of mixers (data not shown), only the detailed results concerning the use of the vertical mixer, at 80 rpm rotation speed for 15 min mixing times are presented (Fig. IV.1.2.3). Increasing the water content did not significantly change the shape of the curve of the size distribution (Fig. IV.1.2.3a). Nevertheless, increasing the process water content modified the proportion of the different fractions, with lower amounts of small particles & fragments and higher amounts of nuclei, agglomerates, and dough pieces (Table IV.1.2.3). As a consequence, the apparent median diameter (d_{50}) increased with an increase in the water content and the value of the span decreased at higher water content (Table IV.1.2.2). Previous works already showed that an increase in the process water content (*i.e.* the binder) induced expect increases in the size of the agglomerated structures when using mechanical mixers (Saad et al., 2011). An increase in the process water content also led to increase the water content and decrease the compactness of the

different agglomerated structures (Fig. IV.1.2.3bc). Whatever the water content, similar positive relationships were observed between the diameter and the water content (Fig. IV.1.2.3b) and negative relationships between the diameter and the compactness (Fig IV.1.2.3c).

IV.1.2.3.3. Impact of mixing time

The impact of the mixing time was studied by considering three different mixing times (0, 5, and 15 min) using the three different types of mixers. Increasing the duration of the final mixing stage induced evident linear increases of the total specific energy consumption input (Table IV.1.2.4), because the mixer was used for longer times. For example with the vertical mixer, the total specific energy consumption input increased from 30.0 to 76.3 kJ/kg (mixing time from 0 to 15 min).

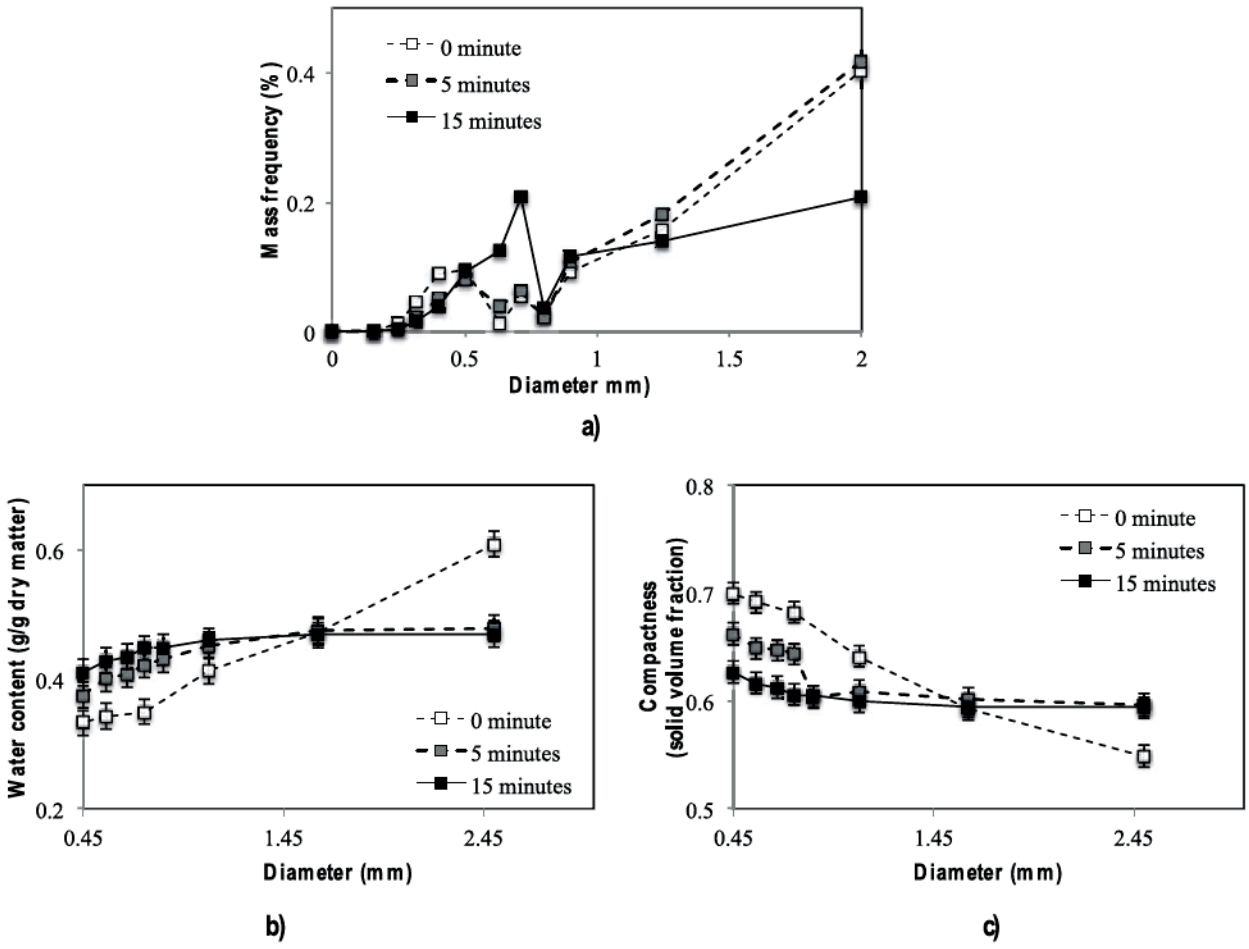


Figure IV.1.2.4. Distribution curves of the diameters of the wet agglomerates (a); changes in water content (b) and compactness (c) as a function of the diameter of the wet agglomerates - experiences processed in the vertical mixer, 80 rpm, w=0.45 g/g dry matter at different mixing times

As similar experimental curves were obtained using the three different types of mixers (data not shown), only the results concerning the use of the vertical mixer at 80 rpm mixer rotation speed for a process water content of 0.45 g/g dry matter are presented (Fig. IV.1.2.4). When using the vertical mixer or the horizontal mixer, increasing the final mixing time induced an increase of the weight

proportions of nuclei and agglomerates. In addition, it strongly decreased the weight proportion of dough pieces (Fig. IV.1.2.4a and Table IV.1.2.6). On the other hand, when using the planetary mixer, increasing the final mixing time induced a large decrease of the weight proportions of the dough pieces and nuclei and a high increase of the small particles & fragments. There was no change in the weight proportion of the agglomerates, whatever the mixer type (Table IV.1.2.6). It seemed that the fragmentation of the dough pieces was quite higher when using the planetary mixer, in comparison to the vertical and horizontal mixers. The shear stresses generated by the planetary mixer were supposed to be slightly significant. Whatever the mixer type, the median diameter (d_{50}) decreased with an increase in the mixing time. Increasing the mixing time induced a slight increase in the values of the diameter span (Table IV.1.2.5), more particularly for 5 min of final mixing. Increasing the time of the final mixing thus induced higher dispersion of the diameter.

We can see on the Figure IV.1.2.3b that dough pieces were more hydrated and small particles and fragments, plus nuclei were less hydrated immediately after the water addition phase (*i.e.* at final mixing time of 0 min). Increasing the mixing time slightly increased the water content of the small particles & fragments and nuclei and it slightly decreased the water content of the dough pieces. There was no change in the water content of the median fraction of agglomerates. Concerning the compactness, an increase in the mixing time led to a decrease of the compactness of the small particles & fragments and nuclei. On the contrary, it led to an increase of the compactness of the dough pieces. There was no change in the compactness of the agglomerates (Fig. IV.1.2.3b-c).

The final mixing stage thus contributes to improve the distribution of the water in the bed of powder. It favours the fragmentation of the dough pieces and the formation of the small fragments. These two mechanisms are "modulated" as a function to the mixer, which can induce more or less shear stresses in the bed of powder. The lower dispersion of the distributions of water content and compactness observed for the long mixing times (Fig. IV.1.2.3b-c), demonstrates the improved distributions of water and the increase of the mechanical impacts between the structures in these three mixers.

Table IV.1.2.4.

Mechanical energy consumptions during each stage of the wet agglomeration process, at different mixing times and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Pre-mixing stage		Water addition stage		Final mixing stage	
			Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)	Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)	Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)
Vertical	80	0.45	2	8.9 (± 0.4)	6.8	21.1 (± 1.1)	0	0.00 (± 0.0)
			2	9.6 (± 0.5)	6.8	21.0 (± 1.1)	5	16.0 (± 0.8)
			2	6.8 (± 0.3)	6.8	21.2 (± 1.1)	15	48.3 (± 2.4)
Horizontal	114	0.42	2	4.3 (± 0.2)	8.0	14.9 (± 0.8)	0	0.00 (± 0.0)
			2	4.2 (± 0.2)	8.0	15.5 (± 0.8)	5	10.4 (± 0.5)
			2	3.9 (± 0.2)	8.0	14.7 (± 0.7)	15	23.6 (± 1.2)
Planetary	70	0.44	2	4.9 (± 0.3)	4.4	8.2 (± 0.4)	0	0.00 (± 0.0)
			2	4.8 (± 0.2)	4.4	9.2 (± 0.5)	5	13.7 (± 0.7)
			2	4.4 (± 0.2)	4.4	7.5 (± 0.4)	15	38.3 (± 1.9)

Table IV.1.2.5.

Median diameter (d_{50}) and span of the particle size distributions after the wet agglomeration process, at different mixing times and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Mixing time (min)	d_{50} (mm)	Diameter span
Vertical	80	0.45	0	1.40 (± 0.01)	0.97 (± 0.01)
			5	1.11 (± 0.01)	1.27 (± 0.01)
			15	0.74 (± 0.01)	1.66 (± 0.01)
Horizontal	114	0.42	0	1.28 (± 0.01)	1.12 (± 0.01)
			5	0.77 (± 0.01)	1.68 (± 0.01)
			15	0.68 (± 0.01)	1.51 (± 0.01)
Planetary	70	0.44	0	1.05 (± 0.01)	1.30 (± 0.01)
			5	0.71 (± 0.01)	1.55 (± 0.01)
			15	0.65 (± 0.01)	1.54 (± 0.01)

Table IV.1.2.6.

Weight fractions of the different structures produced after the wet agglomeration process, at different mixing times and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Mixing time (min)	Weight fractions of the different structures after agglomeration			
				Small particles & Fragments	Nuclei	Agglomerates	Dough pieces
Vertical	80	0.45	0	0.245 (± 0.01)	0.094 (± 0.01)	0.252 (± 0.01)	0.402 (± 0.02)
			5	0.160 (± 0.01)	0.123 (± 0.01)	0.290 (± 0.01)	0.417 (± 0.02)
			15	0.153 (± 0.01)	0.371 (± 0.02)	0.259 (± 0.01)	0.209 (± 0.01)
Horizontal	114	0.42	0	0.147 (± 0.01)	0.088 (± 0.01)	0.244 (± 0.01)	0.514 (± 0.02)
			5	0.231 (± 0.01)	0.277 (± 0.01)	0.240 (± 0.01)	0.244 (± 0.01)
			15	0.227 (± 0.01)	0.380 (± 0.02)	0.258 (± 0.01)	0.123 (± 0.01)
Planetary	70	0.44	0	0.076 (± 0.01)	0.250 (± 0.01)	0.265 (± 0.01)	0.404 (± 0.02)
			5	0.141 (± 0.01)	0.404 (± 0.02)	0.290 (± 0.01)	0.161 (± 0.01)
			15	0.433 (± 0.02)	0.196 (± 0.01)	0.260 (± 0.01)	0.106 (± 0.01)

IV.1.2.3.4. Impact type of mixers

The impact of the mixer was studied using three different types of mixers under different experimental conditions of impeller speeds, water contents and mixing times. Results indicated specific values of power consumptions for each type of mixer (Table IV.1.2.1). During the initial stage of mixing for 2 min, the different types of mixers can be classified according to increasing values of specific mechanical energy consumption: the horizontal mixer (3.9 kJ/kg), the planetary mixer (4.4 kJ/kg), and the vertical mixer (6.8 kJ/kg). The duration of the water addition stage was different for the three mixers, due to different amounts of added water. During the final mixing stage, the vertical mixer was still characterized by higher values of the specific energy consumption (48.3 kJ/kg) and the horizontal mixer was characterized by lower values of the specific energy consumption (23.6 kJ/kg). The choice of the mixer will thus have to consider the specific mechanical energy input during processing.

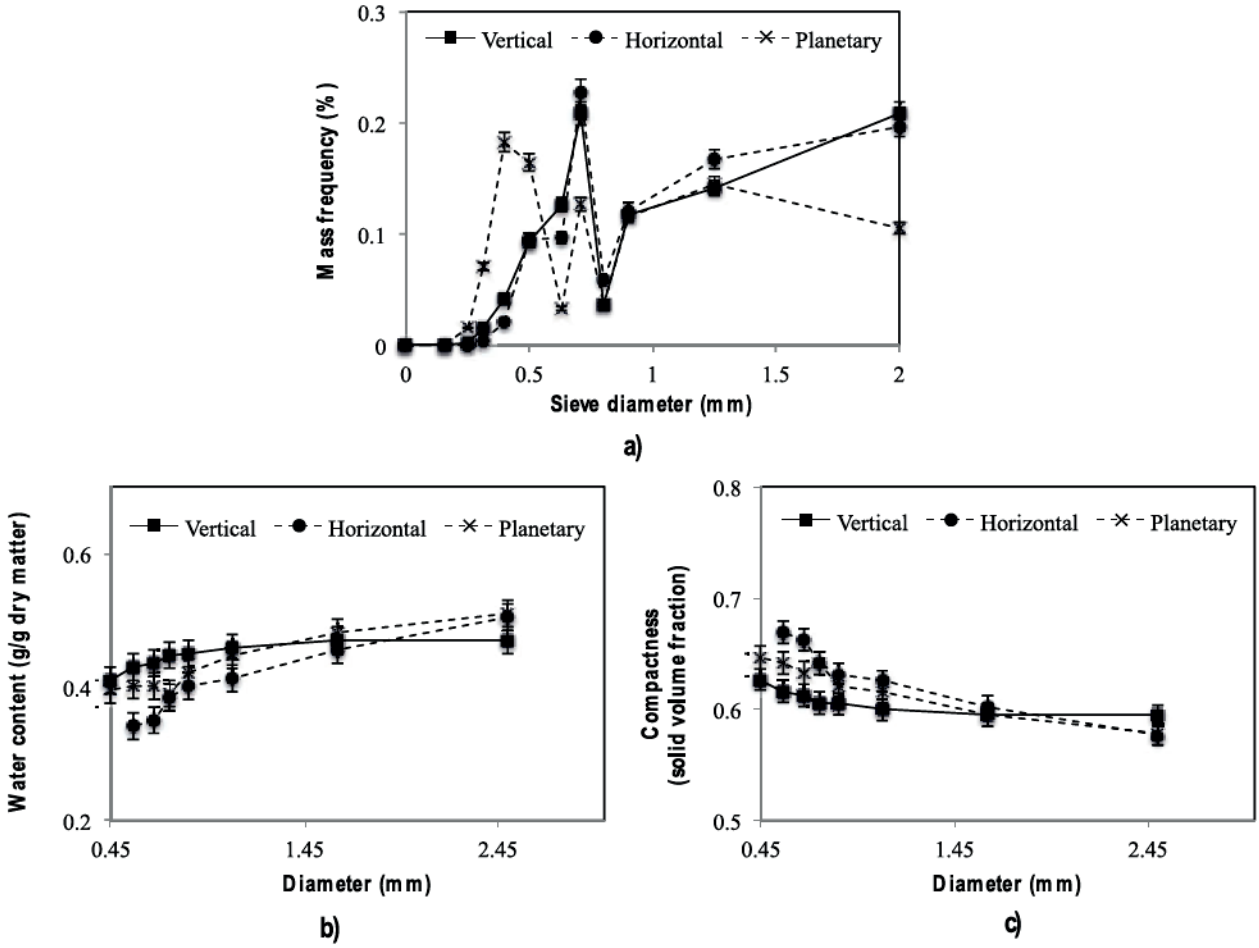


Figure IV.1.2.5. Distribution curves of the diameters of the wet agglomerates (a); changes in water content (b) and compactness (c) as a function of the diameter of the wet agglomerates - experiences processed in the vertical mixer (80 rpm, w=0.45 g/g dry), in the horizontal mixer (114 rpm, w = 0.42 g/g dry matter) and in the planetary mixer (70 rpm, w= 0.44 g/g dry matter) after a mixing time of 15 minutes

As similar experimental curves were obtained whatever the experimental conditions (data not shown), only results concerning the use of the different types of mixers at low blade speed (70-114 rpm), high process water content (0.42-0.45 g/g), and long mixing time (15 min) are presented (Fig. IV.1.2.5). The type of mixer impacted the weight proportions of the different agglomerated structures (Fig. IV.1.2.5a). Almost similar values of the weight proportions of the four different fractions were observed when comparing the vertical mixer and the horizontal mixer. On the other hand, when using the planetary mixer, the weight proportion of small particles & fragments was higher and the agglomerates and dough pieces were lower. The d_{50} was slightly higher in the vertical mixer (0.74 mm) than in the horizontal mixer (0.68 mm) and the planetary mixer (0.65 mm). Concerning the spans of the particle size distribution, a higher span was observed in the horizontal mixer (1.68) and a lower span in the planetary mixer (1.54).

Results show a slight impact of the mechanical mixer on the values of water content and compactness for each type of structures (Fig. IV.1.2.5bc). Nevertheless, this impact can be partly due to the slight

differences of the process water content between the different mixers. The values of water content according to the diameter for the different structures were higher when using the vertical mixer, which have higher water content in the bed (0.45), in comparison with the horizontal mixer (0.42) or the vertical mixer (0.44). The water content of the dough pieces seemed to be lower with the vertical mixer. The values of the compactness for the small particles & fragments, the nuclei and the agglomerates were decreasing when using, respectively, the horizontal mixer, the planetary mixer and the vertical mixer. The compactness of the dough pieces seemed to be slightly higher with the vertical mixer.

IV.1.2.3.5. Impact of impeller speeds

The impact of the impeller speed was investigated by considering two different speeds for the blade rotation for the three different types of mixers. The range of investigated impeller speeds was 80-200 rpm for the vertical mixer, 114-228 rpm for the horizontal mixer, and 70-140 rpm for the planetary mixer.

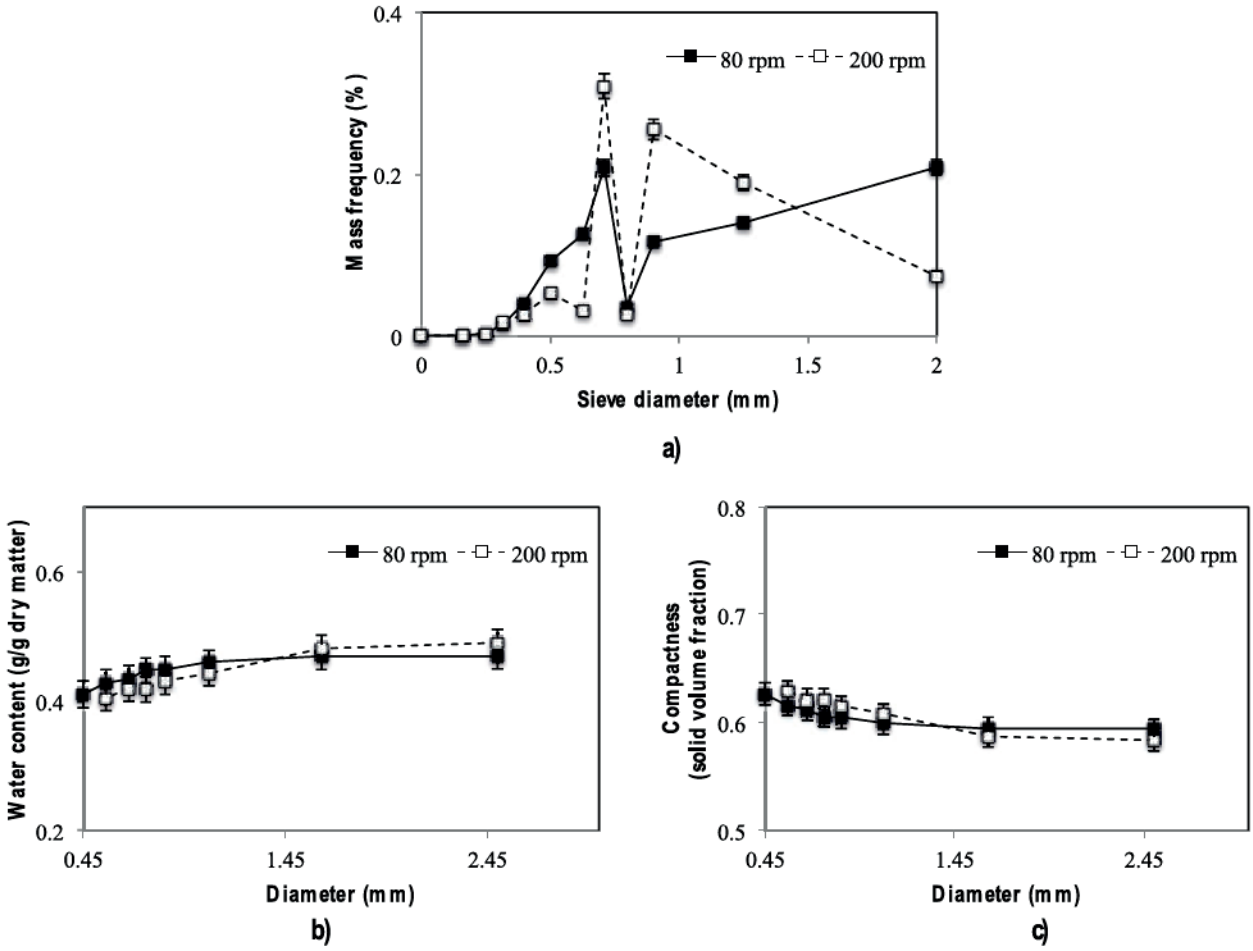


Figure IV.1.2.6. Distribution curves of the diameters of the wet agglomerates (a); changes in water content (b) and compactness (c) as a function of the diameter of the wet agglomerates - experiences processed in the vertical mixer (w=0.45 g/g dry) with water content of 0.45 g/g dry matter and after a mixing time of 15 minutes

Increasing the impeller speed led to an increase in the power consumption for the three successive stages, whatever the type of mixers (Table IV.1.2.7). During the initial stage of mixing and during the final stage of mixing, the classification of the different types of mixer according to their values of mechanical energy consumption depends on the speed of the blades. The lower values of energy input were observed for the horizontal mixer at the low blade's speed. The lower values of energy input were observed for the vertical mixer at the high blade's speed. Additional experiments could be necessary to improve the description of the mechanical energy consumption of the three different mixers under different process conditions.

As similar experimental curves were obtained whatever the experimental conditions and using the three different types of mixers (data not shown), only the results concerning the effect of the blade speed (80 or 200 rpm) for the vertical mixer, at 0.45 g/g water content and for 15 min final mixing times are presented (Fig. IV.1.2.6). Impeller speeds impacted the weight proportion of the different agglomerated fractions. An increase generated higher weight proportions of the nuclei and agglomerates and lower weight proportions of the small particles & fragments and of the dough pieces (Table IV.1.2.9). These changes induced slight differences in the median diameters (d_{50}) and significantly decreased the values of the span of the size distribution curves, whatever the type of mixer (Table IV.1.2.8). The present work demonstrated no impact of the impeller speed on the measured values of compactness and water content for the different types of structure (Fig. IV.1.2.6b-c). Results indicated a higher homogeneity and a lower dispersion of the agglomerated structures after the agglomeration process. Increasing the impeller speed could be associated to an increase of the mechanisms of fragmentation of the large dough pieces and to a better contribution of the small particles to the agglomeration mechanisms. These two mechanisms could improves the formation of nuclei and agglomerates of intermediary diameter by promoting some consolidation and growth mechanisms (Reynolds et al., 2005).

Table IV.1.2.7.

Mechanical energy consumptions during each stage of the wet agglomeration process, at different impeller speeds and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Pre-mixing stage		Water addition stage		Final mixing stage	
			Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)	Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)	Duration (min)	Specific consumption (kJ/kg)
Vertical	80	0.45	2	6.8 (± 0.34)	6.8	21.2 (± 1.10)	15	48.3 (± 2.40)
	200		2	9.2 (± 0.46)	6.1	25.9 (± 1.30)	15	58.9 (± 3.00)
Horizontal	114	0.40	2	3.9 (± 0.20)	7.5	15.2 (± 0.75)	15	38.3 (± 1.90)
	228		2	11.1 (± 0.55)	7.5	37.0 (± 1.90)	15	66.6 (± 3.40)
Planetary	70	0.38	2	4.4 (± 0.22)	4.4	7.5 (± 0.38)	15	35.7 (± 1.90)
	180		2	8.7 (± 0.55)	4.1	19.5 (± 1.00)	15	72.1 (± 3.60)

Table IV.1.2.8.

Median diameter (d_{50}) and span of the particle size distributions after the wet agglomeration process, at different impeller speeds and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Mixing time (min)	d_{50} (mm)	Diameter span
Vertical	80	0.45	15	0.74 (± 0.01)	1.66 (± 0.01)
	200		15	0.81 (± 0.01)	0.74 (± 0.01)
Horizontal	114	0.40	15	0.80 (± 0.01)	1.65 (± 0.01)
	228		15	0.79 (± 0.01)	1.56 (± 0.01)
Planetary	70	0.38	15	0.49 (± 0.01)	2.55 (± 0.01)
	180		15	0.67 (± 0.01)	1.04 (± 0.01)

Table IV.1.2.9.

Weight fractions of the different structures produced after the wet agglomeration process, at different impeller speeds and for each mechanical mixer

Mixer type	Rotation speed (rpm)	Water content (g/g db)	Mixing time (min)	Weight fractions of the different structures after agglomeration			
				Small particles & Fragments	Nuclei	Agglomerates	Dough pieces
Vertical	80	0.45	15	0.153 (± 0.01)	0.371 (± 0.02)	0.259 (± 0.01)	0.209 (± 0.01)
	200		15	0.054 (± 0.01)	0.309 (± 0.01)	0.446 (± 0.02)	0.074 (± 0.01)
Horizontal	114	0.40	15	0.139 (± 0.01)	0.142 (± 0.01)	0.227 (± 0.01)	0.260 (± 0.01)
	228		15	0.103 (± 0.01)	0.200 (± 0.01)	0.316 (± 0.01)	0.165 (± 0.01)
Planetary	70	0.38	15	0.190 (± 0.01)	0.225 (± 0.01)	0.238 (± 0.01)	0.102 (± 0.01)
	180		15	0.131 (± 0.01)	0.325 (± 0.01)	0.214 (± 0.01)	0.073 (± 0.01)

IV.1.2.4. Discussion

The changes in compactness as a function of the water content of the wet agglomerates were plotted on the hydrotextural diagram. This diagram was developed by Ruiz et al. (2005) to describe the evolution of the compactness as a function of water addition level after the wetting/mixing stage. It is limited in its upper part by the saturation curve, which represents the maximum water content that a grain of a given constant compactness can contain. All the experiments showed that the different structures (fragments, nuclei, agglomerates, and dough pieces) are on the saturation curve: they are all saturated by water (Fig. IV.1.2.7). It was possible to predict the variation of the compactness by the water content of the wet structures by using the equation of the saturation curve.

To discuss the possible mechanisms involved during the agglomeration process, the fluctuations of compactness as a function to the fluctuations of water content were plotted as a function to the compactness (Fig. IV.1.2.8). We demonstrated linear relationships between these two characteristics, with similar slopes irrespective of the process conditions. These monotonous relationships can be interpreted by the fact that growth mechanisms of the agglomerates respect an association by the same hydro-textural categories. If different populations (differentiated by their size, water content, and/or compactness) interacted each other, the fluctuations of the hydro-textural quantities would be independent. Since the hydro-textural properties are related to the size of the structures, the "structural model" for the association could be interpreted as an association by size class.

As already described, an agglomeration mechanism of nucleation/growing and mechanisms of dough formation/fragmentation are observed during the wet agglomeration process, whatever the type of mixer (Iveson et al., 2001; Bellocq et al., 2017). It seems that the agglomeration mechanism occurs according to three main stages: *(i)* nucleation which depends on the process parameters of the wetting and mixing stage, *(ii)* growing, which could be described as the formation of large grains by the association of several nuclei following a fractal morphogenesis, *(iii)* "pasting", which leads to the formation of the large dough pieces. The fragmentation mechanisms of the large dough pieces conduct to the formation of fragmented structures with similar diameter, but different water content and compactness than those found for the nuclei and the agglomerates. They were more hydrated than the nuclei and had an internal continuous dough structure. Dough pieces were broken depending on the mixing conditions within the powder bed, due to the shear stress field generated by the mixer.

This work shows an impact of the water content, the mixing time, the type of mixer and the impeller speed on the size distributions of the agglomerated structures after the agglomeration process. These different factors could modulate the weight fractions of the different types of structures. The water content and the duration of the final mixing stage impact the value of water content and compactness as a function to the diameter of the structures. Nevertheless, similar relationships have been observed concerning the dependence of the water content and compactness with the diameter. Similar agglomeration mechanisms can thus supposed to occur whatever the mixer types and process conditions. Additional work could be conducted to try to identify specific technological ways to generate the higher yields of agglomerates between 1-2 mm, with the lower mechanical energy input, and similar physicochemical characteristics.

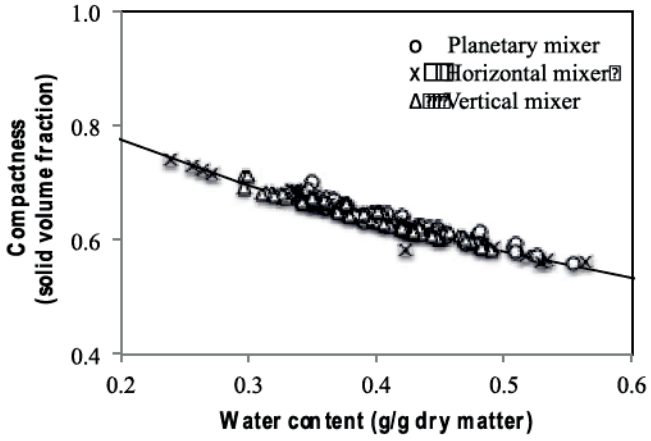


Figure IV.1.2.7. Hydrotextural diagram - evolution of agglomerates compactness according to their water content

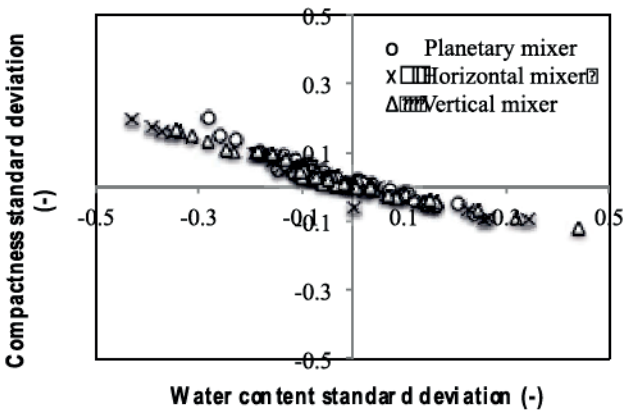


Figure IV.1.2.9 Fluctuations in compactness as a function of fluctuations in water content

IV.1.2.5. Conclusion

The evolutions of the size, the water content and the compactness of a population of wet agglomerates were investigated after the granulation process as a function to the process conditions (initial water content, mixing time, type of mixer and impeller speed). Results indicate that the agglomerates are saturated whatever the technologies and the agitation conditions. The evolution of the size distribution of the wet agglomerated structures (nuclei, agglomerates and dough pieces) with their compactness shows the concomitant development of a continuous/growth mechanism and dough formation/fragmentation mechanism of the dough pieces. The fluctuations of compactness and the fluctuations of water content around their respective mean values are correlated. It indicates that the different structures combine in the same way. The analysis of the size distribution and the analysis of the hydrotextural properties show that it is possible to correlate the impacts of the different processes to generate agglomerates with similar functionalities.

Acknowledgements *- The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR-13-ALID-0002-01) for its financial support through the program "Dur Dur": Innovations agronomiques, techniques et organisationnelles au service de la DURabilité de la filière blé DUR.*

IV.2. Rolling stage of the wet agglomerates

Les tambours tournants sont des équipements qui ont été très étudiés dans la littérature. Ils sont utilisés dans différentes industries pour la classification (trommel screen), l'initiation de réactions chimiques, le chauffage, le séchage *etc*. L'étude bibliographique montre des résultats liés à l'impact des paramètres du procédé sur le temps de séjour, les régimes d'écoulement ou les réactions qui ont lieu au sein de l'équipement. L'opération de roulage est essentielle dans le procédé de fabrication d'un grain de couscous avec des fonctions de classification et de mise en forme, cependant aucune étude sur cette opération n'a été conduite à l'heure actuelle. Le procédé a été défini pour mimer le roulage manuel avec la paume de la main des grains. L'objectif de ce travail est de développer une approche pour mieux comprendre les rôles de *(i)* l'efficacité de la fonction de classification et *(ii)* l'effet de mise en forme d'un tambour rotatif sur des agglomérats humides de couscous.

La présentation des résultats sur l'opération de roulage est présentée sous la forme d'une publication : Bellocq B., Ruiz T., Delaplace G., Duri A., Cuq B. 2017. Screening efficiency and rolling effects of a rotating screen drum used to process wet soft agglomerates. Journal of Food Engineering 195, 235-246.

IV.2.1. Screening efficiency and rolling effects of a rotating screen drum used to process wet soft agglomerates

IV.2.1.1. Introduction

The rotating drums are equipment's largely encountered in process lines (both in continuous and batch modes) for handling and processing power and wet media. Indeed simple cylinders rotating about their central axis can be used in a horizontal position as batch drums, or as continuous drums when inclined at a few degrees to generate granular flows. The rotating drums are very versatile by realizing a large diversity of unit operations (*e.g.* solid-solid separation, mixing, drying, heating, chemical reactions, spraying, coating, granulation, screening, shape classification, *etc*.) in a large number of fields of application (*e.g.* environmental, chemical, mineral, metallurgical, food, pharmaceutical and civil engineering sectors, etc.). Different regimes for granular flow in rotating drums can occur (slipping, slumping, rolling, cascading, cataracting, and centrifuging modes) as a function of the process conditions, the regime type impacting on the process efficiency (Ding et al., 2002, 2001; Gray, 2001; Komossa et al., 2014; Liu et al., 2013; Mellmann, 2001; Scott et al., 2009; Spurling et al., 2001; Yan and Specht, 2010; Yu et al., 2015).

Among the applications, the rotating screen drums are commonly used for size separation of granular materials. The rotating screen drums are relatively simple, low expensive, requiring little operating and maintenance costs compared to other separation systems. It consisted of a cylindrical perforated drum that rotated to perform size separation. Perforations or holes in the cylinder allow smaller materials to drop out during the rotation process. The fine particles are then first separated, at the beginning of the screening process. Due to the inclination of the drum, the remaining particles travel

onward to the subsequent screening rings to be separated. Over-sized materials pass through the rotating screen drum. The flow of particles through the orifices on the rotating drum occurs due to the combination of the mobility of grains (like falling in avalanches, ballistic trajectory…) caused by the rotation regime of the drum and jamming in the vicinity of the orifices. The rotating screen drum can be managed by controlling the product flow, the driving speed and inclination angle of rotation axis (Chen et al., 2010; Kopral et al., 2011; Kumar, 2005). The screening efficiency was inversely proportional with the product flow rate and the drum rotational speed. An increase of the angle of inclination of the drum improves the screening efficiency, until a critical angle that generates too high horizontal motion velocity of the particles on the drum screen. The rotating screen drum can also classify particles of different shapes with different residence times of particles in the drum due to the particle shape (Furuuchi, 1993; Hartmann et al., 2006).

Attempts to predict performance of rotating screen drums still remain unsatisfactory due to a lack of understanding of the screening mechanisms when applied to continuous screening. Prasanna Kumar (2005) studied the effect of the various screen drum, grain and operating parameters on the flow rate of grains and developed empirical equations for the flow rate by dimensional analysis. The spacing between orifices, the diameter of orifice, the percent fill of drum and rotational speed of the drum significantly affect the screening flow rate. Comprehensive effect of granular flow under various operational parameters and screening methods are not yet been thoroughly understood, more particularly if the granular materials are characterized by heterogeneous size distribution (Chen et al., 2010; Liu, 2009). Some works have developed modelling by the dimensional analysis approach and proposed integrated models considering the equipment characteristics and the process conditions (Kumar, 2005; Njeng, 2015).

The granular flow inside rotating drums may generate undesirable breakage or erosion of the granular material. These mechanisms were observed inside a rotary drum, due to impacts and wear with the drum walls and shear deformation within the granular material (Ahmadian et al., 2011). The breakage trends of the grains were found to increase with rotational speed.

In the food domain, the rotating drum screens are used for the manufacturing of the classical couscous grains. The couscous grains are made with durum wheat semolina, by the succession of four unit operations: wet agglomeration, rolling-sieving, steam cooking, and drying (Abecassis et al., 2012; Ruiz et al., 2014). At the end of the wet agglomeration stage, the soft wet agglomerates made of durum wheat semolina and water are continuously introduced inside an inclined rotating screen drum, constituted by successive screens of increasing meshes. This equipment is known to play two roles in the process of couscous grains. First the screening role, by separating the wet agglomerates according to their size, in order to only select those in the expected range of diameters (between 1 and 2 mm). It also contributes to the couscous grain structure, by modifying the shape and the density of the wet agglomerates due to the mechanical stresses that are promoted by granular flow inside the rotating drum. It is the rolling effects. The grains of couscous rolled in the rotary drum are more spherical and less porous, than those that are sieved on traditional horizontal vibrating sieves (Abecassis et al., 2012;

Hébrard, 2002). However, no scientific works have described the secondary agglomeration mechanisms that could occur on soft plastic grains during their flow inside a rotating drum. It should be noticed that on the current industrial lines, the rotating drum screens still generate large flow rates of under- and over-sized grains, after the wet agglomeration stage. These flows rates can represent more than 2.5 times the flow rate of target product. No study on the rolling stage during the process of the couscous grain has been yet conducted.

The objective of the present work is to develop an approach to better understand the two roles (screening efficiency and shaping effects) of the inclined rotating screen drum when used with the soft wet couscous agglomerates. Durum wheat semolina was used as raw materials to produce the wet agglomerates. The pilot rotating screen drum equipment was composed of two sieves to separate three fractions: fine, medium, and large agglomerates. The shaping effects of the rotating screen drum were evaluated from the measurements of the physico-chemical characteristics (size distribution, water content, compactness, and circularity) of the wet agglomerates. The impacts of rotating screen drum parameters (angle of inclination, rotating speed, and product flow rate) on the sieving efficiency and on the shaping effects were investigated. A dimensional analysis approach is proposed to establish some relationships between the characteristics of the agglomerates and the process parameters. Experimental results give the very first tendency of this correlation.

IV.2.1.2. Material and method

IV.2.1.2.1. Raw material

Durum wheat semolina of industrial quality (Panzani group, France) was used as raw material for the agglomeration experiments. Semolina was stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out. Semolina was first characterized using standardized methods. The water content of semolina (16.0 ± 0.5 g water / 100 g dry semolina) was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h. Median value of particle diameter of semolina (d_{50} = 283 ± 1 µm) was measured by a laser granulometer (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The diameter span ((d_{90}-d_{10})/d_{50}) was 1.67. The semolina true density (1.478 ±0.005 g.cm^{-3}) was measured by azote pycnometry. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content (12.3 g protein/100 g dry matter) was calculated according to TN - 5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970).

IV.2.1.2.2. Agglomeration process

The wet agglomeration process was conducted by using a horizontal low shear mixer. A sample of 5.0 kg of semolina was first introduced in the mixing tank (48.5 cm length, 20.0 cm width, and 19.0 cm height). The two horizontal shaft axes were positioned at 6.1 cm from the bottom of the tank, with 12 metal rotating paddle blades (47.5 cm length and 14.0 cm gap between 2 blades). The sample of semolina was mixed for 2 min at constant mixer arm speed (80 rpm) to equilibrate the temperature at 25°C (± 2°C). Water was directly poured over the semolina under mixing at almost constant flow rate

(8 g.sec^{-1}) during 2 minutes. Water addition was conducted to reach a final water content of 42.5 g water/100 g dry matter. After the water addition step, the mixture was stirred for 18 min to homogenize and agglomerate. The wet agglomerates were then collected using a plastic bowl and directly introduced in the rotating drum equipment.

IV.2.1.2.3. Rolling process

Experiments were performed in the rotating screen drum as illustrated in Figure IV.2.1.1. It consisted of a cylindrical stainless-steel screening device (0.5 m diameter and 1 m total length) that rotated to perform rolling and size separation of the agglomerates. The cylinder was supported by a central axis and rotated by an electric motor and belt drive. The rotating screen drum consists of 2 successive joined cylindrical screening cylinders, each of 0.5 m height, having a 0.44 mm effective screening length (screen area = 69 cm^2). Sieve holes were round holes of 1 and 2.2 mm diameter. Different inclinations (5.1, 6.2, 7.4, 9.7, and 12.0°) and different rotating drum speeds (2, 7.5, 13, 20, and 26 rpm) of the drum were tested. The wet agglomerates were continuously fed by using a vibrating feeder inside the rotating drum, tangentially to the bottom of the first screening ring. Different feed rates (6.7, 11.4, 20.7, and 25.3 g.sec^{-1}) were tested. Depending on the operating conditions, the total time of the rolling/screening stage is closed to 10 minutes.

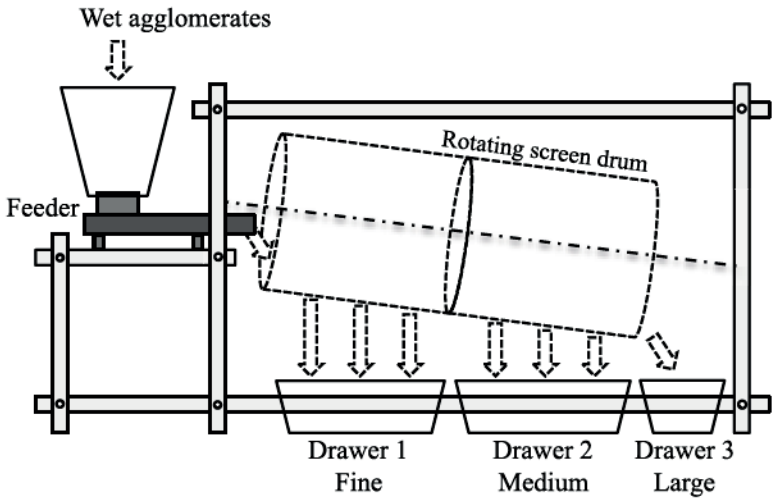


Figure IV.2.1.1. Schematic representation of the experimental rotating screen drum

The fine agglomerates are first collected in a drawer under the first screen (1 mm). The medium agglomerates are collected in a drawer under the second screen (2.2 mm). The large agglomerates are discharged out of the drum and collected in a third drawer. For each experiment, the mass of the collected agglomerates in the three drawers was weighed.

IV.2.1.2.4. Characterization of the agglomerates

Water content - The water content (w) of agglomerates (dry base) was determined on 3-5 g samples, by a drying method in an oven (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h (AACC Method 44-15A). Mean values were determined from triplicate: $w = m_w/m_s$, where w is

the water content of agglomerates (g / g dry matter), m_w is the mass of water (g) and m_s is the mass of dry matter (g) in the sample.

Size distribution - A specific method was proposed to measure the distribution according to size criterion of the wet agglomerates. The size distribution was measured for the initial wet agglomerates (before introducing them in the rotating screen drum) and for the three products, that are collected after the rotating screen drum in the drawers. Size distribution was determined by sieving a sample of 100 g on the top of a column of 2 sieves of decreasing meshes (2 and 1 mm). The two sieves were chosen with almost similar meshes values, compared to the meshes of the two screens (1 and 2.2 mm) of the rotating drum.

The sieve column was mechanically mildly shacked using a rotachoc equipment (Rotachoc, Chopin Technologies, France) at 200 rpm for 5 min, to limit the particle breakage during the mechanical shaking process (Saad et al., 2011). The possible broken effect is supposed similar for all the different products. The size distribution was obtained by weighing the mass of agglomerates on each sieve. The weight distribution according to size criteria was expressed as the percent of total weight. Measurements were conducted in triplicate.

Compactness - Samples of agglomerates (about 1 g) were used to determine the compactness, *i.e.* the solid volume fraction: $\phi = \rho_s / \rho_s^*$. The solid apparent density ρ_s of the wet agglomerates was measured by using a hydrostatic balance with paraffin oil, which ensures the wet agglomerates without penetrating them. The solid true density ρ_s^* was measured by using a nitrogen pycnometer (ULTRAPYC 1200e, Quatachrom) after drying the agglomerates at 105°C for 24h.

Agglomerates shape - For each rolled product, we sampled a number of agglomerates (between 10 to 30) to be statistically representative of the shape of the sample. The selected wet agglomerates were dispersed on glass slides and observed by a camera (Lumix DMC-FS11, Panasonic, Tokyo, Japan). Image analyses were carried out with Fiji® software by following these steps:

- Image pre-treatment includes particle's border killing (removes particles that touch the border of the image), particle's silhouette hole filling (filling the holes within particle silhouette), separation function (breaks narrow isthmuses and separates touching particles), and morphological cleaning.
- Calibration step implies a translation from pixel unit into metric units.
- Measurements of the silhouette dimensions: Perimeter (P) and Area (A).
- The circularity shape factor is defined as the ratio of the perimeter of the silhouette (P) and the circumference of a disk that has the same area (A) as the silhouette. For a disk, circularity equals 1. Circularity value is lower than 1, when the projected shape of the particle departs from a disk, either because of a high roughness in particle surface or because of elongation. Circularity is equal to 0.89 for a square and to 0.50 for a long rectangle: $Circularity = P / 2\sqrt{\pi A}$. The presented values of the circularity shape factors were mean of the measured values.

IV.2.1.2.5. Statistical analysis

The statistical significance of results was assessed using single factor analysis of variance (ANOVA). Multiple comparisons were performed by calculating the least significant difference using Microsoft Excel 2010, at a 5% significance level.

IV.2.1.3. Experimental results

IV.2.1.3.1. Shaping effects of the rotating screen drum

The characteristics of the wet agglomerates were determined immediately after the wet agglomeration stage, just before the introduction in the rotating drum (Table IV.2.1.1). The wet agglomerates are characterized by their water content (0.42), compactness (0.597), and weight distribution of the three fractions according to size criterion.

Table IV.2.1.1.

Physicochemical characteristics of the initial wet grains made of durum wheat semolina, just before the rolling process in the rotating drum

	Mass fraction (x_i)	Water content (g / g dry matter)	Compactness (-)	Circularity (-)
Wet grains	--	0.420 *(±0,010)*	0,597 *(± 0,006)*	--
Small fraction (diameter < 1 mm)	0.483 (± 2.6)	0.398 *(±0,010)*	0.614 *(±0,004)*	--
Medium fraction (1 mm < diameter < 2 mm)	0.285 (± 6.6)	0.408 *(±0,010)*	0,606 *(±0,005)*	0.636 *(± 0.140)*
Large fraction (2 mm < diameter)	0.232 (± 5.2)	0.473 *(±0,010)*	0,573 *(±0,011)*	--

Physicochemical characteristics of the three fractions of the native agglomerates that were collected after the standardized method for the size distribution measurement were also measured (Table IV.2.1.1). It can be noticed the relatively low value of the mass fraction ($x_2 = 0.285$) for the medium initial agglomerates (between 1 and 2 mm). This low value is typical of the instantaneous agglomeration yield for the wet agglomeration operation, as usually observed during the industrial processing of the couscous grains (Abecassis et al., 2012).

It can be observed that the physicochemical characteristics of the wet agglomerates depend on their diameters. The large agglomerates are characterized by high water content (0.47) and low compactness (0.573). The small agglomerates are characterized by low water content (0.40) and high compactness (0.614). The dispersion of water content and compactness values according to the size of the agglomerates (Table IV.2.1.1) is typical of the growth mechanisms associated with the wet agglomeration process under low shear of wheat powders (Barkouti et al., 2012).

The shape description of the agglomerates was only conducted for the median fraction (1 mm < diameter < 2 mm), which is classically selected for the production of the couscous grains. The circularity value (0.636) typifies shape not totally spherical.

The high water contents and the large dispersion of diameters measured for the wet agglomerates could favour the occurrence of specific mechanisms during the processing inside the rotating drum, with

possible plastic strains under mechanical stresses, densification mechanisms under pressure, and potential difficulties in sieving mechanisms.

Processing the initial wet agglomerates with the rotating screen drum generates three rolled products by sieving mechanisms. The physicochemical characteristics of the three products have been determined (Table IV.2.1.2). Processing with the rotating screen drum slightly affects the characteristics of agglomerates.

Table IV.2.1.2.

Physicochemical characteristics of the three classes of wet agglomerates of durum wheat semolina, collected after the rolling process

	Water content (g / g dry matter)	Compactness (-)	Circularity (-)
Agglomerates in drawer 1 (d < 1 mm)	0.410 *(± 0.005)*	0.654 *(± 0.028)*	--
Agglomerates in drawer 2 (d < 2.2 mm)	0.425 *(± 0.003)*	0.609 *(± 0.060)*	0.668 *(± 0.084)*
Agglomerates in drawer 3 (2.2 mm < d)	0.434 *(± 0.004)*	0.571 *(± 0.020)*	--

We observed slightly higher values of the water content for the agglomerates collected in the drawer 1 and drawer 2 after the rolling stage, when compared with the water content of the small and medium fraction in the initial wet agglomerates (Table IV.2.1.1). We could suppose that the rolling process induced erosion or breakage mechanisms of the large wet agglomerates that generated smaller agglomerates with high water content that are collected in the drawers 1 and 2. On the other hand, we observed lower values of the water content for the agglomerates collected in the drawer 3 after the rolling stage (0.434), when compared with the water content of the large fraction in the initial wet agglomerates (0.473) (Table IV.2.1.1). We can consider two hypotheses. Drying mechanisms could occur during the rolling process and slightly reduce the global water content of the large agglomerates. The granular flow inside the drum could also promote agglomeration mechanisms with the adhesion of initial small and large agglomerates.

The rolling process does not impact the compactness values for the medium and large fractions of the agglomerates, as similar values were measured before and after the rolling process (Tables IV.2.1.1-2). We can suppose that the mechanical stresses generated by the shearing conditions of the granular flow inside the rotating drum is not enough sufficient to promote densification of the wet agglomerates of durum wheat. We measured slightly higher values of the compactness for the small fraction of agglomerates. This value is unusually high and could be partly explained by the method of the displaced volume in the paraffin oil, which is not well adapted to measure the solid volume fraction for the small agglomerates.

The shape characteristics of the rolled agglomerates were measured. The rolling process induces slightly higher values of circularity for the medium fraction (0.668), when compared with the initial wet agglomerates (0.636). We can suppose that the mechanical stresses generate by the rolling process impact the shape of the agglomerates by improving their circularity.

IV.2.1.3.2. Screening efficiency parameters of the rotating screen drum

To describe the screening efficiency parameters of a rotary screen drum, we have developed a specific method by using a matrix analysis of the different measured weights of the collected products. The method is based on the calculation of mass fractions (Fig. IV.2.1.2).

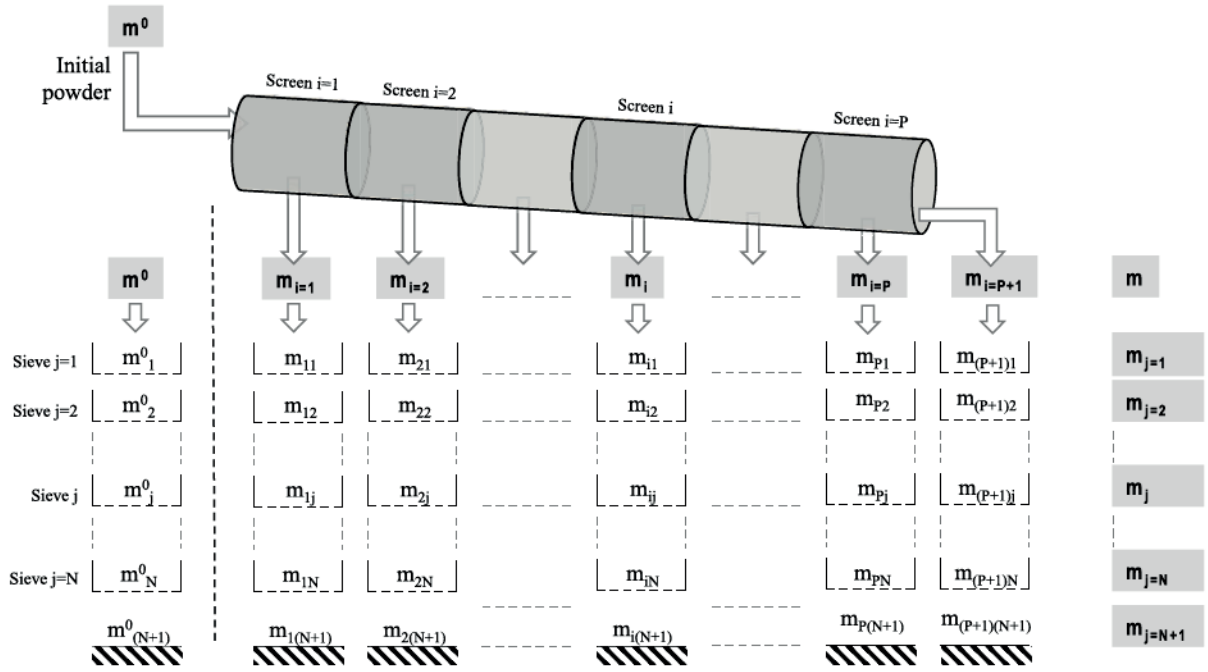


Figure IV.2.1.2. Schematic representation of the specific method to quantify the screening efficiency of a rotary screen drum by using a matrix analysis

A mass (m^0) of the initial agglomerates is introduced in the drum. The rotating screen drum separates the initial powder in different products. The rotating drum is equipped by a number P of screens of increasing mesh. A number of *P+1* products (*i*) is collected in the *P+1* drawers. The mass (m_i) of each i collected product was measured in each drawer. The total mass of the collected products (m) is the sum of the masses (m_i) of the i products collected in the drawers. We supposed no mass accumulation inside the rotating drum ($m = m^0$).

We defined the mass fraction (x_i) for the product i, by the ratio of its mass (m_i) over the total mass (m) of collected product:

$$x_i = \frac{m_i}{m} \qquad \text{(Eq. IV.2.1.1.)}$$

with: $\sum_{i=1}^{P+1} x_i = 1$ and $m = \sum_{i=1}^{P+1} m_i$

The initial powder and the collected products are characterized by their fractions, according to the standard sieving procedure using a column of a number of *N* sieves of decreasing mesh (Fig. IV.2.1.2). A number of *N+1* fractions (*j*) is characterized using the *N* sieves. The masses (m_{ij}) of each fraction *j* from each *i* product, are measured.

For the initial powder, we defined the mass fraction (x^0_j), by the ratio of the mass of its fraction *j* (m^0_j) over the total mass (m^0) of the initial powder:

$$x_j^0 = \frac{m^0{}_j}{m^0} \qquad \text{(Eq. IV.2.1.2.)}$$

With: $\sum_{j=1}^{N+1} x_j^0 = 1$ and: $m^0 = \sum_{j=1}^{N+1} m^0{}_j$. For each *i* collected product ($\forall\, i \in \{1,..,P+1\}$), we defined three mass fractions (x_{ij}, y_{ij} and z_{ij}), by the ratio of the mass of their fraction j (m_{ij}) over the different total masses: total mass of the collected products (m), total mass of the collected product in the drawer i (m_i), and total mass of the fraction j of all the collected product (m_j), respectively:

$$x_{ij} = \frac{m_{ij}}{m} \qquad \text{(Eq. IV.2.1.3.)}$$

$$y_{ij} = \frac{m_{ij}}{m_i} \qquad \text{(Eq. IV.2.1.4.)}$$

$$z_{ij} = \frac{m_{ij}}{m_j} \qquad \text{(Eq. IV.2.1.5.)}$$

with: $\sum_{j=1}^{N+1}\sum_{i=1}^{P+1} x_{ij} = 1$, $\sum_{i=1}^{P+1} x_{ij} = x_j$, $\sum_{j=1}^{N+1} x_{ij} = x_i$ and $m = \sum_{j=1}^{N+1}\sum_{i=1}^{P+1} m_{ij}$.
Also: *(i)* $\forall\, j \in \{1,..,N+1\}$ $\sum_{i=1}^{P+1} y_{ij} = 1$ and $m_i = \sum_{i=1}^{P+1} m_{ij}$, *(ii)* $\forall\, i \in \{1,..,P+1\}$ $\sum_{j=1}^{N+1} z_{ij} = 1$ and $m_j = \sum_{j=1}^{N+1} m_{ij}$. This specific method is used to describe the screening efficiency of the rotating screen drum for wet agglomerates of durum wheat.

Table IV.2.1.3.

Calculated mass fractions (x_i and x_{ij}) of the collected agglomerates *i* and their fractions *j*, over the total mass (m) of collected product, after the processing inside the rotating screen drum

	Agglomerates in drawer i=1 (d < 1 mm)	Agglomerates in drawer i=2 (d < 2.2 mm)	Agglomerates in drawer i=3 (2.2 mm < d)	*Total collected agglomerates*
Small agglomerates j=1 (d < 1 mm)	0.368	0.043	0.006	*0.417*
Medium agglomerates j=2 (1 mm < d < 2 mm)	0	0.332	0.027	*0.359*
Large agglomerates j=3 (2 mm < d)	0	0	0.223	*0.223*
Total collected agglomerates	*0.368*	*0.375*	*0.256*	*1*

The mass fractions (x_{ij}) of the different collected agglomerates, is first calculated, over the total mass (m) of collected products (Table IV.2.1.3). We define the apparent screening efficiency of the rotating screen drum by considering the sum of the mass fractions of the diagonal of the matrix (x_{11}+x_{22}+x_{33} = 0.923), which indicates that 92.3% of the wet agglomerates are collected in the right drawer according to their size.

We define the global process efficiency by taking into consideration the mass fraction of the medium agglomerates (*j*=2) collected in the second drawer (*i=2*) (x_{22}=*0.332*), which indicates that 33.2% of medium agglomerates are produced by the agglomeration process and collected in the right drawer.

We define the impact of the processing inside the rotating screen drum on the size distribution of agglomerates, by calculating the relative difference of the mass fractions of the three classes of agglomerates (*j*) before and after processing ($100\ (x_j - x^0_j) / x^0_j$). The present results (Tables IV.2.1.1-

3) demonstrate a decrease of the mass fraction of the small agglomerates $j=1$ (-13.7%) and an increase of the mass fraction of the medium agglomerates $j=2$ (+26.0%). On the other hand, the processing inside the rotating screen drum does not affect the mass fraction of the large agglomerates $j=3$ (-3.9%)

We calculated the mass fractions (y_{ij}) of the different collected agglomerates, over the total mass (m_i) from the collected products in the drawer i (Table IV.2.1.4). We define the contamination rate of the collected product targets by taking into consideration the mass fraction of the small agglomerates ($j=1$) collected in the second drawer ($i=2$) ($y_{21}=0.115$), which indicates that 11.5% of products collected in the second drawer are too small in regards with the specifications.

Table IV.2.1.4.

For each collected agglomerates i, calculated mass fractions (y_{ij}) of their fractions j, over the total mass of collected product in the drawer i, after the processing inside the rotating screen drum

	Agglomerates in drawer $i=1$ (d < 1 mm)	Agglomerates in drawer $i=2$ (d < 2.2 mm)	Agglomerates in drawer $i=3$ (2.2 mm < d)
Small agglomerates $j=1$ (d < 1 mm)	1	0.115	0.023
Medium agglomerates $j=2$ (1 mm < d < 2 mm)	0	0.885	0.104
Large agglomerates $j=3$ (2 mm < d)	0	0	0.873
Total collected agglomerates	*1*	*1*	*1*

We calculated the mass fractions (z_{ij}) of the different collected agglomerates, over the total mass (m_j) of the fraction j from all the collected products (Table IV.2.1.5). We define the loss rate of the targeted product by taking into consideration the mass fraction of the medium agglomerates ($j=2$) collected in the third drawer ($i=3$) ($z_{32}=0.074$), which indicates that 7.4% of the medium agglomerates are not collected in the right second drawer.

Table IV.2.1.5.

For each fraction j, calculated mass fractions (z_{ij}) of their distribution in the drawer i, over the total mass of fraction j, after the processing inside the rotating screen drum

	Agglomerates in drawer $i=1$ (d < 1 mm)	Agglomerates in drawer $i=2$ (d < 2.2 mm)	Agglomerates in drawer $i=3$ (2.2 mm < d)	*Total collected agglomerates*
Small agglomerates $j=1$ (d < 1 mm)	0.883	0.103	0.014	*1*
Medium agglomerates $j=2$ (1 mm < d < 2 mm)	0	0.926	0.074	*1*
Large agglomerates $j=3$ (2 mm < d)	0	0	1	*1*

This original approach using matrix analysis has never been completed on an inclined rotating drum and allows us to characterize the overall process efficiency. The present work thus defines several parameters for evaluating the screening efficiency of the rotating screen drum: the apparent screening efficiency ($x_{11}+x_{22}+x_{33}$), the global process efficiency (x_{22}), the impact of the processing on size distribution of products ($100\ (x_j - x^0_j) / x^0_j$), the contamination rate of the collected product targets (y_{21}), and the loss rate of the product targets (z_{32}).

IV.2.1.3.3. Impact of the parameters of the rotating drum

We investigated the influence of the process parameters (angle on inclination, feed rate of wet agglomerates, and rotational speed) of the rotating screen drum on the screening efficiency parameters and on the impact on the characteristics of the rolled agglomerates.

Influence of the angle of inclination

An increase in the angle of inclination (from 4.5 to 12°) of the rotating drum induces slight changes of the screening efficiency parameters (Figure IV.2.1.3). The description of the effects of the angle of inclination of the rotating drum can be divided in two parts on both side of the 6° angle. The higher values of the screening efficiency are observed at 6°, with 6.7% contamination rate and 6.7% loss rate, 39.7% apparent screening efficiency, and 93.6% global process efficiency. Beyond 6° of inclination, an increase in the angle of inclination until 12° of the rotating drum induces a decrease of the screening efficiency, with slight increases in the contamination rate and loss rate of the collected product targets and slight decreases in the apparent screening efficiency and global process efficiency. The lowest tested value of the inclination angle (4.5°) decreases the screening efficiency of the rotating screen drum, with high values of the contamination rate (17.1%) and loss rate (9.4%) of the collected product targets, and lower values of the apparent screening efficiency (88.7%) and global process efficiency (36.3%).

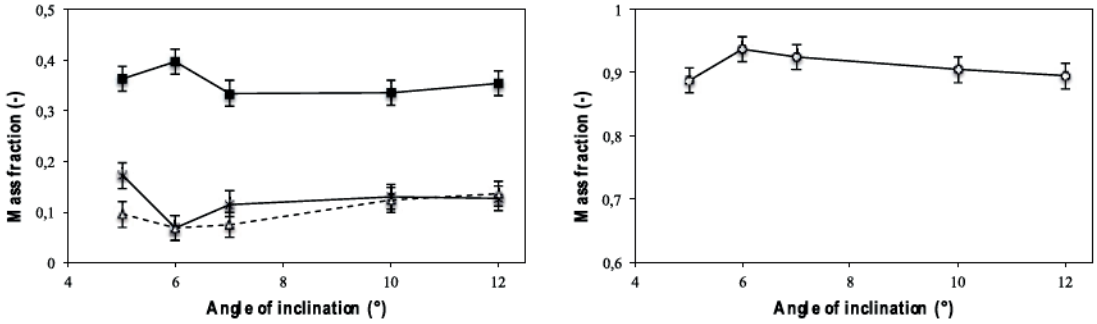


Figure IV.2.1.3. Impact of the angle of inclination of the rotating screen drum on the screening efficiency parameters: apparent screening efficiency ($x_{11}+x_{22}+x_{33}$; O), global process efficiency (x_{22}; ■), contamination rate of the collected product targets (y_{21}; ×), and loss rate of the collected product targets (z_{32}; Δ)

We evaluated the impact of the angle of inclination on the physicochemical characteristics of the agglomerates that are collected in the drawer 2 (Fig. IV.2.1.4). Angles of inclination between 6 and 12° of the rotating drum does not affect the water content, the compactness and the circularity of the agglomerates. However, the lowest value of the inclination angle (4.5°) seems to generate a specific behaviour of the rotating screen drum, with slightly different measured values of water contents and compactness of the rolled agglomerated.

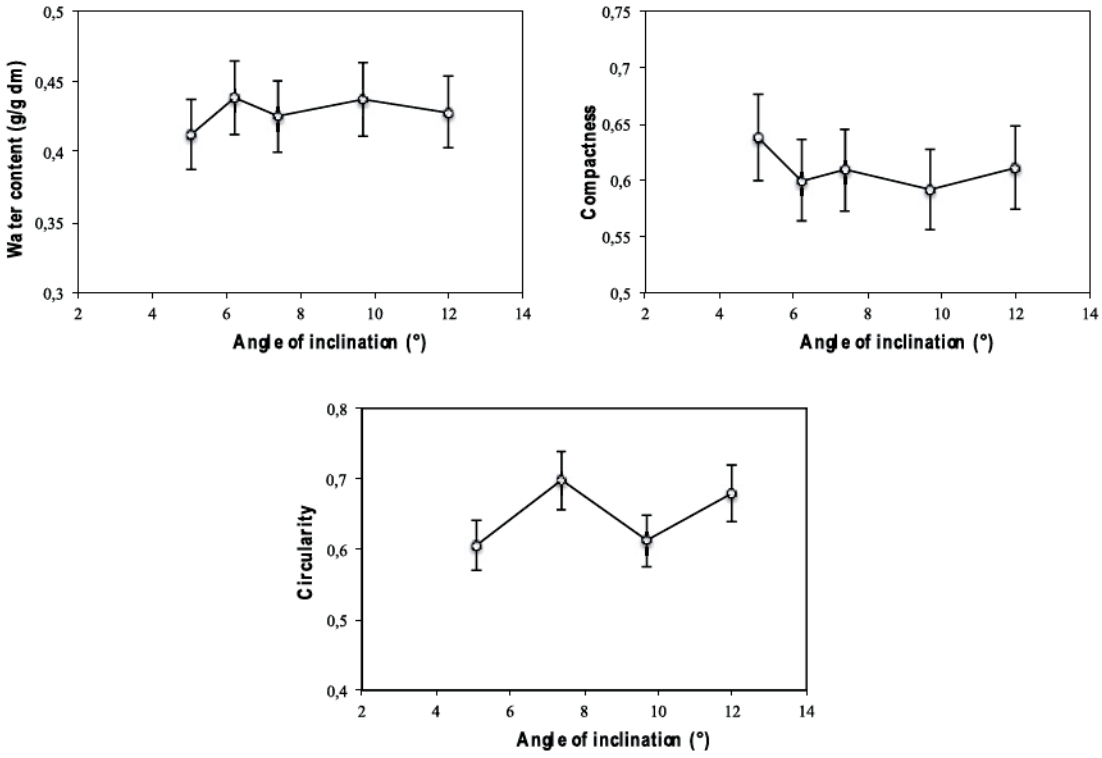


Figure IV.2.1.4. Impact of the angle of inclination of the rotating screen drum on the physicochemical characteristics (water content, compactness, and circularity) of the rolled agglomerated collected in the drawer 2

Influence of the feed rate

An increase of the feed rate (from 7 to 25 g/sec) inside the rotating drum only induces slight changes of the screening efficiency parameters (Fig. IV.2.1.5). An increase of the feed rate (from 7 to 17 g/sec) induces a decrease of the screening efficiency, with slight decreases of the apparent screening efficiency and global process efficiency and slight increases of the contamination rate and loss rate of the collected product targets. We do not observe significant changes of the screening efficiency parameters above a feed rate of 17 g/sec.

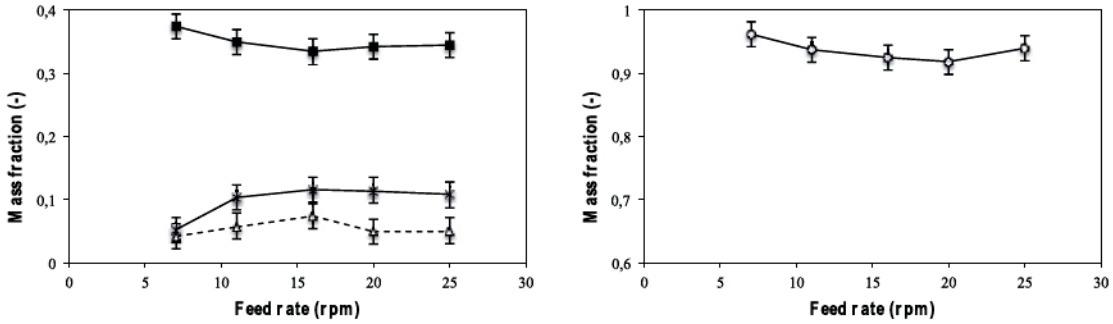


Figure IV.2.1.5. Impact of the feed rate of the rotating screen drum on the screening efficiency parameters: apparent screening efficiency ($x_{11}+x_{22}+x_{33}$; O), global process efficiency (x_{22}; ■), contamination rate of the collected product targets (y_{21}; ×), and loss rate of the collected product targets (z_{32}; Δ)

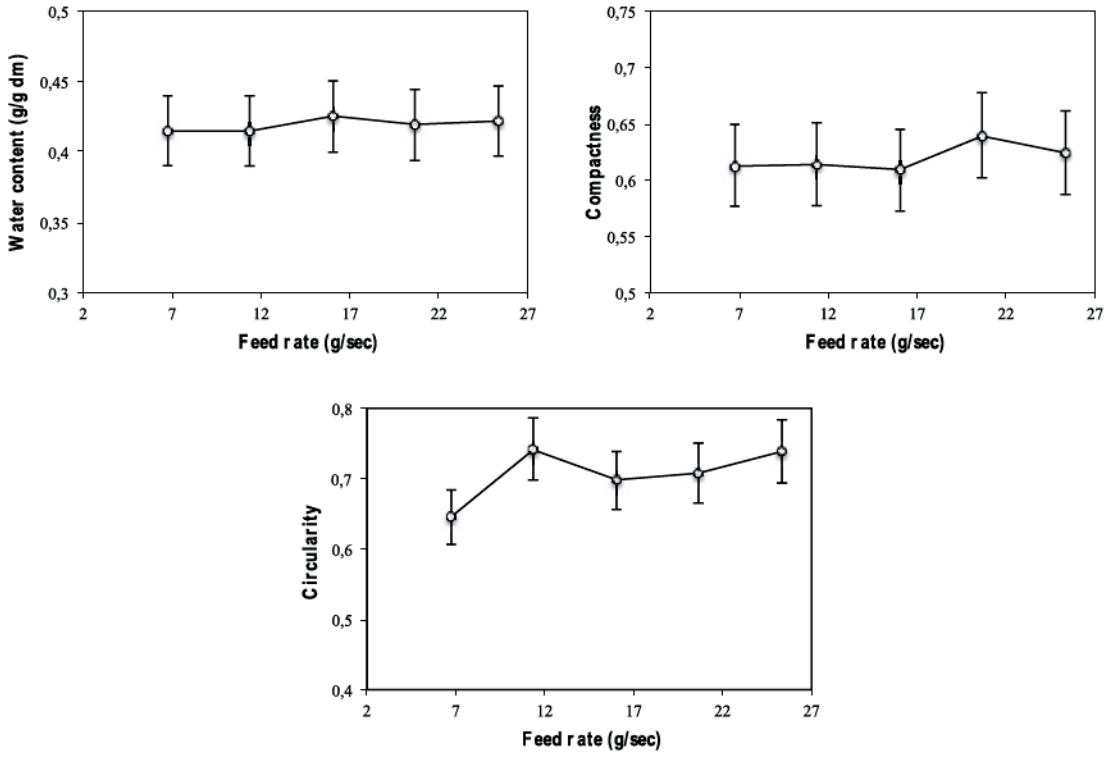


Figure IV.2.1.6. Impact of the feed rate of the rotating screen drum on the physicochemical characteristics (water content, compactness, and circularity) of the rolled agglomerated collected in the drawer 2

We evaluated the impact of the feed rate on the main characteristics of the collected agglomerates (Fig. IV.2.1.6). An increase in the feed rate does no impact the water content and the compactness of the collected product targets, but slightly increases the circularity (from 0.65 to 0.74) of the collected product targets.

Effect of the rotational speed

An increase of the rotational speed of the drum (from 2 to 27 rpm) induces changes of the screening efficiency parameters (Fig. IV.2.1.7).

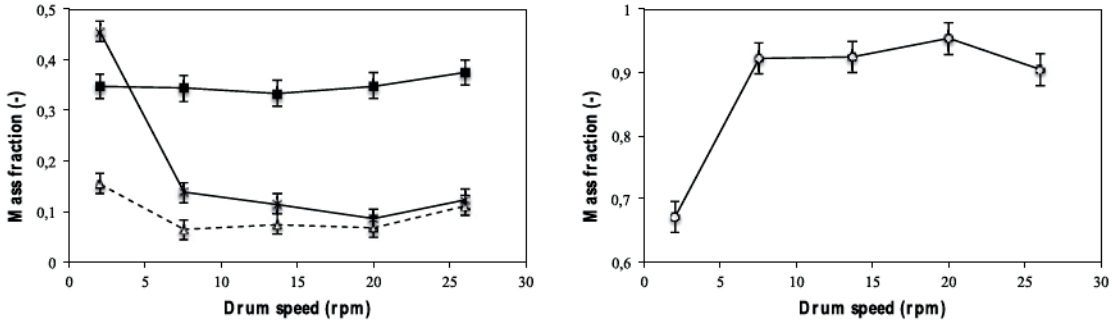


Figure IV.2.1.7. Impact of the drum rotational speed on the screening efficiency parameters: apparent screening efficiency ($x_{11}+x_{22}+x_{33}$; O), global process efficiency (x_{22}; ■), contamination rate of the collected product targets (y_{21}; ×), and loss rate of the collected product targets (z_{32}; Δ)

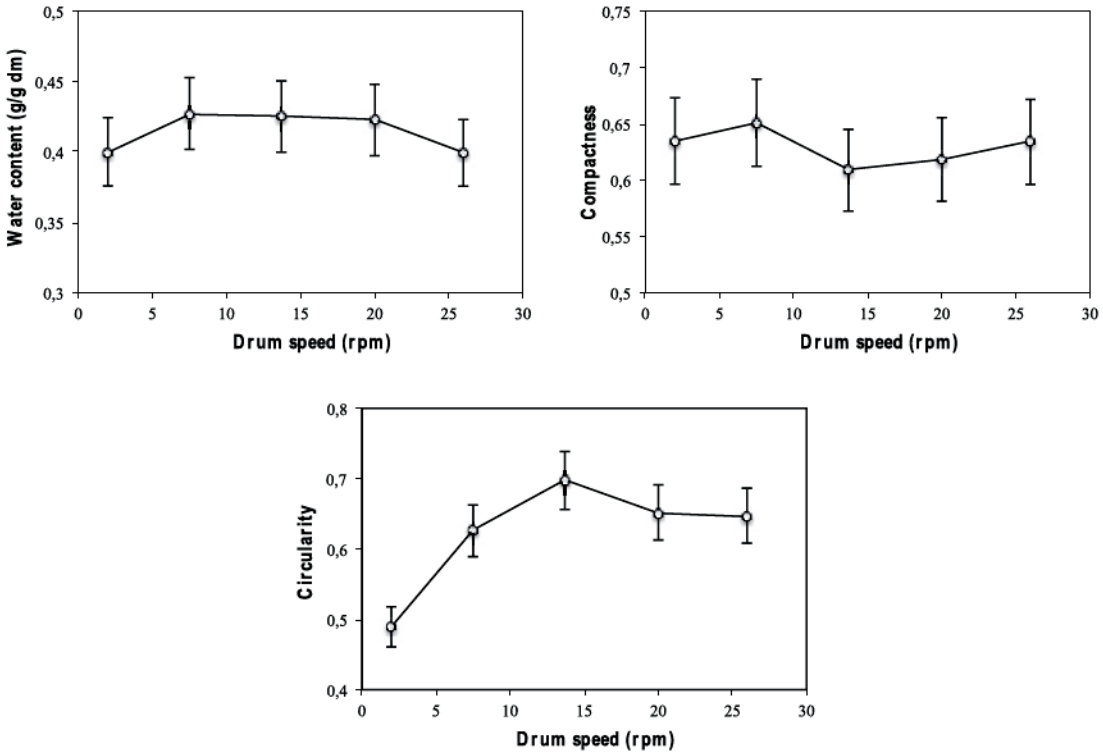


Figure IV.2.1.8. Impact of the drum rotational speed, on the physicochemical characteristics (water content, compactness, and circularity) of the rolled agglomerated collected in the drawer 2

The lowest value of the rotational speed (2 rpm) generates a specific behaviour of the rotating screen drum, with high values of contamination rate and loss rate of the collected product targets, and low value of the apparent screening efficiency. Above a value of 7 rpm, we observe a slightly effect of the rotational speed on the screening efficiency parameters. An increase of the rotational speed induces a decrease of the screening efficiency, with slight decreases in the apparent screening efficiency and global process efficiency and slight increases of the contamination rate and loss rate of the collected product targets. The transport mechanisms and the sieving efficiency are then not affected by the rotational speed.

We evaluated the impact of the rotational speed rate on the main characteristics of the rolled agglomerates (Fig. IV.2.1.8). An increase in the rotational speed does not significantly affect the water content and the compactness of the collected product targets. We only observed that a slight increase the circularity (from 0.50 to 0.65).

IV.2.1.4. Discussion

The present investigation allows describing the functional roles of the rotating screen drum during processing of wet agglomerates of durum wheat semolina. We try to evaluate the different mechanisms: screening, secondary agglomeration, erosion/breakage, and rolling, that could be promoted as a function of the process conditions. However, it remains difficult to evaluate the specific

contribution of each mechanism, by only using the measured values of weights and the calculated mass fractions and the hydrotextural state of the three classes of agglomerates.

IV.2.1.4.1. Apparent screening efficiency

The main function of the rotating screen drum is to screen a mixture of granular objects. The present results demonstrate high apparent screening efficiency of the rotating screen drum when used with wet agglomerates of durum wheat (Table IV.2.1.3), ranging between 89 and 96% depending on the process conditions. These high values indicate the high performance of the rotating screen drum in regards with its primary function of size separation. The presence of low amounts of under sized agglomerates in the second and third drawer can be associated to screening deficiency, as these agglomerates could flow over the two first screens, until the next ones. The transport phenomenon is maybe too fast to allow the sieving function to fully occur. Erosion or breakage mechanisms could also partly explain the gap with full screening efficiency.

The apparent screening efficiency of the rotating drum is affected by the process parameters (Fig. IV.2.1.3, IV.2.1.5 and IV.2.1.7). An increase of the angle of inclination and of the rotational speed slightly reduces the apparent screening efficiency due to a faster flow of the agglomerates inside the drum, inducing lower residence times on each screen for the sieving function. At too low rotational speed (2 rpm), the transport mechanisms and the sieving efficiency are also affected. An increase of the feed rates (until 17 g/sec) slightly reduces the screening efficiency due to a more important load of agglomerates inside the drum, which reduces the frequency of the contacts of agglomerates on the screens, and thus reduces their opportunity to be sieved.

These high performances could be discussed in regard to the relatively low value of the global process efficiency, with range between 32 and 37% as a function of the process conditions (Fig. IV.2.1.3, IV.2.1.5 and IV.2.1.7). These values are associated to the global process efficiency of both the wet agglomeration operation and the rolling operation. Almost similar values are found on the process industrial lines (Abecassis et al., 2012). The first wetting and agglomeration operations are known to be at the origin of the low efficiency of the couscous grains production at industrial scale, which is observed after the rotating drum.

IV.2.1.4.2. Impact on structuring mechanisms

The processing could generate specific mechanisms of secondary agglomeration and impact the mass fractions of the different collected fractions. The possible occurrence of secondary agglomeration was estimated by the changes of the values of the mass fractions of the collected small agglomerates, compared to the native mass fractions (Table IV.2.1.3) and also the hydrotextural analysis. The present study demonstrates very slight mechanisms of secondary agglomeration, with low decreases (between -13% and +2%) of the mass fractions of the small agglomerates, whatever the process conditions (data not shown). The agglomerates properties, the drum characteristics, and the process parameters do not allow generating enough efficient interactions between the soft agglomerates, to promote growing mechanisms by incorporating the small particles in larger agglomerates. Moreover, if this phenomenon

occurs, the resulting agglomerate will exhibit a mean hydrotextural state, between higher compactness/lower water content of the small particles and lower compactness/higher water content of the larger.

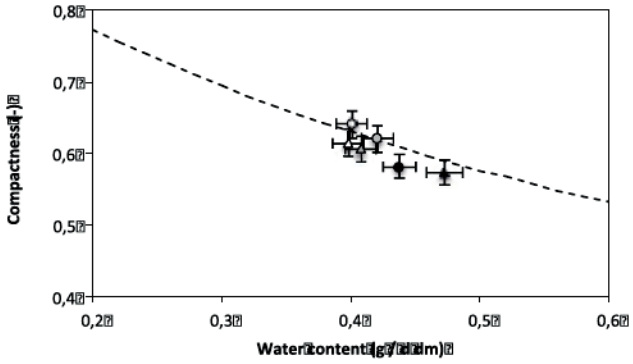


Figure IV.2.1.9. Hydro-textural description (compactness vs. measured water content) of the small (○△), medium (● ▲), and large (●▲) wet agglomerates, before (△▲▲) and after (○●●) processing inside the rotating screen drum - the saturation curve is dotted points

The impact of processing inside the rotating screen drum on the compactness and water content of the wet agglomerates can be discussed by using the hydro-textural diagram (Ruiz et al., 2011) (Fig. IV.2.1.9). This diagram is limited in its upper part by the saturation curve, which represents the maximum water content that a medium of a given constant compactness can contain. Before or after processing inside the drum, the increase in agglomerates size is concomitant with an increase in their water content and a decrease of their compactness. These relationships are similar to those obtained thanks to a classical wet agglomeration process (Rondet et al., 2010). Nevertheless, the agglomerates generated in this study and whatever the process parameters are found to be almost close to a water saturated state (Fig. IV.2.1.9). The rotating screen drum process does not significantly impact the hydro-textural parameters of the wet agglomerates sign of a almost no secondary agglomeration phenomena.

The powder flow inside the rotating drum could also induce some breakage and/or erosion mechanisms of the soft wet agglomerates. The occurrence of breakage and/or erosion was estimated by the changes of the values of the mass fractions of the collected large agglomerates, compared to the native mass fractions (Table IV.2.1.3). The present study demonstrates some mechanisms of erosion or breakage during processing, with decreases of the mass fractions of large agglomerates, which ranges between (between -4% and -40%) as a function of the process conditions (data not shown). The wet agglomerates of durum wheat do not resist to the mechanical stresses during processing inside the rotating screen drum.

The rolling effects are associated with possible changes in the structure and shape of the wet agglomerates of durum wheat. The presented results do not demonstrated a significant effect of the

rotating screen drum on the compactness and water content of the wet agglomerates of durum wheat. The mechanical stresses distribution is not enough high during the powder flow inside the drum to promote shear stresses higher than their plastic yield on the agglomerates and also reduce their internal porosity by compression. On the other hand, a slight increase in the circularity values of the wet agglomerates (Table IV.2.1.3) is observed after processing inside the drum. This increase in circularity could be associated to the loss of surface irregularities on the agglomerates, according to the erosion mechanisms. The circularity increase is favoured by increasing the feed rate (Fig. IV.2.1.6) or the drum speed (Fig. IV.2.1.8). The rolling effect of the rotating drum is classically reported under industrial conditions and greatly contributes to the final sensory attributes of the couscous grains (Abecassis et al., 2012).

IV.2.1.4.3. Dimensional analysis

From the experimental study, we aimed in developing two empirical correlations gathering in two unique process relationships all the experimental circularity (CIR) and apparent screening efficiency ($ASE = x_{11}+x_{22}+x_{33}$) obtained whatever the operating conditions used (drum speed, angle of inclination and feed rate) by using the dimensional analysis. This approach makes it possible to reduce the number of variables describing a physical problem using a set of dimensionless ratios. The number of ratios originally used to describe the problem can be obtained from the Buckingham theorem.

Table IV.2.1.6.

Definition of the starting variables and fundamental quantities used for the dimensional analysis

Dimensional variables	Symbol	Fundamental quantities		
		M	L	T
Length of the screen	l	0	1	0
Opening mesh size	L_T	0	1	0
Diameter of the cylinder	D	0	1	0
Acceleration of gravity	g	0	1	-2
Median diameter of agglomerates	d_{50}	0	1	0
Density of agglomerates	ρ	1	-3	0
Drum speed	N	0	0	-1
Angle of inclination	α	0	0	0
Feed rate	D_b	1	0	-1
Circularity	CIR	0	0	0
Apparent screening efficiency	ASE	0	0	0

The first step of dimensional analysis consists in establishing the list of relevant dimensional parameters. In the case of rotating drum, the relevant dimensional parameters and their fundamental quantities are listed in Table IV.2.1.6. The Buckingham theorem states that any physically meaningful equation involving n variables expressible in terms of k independent fundamental quantities can be rearranged into an equivalent equation involving a set of p=n−k dimensionless variables, which are derived as products of powers of the original variables. In our study, we have listed 9 variables (n) that can be expressed in terms of 3 fundamental quantities (k). Following the procedure described in Dimensional analysis for modeling processes in food processes by Delaplace et *al.* (2014), the dimensional matrix (not shown) can be obtained and permits to express the circularity and the screening efficiency according to 'p=6' dimensionless variables.

The two physical phenomena refer to the equation: CIR = f(D, l, L_T, g, d_{50}, ρ, N, α, D_b) and ASE = f(D, l, L_T, g, d_{50}, ρ, N, α, D_b). Applying Buckingham π -theorem, six dimensionless π -terms were obtained:

$$\pi_1 = \frac{D}{L_T} \quad \text{(Eq. IV.2.1.6.)}$$

$$\pi_2 = \frac{l}{L_T} \quad \text{(Eq. IV.2.1.7.)}$$

$$\pi_3 = \frac{d_{50}}{L_T} \quad \text{(Eq. IV.2.1.8.)}$$

$$\pi_4 = \frac{N}{D^{-0.5}.g^{-0.5}} \quad \text{(Eq. IV.2.1.9.)}$$

$$\pi_5 = \alpha \quad \text{(Eq. IV.2.1.10.)}$$

$$\pi_6 = \frac{Db}{\rho p.D^{2.5}.g^{0.5}} \quad \text{(Eq. IV.2.1.11.)}$$

The independent influences of the variation of each adimensional number on the value of CIR and ASE were studied. This analysis made it possible to observe that values can be mathematically described by:

$$CIR\ or\ ASE = f(\pi_4 = \frac{N}{D^{-0.5}.g^{0.5}}\ ;\ \pi_5 = \alpha\ ;\ \pi_6 = \frac{Db}{\rho p.D^{2.5}.g^{0.5}}) \quad \text{(Eq. IV.2.1.12.)}$$

The levels of each independent parameter considered for the experiment are given below:

$\pi_4 = 0.008, 0.028, 0.052, 0.075, 0.098$

$\pi_5 = 0.088, 0.129, 0.169, 0.209$

$\pi_6 = 0.000009, 0.000015, 0.000027, 0.000034$

Figure IV.2.1.10ab depict the adjustment between the values of the dimensionless circularity and apparent screening efficiency described by models and those experimentally obtained, whatever the process conditions.

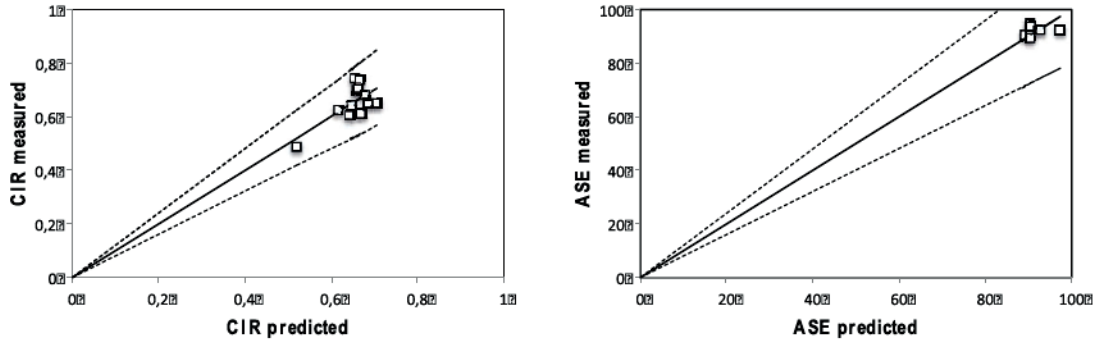


Figure IV.2.1.10. Comparison of measured circularity and apparent screening efficiency with predicted values from Eq. (IV.2.1.13) and Eq. (IV.2.1.14)

We found that the two proposed models (Eq. IV.2.1.13-14) describe rather well the evolution of the circularity and the apparent screening efficiency. Indeed, almost all experimental measurements are contained in a range corresponding to ±20% of the value predicted by the model.

$$CIR = 0.073.Ln(\pi_4) + 0.567.{\pi_5}^{0.081} + 0.621.{\pi_6}^{0.043} + 0.06 \qquad \text{(Eq. IV.2.1.13.)}$$

$$\text{ASE} = 90{,}0.\,\text{e}^{(-0{,}05.\,\frac{\ln\left(\frac{\pi 4}{0{,}06}\right)}{2{,}59})^2} \qquad \text{(Eq. IV.2.1.14.)}$$

The values taken by Eq. IV.2.1.13-14 parameters make it possible to highlight the influence of process conditions. The circularity and the apparent screening efficiency are mainly affected by the drum speed and the angle of inclination. According to this mechanism, it has been possible to develop two original and descriptive models based on an adimensional approach. Unique equations were proposed whatever the process condition and are associated with sets of coefficients. In order to improve the physical understanding of the underlying phenomenon, an experimental approach specially designed to allow the establishment of regime maps through a physical approach and the identification of dimensionless numbers *e.g.* a ratio between a transport speed and a sieving speed could be further carried out. Nevertheless we can notice that it could be difficult to found explicit experimental conditions which lead to decrease the screening efficiency (less than 80%).

IV.2.1.5. Conclusion

A matrix analysis allows describing the population balance of the mass sieved by a rotating screen drum and also taking into account the functional roles of operation during processing of wet agglomerates of durum wheat semolina. Results highlight that high apparent screening efficiency of the rotating screen drum ranging between 89 and 96% depending on the process conditions. These high values indicate the high performance of the rotating screen drum in regards with its primary function of size separation.

The rotating screen drum process does not significantly affect the hydro-textural parameters of the wet agglomerates as no secondary agglomeration phenomena significantly occur. A dimensional analysis is led to purpose relationships based on dimensional analysis, between the circularity on the one hand and the screening efficiency on the other hand and the process parameters. Nevertheless, in order to improve the physical understanding of the underlying phenomenon, an experimental approach with more experimental points could be further carried out.

Acknowledgments *- The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR ALID 2013) for its financial support through the program "Dur Dur".*

IV.3. Cooking and drying stage of the wet agglomerates

La cuisson et le séchage sont les opérations unitaires importantes lors de la fabrication de grains de couscous. Elles participent au renforcement de la structure du grain et rendent l'amidon digestible. Elles permettent au grain de couscous d'être consommé directement après une simple réhydratation chaude ou froide. Ces opérations unitaires ont fait l'objet de très peu d'études dans la littérature. La bibliographie fait état principalement des recherches de Debbouz et Donnelly (1996) pour la cuisson des agglomérats humides et d'une partie du travail de thèse de Hafsa (2014) pour le séchage à haute température de grains de couscous cuits. Nous avons travaillé avec une approche expérimentale sur ces deux traitements hydrothermiques. Le travail a pour objectifs *(i)* de comprendre les mécanismes de transferts d'eau et physico-chimiques impliqués lors de la cuisson et du séchage, (*ii)* d'étudier l'impact des facteurs (temps, température) des deux opérations sur ces mécanismes et *(iii)* d'analyser la contribution de l'opération unitaire de cuisson sur la structuration des grains de couscous finaux. Le chapitre est organisé en deux paragraphes.

Le **paragraphe IV.3.1** reprend le texte en anglais de la publication : *Bellocq B., Ruiz T., Cuq B. 2017. Contribution of the cooking and drying stages on the structure of the couscous grains of durum wheat semolina. Jounal of Cereal Chemistry (submitted for publication).* Dans ce paragraphe, nous étudions les mécanismes de transfert d'eau, les réactions de gélatinisation de l'amidon et les mécanismes de structuration de la matière en fonction du temps de cuisson à différentes teneurs en eau initiales et en fonction du temps de séchage à différentes températures de séchage.

Le **paragraphe IV.3.2** présente les résultats relatifs au séchage de grains de couscous n'ayant pas subi de traitement de cuisson préalable. Il s'intitule *"Innovative processing: the drying of uncooked couscous grains of durum wheat semolina"*. Il est rédigé en anglais, dans le format d'une publication en cours de rédaction.

IV.3.1. Contribution of the cooking and drying stages on the structure of the couscous grains of durum wheat semolina

IV.3.1.1. Introduction

Couscous grains are a food product that can be consumed in different ways such as "taboulé salad" or traditional "couscous meal". The *Codex alimentarius* (Codex Standard 202-1995) defined "couscous" as the product prepared from coarse and fine durum wheat semolina (*Triticum durum*) that are agglomerated by adding potable water and then undergo physical and thermal treatments. The simplicity of preparing the couscous, its high nutritional value and its cheapness are the main reasons behind its large popularity.

Production of the couscous grains follows four successive unit operations: wet agglomeration, rolling-sieving, steam cooking, and drying (Abecassis et al., 2012; Bellocq et al., 2017; Ruiz et al., 2014). Durum wheat semolina and water are first mixed together to promote the wet agglomeration of the native semolina particles and form the wet agglomerates. The wet agglomerates are then rolled in a rotating screen drum to improve the structure of the grains and to select by size classification the fraction with diameter ranging between 1 and 2 mm. The rolled agglomerates are then cooked using steam at 100°C to strengthen the structure and finally dried to reduce the water content and guaranty stability over the storage.

As a food product, the steam cooking is a critical stage during couscous grains processing, as it directly contributes to the digestibility and nutritional values to the final product (Abecassis et al., 2012). The steam cooking stage also significantly contributes to strengthen the cohesion of the couscous grains, by promoting biochemical links between the wheat components. The cooking stage induces a partial melting and merging of the semolina particles and transforms the wet agglomerates into more stable grains, in the sense where they are more plastic and less fragile. Several physicochemical changes are promoted by the steam cooking stage: the gelatinization of the starch granules, the formation of amylose-lipid complexes, and the insolubilisation of gluten proteins. These mechanisms allow generating physicochemical links between the semolina particles inside the grains. The liquid capillary bonds involved in the agglomeration stage to link the semolina particles are strengthened by these chemical changes. After the cooking stage, the extent of gelatinization of the starch granules measured by differential scanning calorimetry has been found between 50 and 60% (Debbouz et Donnelly, 1996). The intensity of the gelatinisation mechanisms is considered as a major determinant of the couscous use properties (Abecassis et al., 2012). After the gelatinization of the starch granules, the amylose chains are available and could take part to specific reactions with the lipid chains under high temperatures. The formation of the amylose-lipid complexes could contribute to strengthen the structure, to limit the stickiness after rehydration, and to reduce the retrogradation mechanisms during the storage. The insolubilisation of gluten proteins can be associated to crosslinking reactions with the formation of covalent bonds. Even if the proteins are not structured as a continuous network inside the couscous grains (in contrast with the structure of the durum wheat pasta), the crosslinking reactions could contribute to decrease the stickiness of the couscous grains after hydration (Abecassis et al.,

2012). At the industrial scale, the steam cooking stage is conducted in continuous oven, at 100°C using steam at atmospheric pressure. The wet grains are layered on a perforated metallic surface. The thickness of the grain layer (about 20 cm) requires about 15 min for the duration of the cooking stage to ensure the complete cooking of the grains. A slight increase of 5 to 10% of the water content of the grains is observed during the cooking stage. It is due to the condensation and the capillary absorption of the water molecules on the grains surface.

During the couscous grain processing, the final drying stage is a critical step to agree with the legislation and to ensure the microbiological and physicochemical stability by reducing the water activity. The principle of the drying of the couscous grains is an extraction of the water by phase change and entrainment in a convective stream of air, at controlled speed, temperature and relative humidity. The drying stage has to reduce the water content of the couscous grains below 13.5%. The drying stage could contribute to the texturing mechanisms of the couscous grains through the possible compaction of the structure. The shrinkage phenomenon can be modulated by the plasticity of the granular matrix and the intra-granular arrangement of the grains (Ruiz et al., 2014). At the industrial scale, the drying stage is conducted in continuous drier at high temperature (90-120°C), with a short residence time close to 15 to 30 minutes.

Although some scientific works have investigated the agglomeration stage (Barkouti et al., 2014; Hafsa et al., 2015; Saad et al., 2011) and the rolling stage (Bellocq et al., 2017) during the processing of the couscous grains, the steam cooking stage and the drying stage have not yet really been investigated (Guezlane et al., 1998). The objective of the present work is to experimentally investigate the physicochemical mechanisms at different scales (molecular and grain scales) that are promoted by the steam cooking stage and by the drying stage, as a function of the process conditions. The analyses of the kinetics of the changes of the physicochemical characteristics of the grains during the cooking stage and the drying stage will contribute to built relationships between the process parameters, physicochemical mechanisms and properties of the couscous grains of durum wheat.

IV.3.1.2. Material and methods

IV.3.1.2.1. Raw materials

Industrial quality semolina (Panzani group, France) was used as standard durum wheat semolina. Semolina was stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out. Semolina was first characterized using standardized methods from triplicates. The water content of semolina (14.8 (±0.08) g water/100 g dry semolina) was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying at 105°C for 24 h. The characteristics values (d_{10}, d_{50} and d_{90}) of particle diameter of semolina were measured by a laser particle size analyser (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The median value of particle diameter of semolina (d_{50}) was of 287 (±2) µm. The diameter span was $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$ = 1.51. The semolina true density (1.415 (±0.003) $g.cm^{-3}$) was measured by using an azote pycnometer. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content (12.44

(±0.04) g proteins/100 g dry semolina) was calculated according to TN-5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970).

IV.3.1.2.2. Agglomeration process

The wet agglomeration process was conducted by using a horizontal low shear mixer. The mixing tank (30 cm length, 11.5 cm width, and 16.5 cm height) was composed of a horizontal shaft axe, positioned at 5.5 cm from the bottom of the tank, with 14 metal rotating paddle blades (4 cm length, 2 cm width, and 7.5 cm gap between 2 blades). A sample of 780 g of semolina was first introduced in the mixer tank and mixed for 2 min at constant mixer arm speed (100 rpm) to equilibrate the temperature at 20°C (±2°C). Water was then directly sprayed over the semolina under mixing at almost constant flow rate (2 $g.s^{-1}$), for a period of 65 or 110 sec to reach the final water content (32.0 or 48.2 g water/100 g dry matter, respectively) by using a single-fluid atomizing system (Spraying Systems Co., France, ref. TPU 6501). After the water addition step, the mixture was stirred for 10 min to homogenize and promote the agglomeration mechanisms. The wet agglomerates were then collected using a plastic bowl and directly sieved over a column of 2 metallic sieves of decreasing mesh (2.0 and 0.9 mm). The sieve column was manually shaken for 1 min at ambient temperature, to limit the possible breakage of the wet agglomerates. The wet agglomerates were collected between the 2 mm and the 0.9 mm sieves.

IV.3.1.2.3. Cooking process

Wet agglomerates were spread as a thick (3 mm) layer over a stainless-steel plate and introduced inside the steam cooker (Ravant Chaudronnerie, France) with 20 litres chamber. They are then steamed during different residence times (1, 3, 5, or 10 min) at 100°C under saturated steam flow (20 $kg.h^{-1}$) at atmospheric pressure. The cooked agglomerates were immediately collected after the cooking stage.

IV.3.1.2.4. Drying process

The cooked agglomerates were then spread as thin layer (about 5 mm that is approximately 5 agglomerate diameters), over seven stainless-steel grids and introduced inside the drying chamber of a pilot scale dryer (Afrem, Lyon, France). The agglomerates were dried under different conditions of temperature (50, 70, or 90°C), a relative humidity of 50% and for different residence times (1, 3, 5, 7, 10, 15, or 20 min). The dried couscous grains were collected immediately after the drying stage and stored inside hermetic plastic cups until characterization.

IV.3.1.2.5. Agglomerates characterization

Water content - The water content of agglomerates was determined on 3-5 g samples, by a drying method in an oven (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h (AACC Method 44-15A). The water content (w) of agglomerates (dry basis) was calculated by using: $w = m_w/m_s$, where w is the water content of agglomerates (g / g dry matter), m_w is the mass of water (g) and m_s is the mass of dry matter (g) in the sample. Mean values were determined from triplicate.

Extent of starch gelatinization - Modulated differential scanning calorimetry (DSC Q200, TA Instruments, New Castle, DE, USA) calibrated with indium, was used to determine the extent of starch

gelatinization of couscous grains, compared to the native durum wheat semolina which is taken as reference. About 5 mg of sample were placed in a DSC aluminium pan and 12 µL of water were added with a micropipette. The pan was then sealed, reweighed and allowed to stand for 1 h at room temperature. Analyses were performed from 30°C to 110°C at a heating rate of 10°C.min^{-1} using an empty pan as a reference. For each endotherm, the onset (To), peak (Tp) and conclusion (Tc) temperatures and the gelatinization enthalpy (ΔH) were computed by using the TA Instruments analysis software. Experiments were carried out in triplicate. The starch gelatinization degree was determined by comparing gelatinization enthalpy (ΔH) of the sample, with the gelatinization enthalpy ΔHR of the native semolina. The degree of starch gelatinization (%) was calculated using: $\left(1 - \frac{\Delta H}{\Delta H semolina}\right) \times 100$. Mean values were determined from triplicate.

Compactness - Samples of agglomerates (about 1 g) were used to determine the compactness, *i.e.* the solid volume fraction: $\phi = \rho_s / \rho_s^*$. The solid apparent density ρ_s of the wet agglomerates was calculated from the solid apparent density ρ (measured using a hydrostatic balance with paraffin oil): $\rho_s = \rho/(1+w)$. The solid true density ρ_s^* was measured by using a nitrogen pycnometer (Ultrapyc 1200e, Quatachrom) after drying the agglomerates in an oven at 105°C for 24 h. Mean values were determined from 2 measurements. We calculated the volumetric deformation: $\varepsilon = |1 - \phi/\phi_0|$, with ϕ_0 and ϕ respectively the initial and final compactness of the grains.

Agglomerates strength - The mechanical strength of the agglomerates was determined after the cooking stage and after the drying stage. A texture analyser (TA-HD Plus, Stable Micro Systems, UK) was used to measure the agglomerate strength, which is the force needed to compress one agglomerate at 50% of its initial height. A 30 kg load cell was used with a compressive metallic cylindrical probe (35 mm diameter) operating at 0.1 mm.s^{-1}. Texture experiments were conducted by characterizing the agglomerates one by one. It was thus not possible to characterize a large number of agglomerates and only restricted number of agglomerates (about 5) having some homogeneity in their size was tested, to be statistically representative of the sample. Mean values were determined from 5 measurements.

Morphometric parameters - The grains were mounted on glass slides. Images were taken by a DS-Ri1 camera (color mode RGB, 16 bits per channel, 1280 x 1024 pixels) mounted on an AZ100 macroscope (Nikon, JP) (magnifications from x1 to x40) in light transmission mode. For each slide position, series of 10-15 images with different focal planes were taken in order to compose an extended focus image (image composed of the sharpest pixels between the Z-series). In addition, mosaic images were assembled by reconstructing 4 x 4 extended focus images using the imaging software NIS-Elements (Nikon, JP) operating the AZ100 system.

Model fitting - Apparent first order kinetics were experimentally observed to describe the changes of the physicochemical characteristics of the grains as a function of the time cooking or drying. We used a first order equation (Eq. IV.3.1.1) to describe the process-time dependence of experimental values. The Chapman model has been used by Bayram et al. (2005) to describe the gelatinization mechanisms

of durum wheat bulgur as a function of the cooking time. The function is able describing apparent exponential curves converging to a limit value.

$$y = y_0 + a(1 - e^{-bx}) \quad \text{(Eq. IV.3.1.1.)}$$

Where a and b are the model coefficients related to the final plateau value, and the rate of the changes, respectively. These coefficients were used to calculate the final plateau value (y0+a) and the time (1/b) in minute, which corresponds to a process characteristic time. The a and b coefficients were determined using the Excel 2011 solver (Microsoft, Redmond, USA) and the XLSTAT add-on (Addinsoft, Paris, France). Statistical analysis was carried out with XLSTAT at 95% confidence level in order to check the relevance of model coefficients by Student tests and p-value. The coefficient of determination R2 was calculated to gauge the goodness of fit.

The statistical significance of results was assessed using single factor analysis of variance (ANOVA). Multiple comparisons were performed by calculating the least significant difference using Microsoft Excel 2010, at a 5% significance level.

IV.3.1.3. Results

IV.3.1.3.1. Impact of the cooking stage on the characteristics of the grains

The present study investigated the physicochemical mechanisms promoted by the steam cooking stage, by first processing the wet grains at high initial water content (0.48 g/g dry matter). Before cooking, the grains were characterized by relative low value of compactness (0.590 ±0.021) and can be described as relatively porous structures, with semolina particles still visible on their surface. The initial level of apparent starch gelatinization has been measured by DSC to 24.9% (±3.7%) before the cooking stage.

During the first minute of steam cooking, the water content of the wet grains rapidly increases (from 0.48 to 0.53 g/g dry matter) (Fig. IV.3.1.1a). The maximum value of the water content (close to 0.58 g/g dry matter) is reached after 5 minutes of cooking. On the other hand, the values of compactness decrease during the first minute of cooking to reach a constant value close to 0.544 (Fig. IV.3.1.1b). The diameter of the wet grains increases (from 1630 to 2150 µm) regularly with the cooking time due to expansion mechanisms (Fig. IV.3.1.1c). No significant changes were observed in the shape of the wet agglomerates, with constant values of circularity close to 0.540 (Fig. IV.3.1.1d). The swelling of the grains, due to the water transfer, is isotropic and leads to 8.4% of volumetric deformation. The extent of starch gelatinization increases rapidly during the cooking and reaches 100% after 3 min (Fig. IV.3.1.2). The microstructure of the wet grains is observed at different times of the cooking stage (Fig. IV.3.1.3). The native semolina particles are poorly visible at the surface of the grains and seem to be partly jammed and glued to each other.

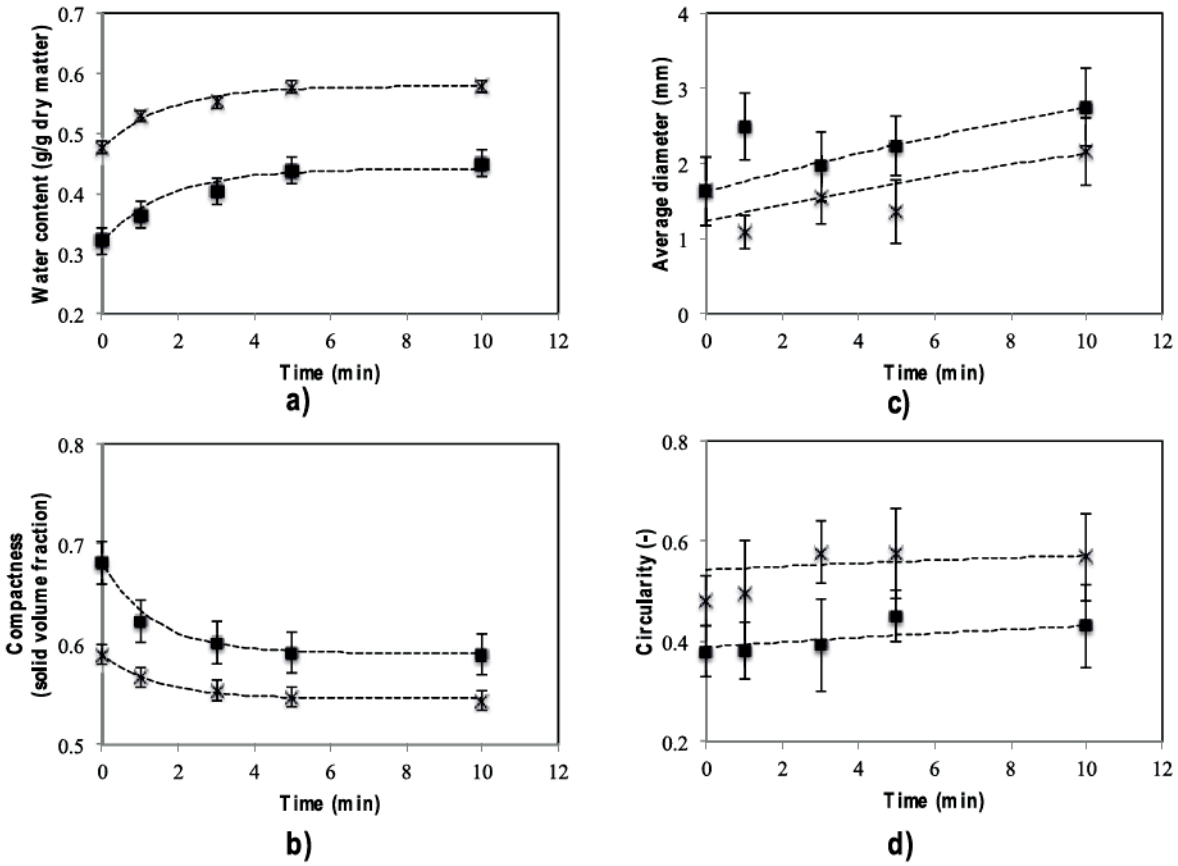


Figure IV.3.1.1. Changes in water content (a), compactness (b), average diameter (c), and circularity (d) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the cooking stage, at different initial water contents (■ 0.32 g/g dry matter and x 0.48 g/g dry matter) before cooking - the dotted line is the first order equation used to fit the experimental data

A first order equation (Eq. IV.3.1.1) was used to describe the kinetics of the physicochemical changes induced by the steam cooking stage (Fig. IV.3.1.1-2). The model is well adapted (with $R2 > 0.979$) to describe the cooking stage (Table IV.3.1.1), except for the changes of the values of diameter (with $R2 = 0.843$) and circularity (with $R2 = 0.589$). Almost similar calculated values of the characteristic times (1/b values) are found (between 1.42 and 1.67 min) when describing the changes in water content, compactness, and degree of starch gelatinization as a function of the cooking time. These results suggest functional links between the water absorption of the grains, the physicochemical changes of the wheat starch through gelatinization mechanisms, and their impact on the grain structure (compactness and diameter).

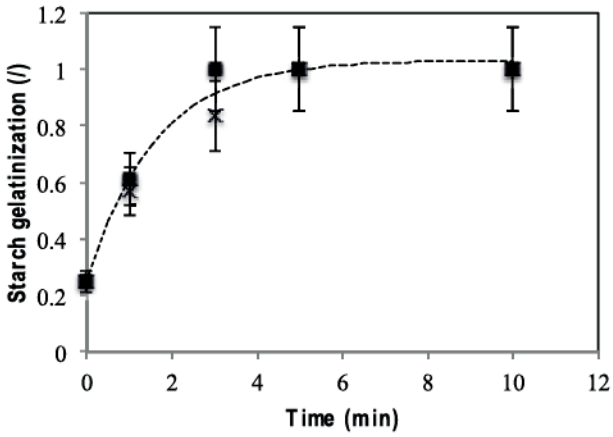


Figure IV.3.1.2. Changes in the extent of starch gelatinization of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the cooking stage, at different initial water contents (■ 0.32 g/g dry matter and x 0.48 g/g dry matter) before cooking - the dotted line is the first order equation used to fit the experimental data

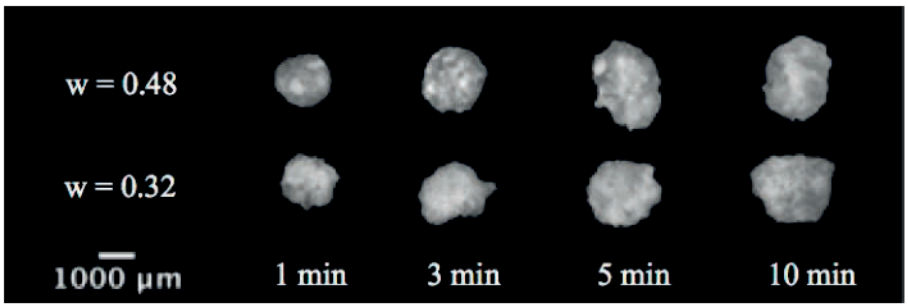


Figure IV.3.1.3. Microstructure of the wet agglomerates of durum wheat semolina as a function of the steam cooking times (1, 3, 5, or 10 minutes), at different initial water contents

Table IV.3.1.1.

Calculated values of the coefficients (a and b) and fitting quality parameters (R^2 and residual difference) of t the first order equation used to describe the changes of the physicochemical characteristics of the wet grains of durum wheat semolina, as a function of the time of the steam cooking stage at different initial water contents (0.32 and 0.48 g/g dry matter)

	Initial water content (g/g dry matter)	Coef. a	Coef. b	Plateau value (y_0+a)	Characteristic time (1/b)	R^2	Residual standard difference
Water content	0.32	0.120	0.600	0.441	1.67	0.961	0.001
	0.48	0.102	0.601	0.579	1.67	0.979	0.001
Average diameter	0.32	3.43	0.040	5.06	25.23	0.507	0.541
	0.48	2.22	0.052	3.46	19.33	0.843	0.366
Compactness	0.32	-0.090	0.750	0.59	1.33	0.985	0.001
	0.48	-0.044	0.702	0.55	1.42	0.993	0.019
Circularity	0.32	0.098	0.056	1.03	1.58	0.624	0.002
	0.48	0.068	0.056	0.611	17.82	0.589	0.007
Starch gelatinization	0.32	0.784	0.635	1.03	1.58	0.983	0.008
	0.48	0.784	0.635	1.03	1.58	0.990	0.010

IV.3.1.3.2. Influence of the initial water content of the wet grains

The impact of the initial water content of the wet grains on the physicochemical changes induced by the steam cooking stage is evaluated by comparing wet grains at different initial water contents (0.32 or 0.48 g/g dry matter). The initial values of the physicochemical characteristics of the wet grains at low water content (0.32 g/g dry matter) before the steam cooking stage are significantly different from those measured for the grains at high water content (0.48 g/g dry matter), with significant lower values of average size, compactness, and circularity (Fig. IV.3.1.1). On the other hand, no difference was observed between the values of extent of starch gelatinization, which remain low and close to 25%.

The steam cooking stage of the wet grains at low water content (0.32 g/g dry matter) seems to induce almost similar physicochemical reactions, than those previously observed when considering the grains at high water content (0.48 g/g dry matter). Almost similar shapes of the experimental curves as a function of the cooking time are observed (Fig. IV.3.1.1-2). The observed gaps between the initial measured values of water content (Fig. IV.3.1.1a), compactness (Fig. IV.3.1.1b), average size (Fig. IV.3.1.1c), and circularity (Fig. IV.3.1.1d) remain almost constant over the time of steam cooking. In addition, the curves of the extent of starch gelatinization are almost superimposed (Fig. IV.3.1.2). The initial water content of the wet grain does not influence the type and rate of the physicochemical mechanisms induced by the steam cooking stage. It only influences the final value of water content and compactness at the end of the cooking stage. No change is observed for the extent of starch gelatinization, which reaches maximum value after 5 min of cooking.

The first order equation is also well adapted ($R2 > 0.961$) to fit the kinetic of physicochemical changes during the cooking stage of the wet grains at low initial water content (Table IV.3.1.1), except for the values of circularity and diameter ($R2 < 0.624$). The calculated values of the characteristic times (1/b) of the changes in water content, compactness, and extent of starch gelatinization remain close to 1.5 min (ranging between 1.33 and 1.67 min). Almost similar characteristic times are thus found to describe the physicochemical reactions induced in the wet grains of durum wheat semolina whatever their initial water content. The initial water content controls the final values (y0+a) of water content, diameter, circularity, and compactness.

IV.3.1.3.3. Impact of the drying stage on the characteristics of the grains

Immediately after the steam cooking stage, the cooked wet grains are introduced in the drier to conduct the drying stage. The cooked grains are characterized by high water content (0.55 ±0.04 g/g of dry matter), compactness (0.497 ±0.004), and maximum extent of starch gelatinization (close to 100%).

The physicochemical mechanisms induced by the drying stage are first described when considering the drying at 50°C (Fig. IV.3.1.4). During the first minutes, rapid changes are observed concerning water content (Fig. IV.3.1.4a) and compactness (Fig. IV.3.1. 4b) that reach constant values (0.16 g/g of dry matter and 0.812, respectively) after only 10 min of drying. In addition, quasi-linear slight decrease in the values of the average size (Fig. IV.3.1.4c) and a gradual increase in the values of the

mechanical strength are measured (Fig. IV.3.1.5). The values of circularity do not seem to be affected by the drying (Fig. IV.3.1.4d). It indicates that the shrinkage is isotropic and leads to 39% of volumetric deformation.

No stationary phase at the beginning of the drying stage is observed, as the values of water content and compactness start instantly to change quickly. The mechanisms of heat exchanges inside the grains are enough quick to allow the wet grains to equilibrate rapidly with the drying temperature without stationary phase. This is partly due to the small diameter (between 1 and 2 mm) and circular shape of the wet grains, which favour the heat transfer. Heat transfers are not limiting factors. The time to reach the equilibrium temperature into the centre of the grain (less than 1 min) has been estimated using Eq. 2 in the case of heat transfer by conduction in a variable regime with a medium at uniform temperature, with Biot number < 0.1.

$$\frac{T-T_0}{T_i-T_0} = \exp(-Biot.Fourier) = \exp(-\frac{hDt}{\lambda L}) \qquad \text{(Eq. IV.3.1.2.)}$$

Where h = 101 W.m-2.K-1, is the order of magnitude of the coefficient of forced convection of the air at a low flow rate (2 m.sec-1) (Whitelaw, 1997); λ = 0.184 W.m-1.K-1, is the thermal conductivity of the durum wheat (Tavman, 1998), D = 1.4 10-4 m2.sec-1, is the thermal diffusivity of the durum wheat (Bahrani, 2013); t is the time (sec) and L is the characteristic length of the couscous grains, considered as a sphere with a rayon close to 0.75 10-3 m.

Before the drying stage, the semolina particles are no more visible at the surface of the cooked grains (Fig. IV.3.1.6). They are mostly jammed and glued to each other inside the grain structure. The drying stage induces a slight decrease in the diameter of the grains by shrinkage mechanisms (Fig IV.3.1.4b).

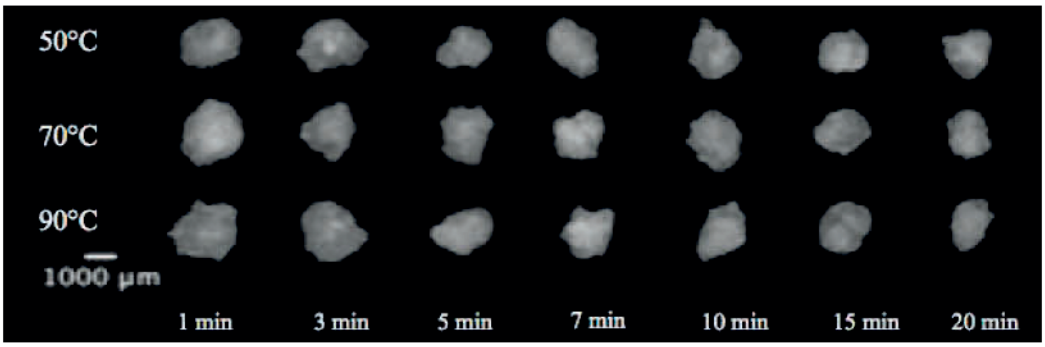


Figure IV.3.1.6. Microstructure of the wet agglomerates of durum wheat semolina as a function of the drying times (1, 3, 5, 7, 10, 15, or 20 minutes), at different drying temperatures (50, 70, or 90°C)

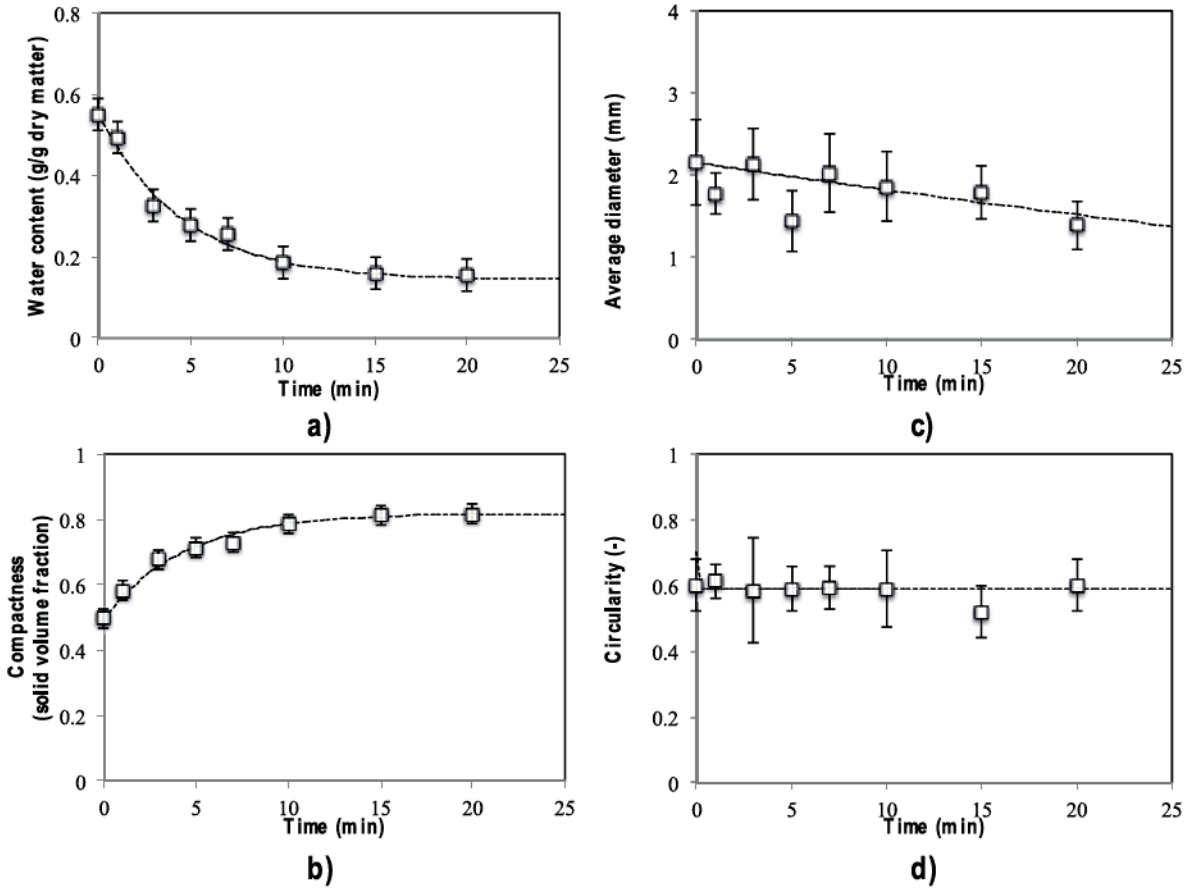


Figure IV.3.1.4. Changes in water content (a), compactness (b), average diameter (c), and circularity (d) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage at 50°C - the dotted line is the first order equation used to fit the data

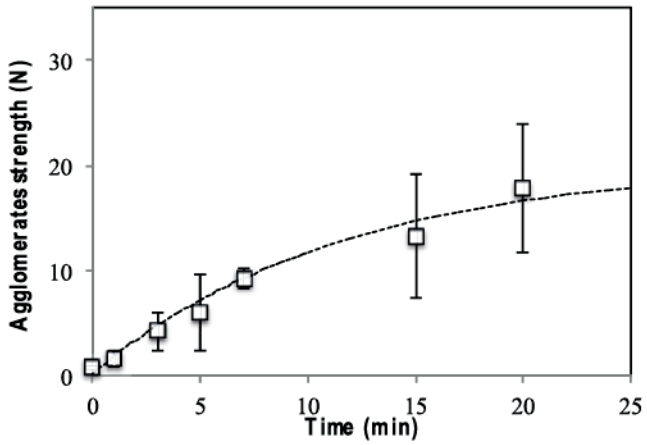


Figure IV.3.1.5. Changes in the mechanical strength of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage at 50°C - the dotted line is the first order equation used to fit the data

The first order equation is well adapted ($R2 > 0.912$) to fit the kinetics related to the changes of the water content and compactness of the wet grains during the drying (Fig. IV.3.1.4 and Table IV.3.1.2). On the other hand, the model is not adapted to describe the changes of diameter, mechanical strength, and circularity ($R2 < 0.332$). Almost similar calculated values of the characteristic times (1/b) are

found for describing the changes in water content (4.4 min) and compactness (4.3 min) during drying. These results also suggest functional links between the water desorption of the grain and the changes of the grain structure (compactness and diameter).

Table IV.3.1.2.

Calculated values of the coefficients (a and b) and fitting quality parameters (R^2 and residual difference) of the first order equation used to describe the changes of the physicochemical characteristics of the wet grains of durum wheat semolina, as a function of the time of the drying stage at different drying temperatures (50, 70, or 90°C)

	Drying temperature (°C)	Coef. a	Coef. b	Coefficient y_0+a	Coefficient 1/b	R^2	Residual sum of square
Water content	50	-0.403	0.225	0.148	4.43	0.988	0.002
	70	-0.477	0.284	0.110	3.52	0.964	0.009
	90	-0.468	0.184	0.075	5.45	0.974	0.006
Compactness	50	0.321	0.233	0.818	4.29	0.986	0.001
	70	0.356	0.273	0.853	3.66	0.982	0.002
	90	0.380	0.184	0.879	5.10	0.974	0.004
Average diameter	50	-3.50	0.010	-1.35	100.00	0.332	0.467
	70	-0.431	100.00	1.72	0.010	0.104	0.719
	90	-0.108	100.00	1.99	0.010	0.203	0.104
Circularity	50	-0.113	100.00	0.590	0.010	0.046	0.012
	70	-0.113	100.00	0.598	0.010	0.044	0.016
	90	-0.112	100.00	0.609	0.010	0.000	0.017
Mechanical strength	50	20.00	0.085	20.28	11.77	0.978	5.65
	70	21.31	0.182	20.98	5.51	0.958	20.81
	90	24.80	0.168	25.08	5.97	0.900	70.37

IV.3.1.3.4. Influence of the drying temperature

The impact of the drying temperature (50, 70, or 90°C) is evaluated on the physicochemical changes induced by the drying stage. The drying stage of the grains at 70 or 90°C seems to induce almost similar physicochemical reactions than those previously observed at 50°C. Almost similar shapes of the drying kinetics are observed at the different temperatures (Fig. IV.3.1.7-8). Slightly higher rates in the changes of water contents (Fig. IV.3.1.7a) and compactness (Fig. IV.3.1.7b) are observed. Increasing the drying temperature at 70 to 90°C induces similar physicochemical reactions than those previously observed at 50°C, but with We also noticed that increasing the drying temperature (from 50 to 90°C) induces a slight decrease of the final water content (from 0.16 to 0.09 g/g dry matter) and a slight increase of the final compactness (from 0.815 to 0.872). The effect of the drying temperature on the measured values of diameter and circularity is not significant.

Whatever the drying temperature, the first order equation is well adapted (R2 > 0.900) to describe the physicochemical changes of water content and compactness (Table IV.3.1.2). Almost similar characteristic times (between 3.5 and 5.9), are found to describe the physicochemical mechanisms induced by the drying at the different temperatures. It could be the fact of functional links between the water desorption and the changes in the compactness and diameters of the grains.

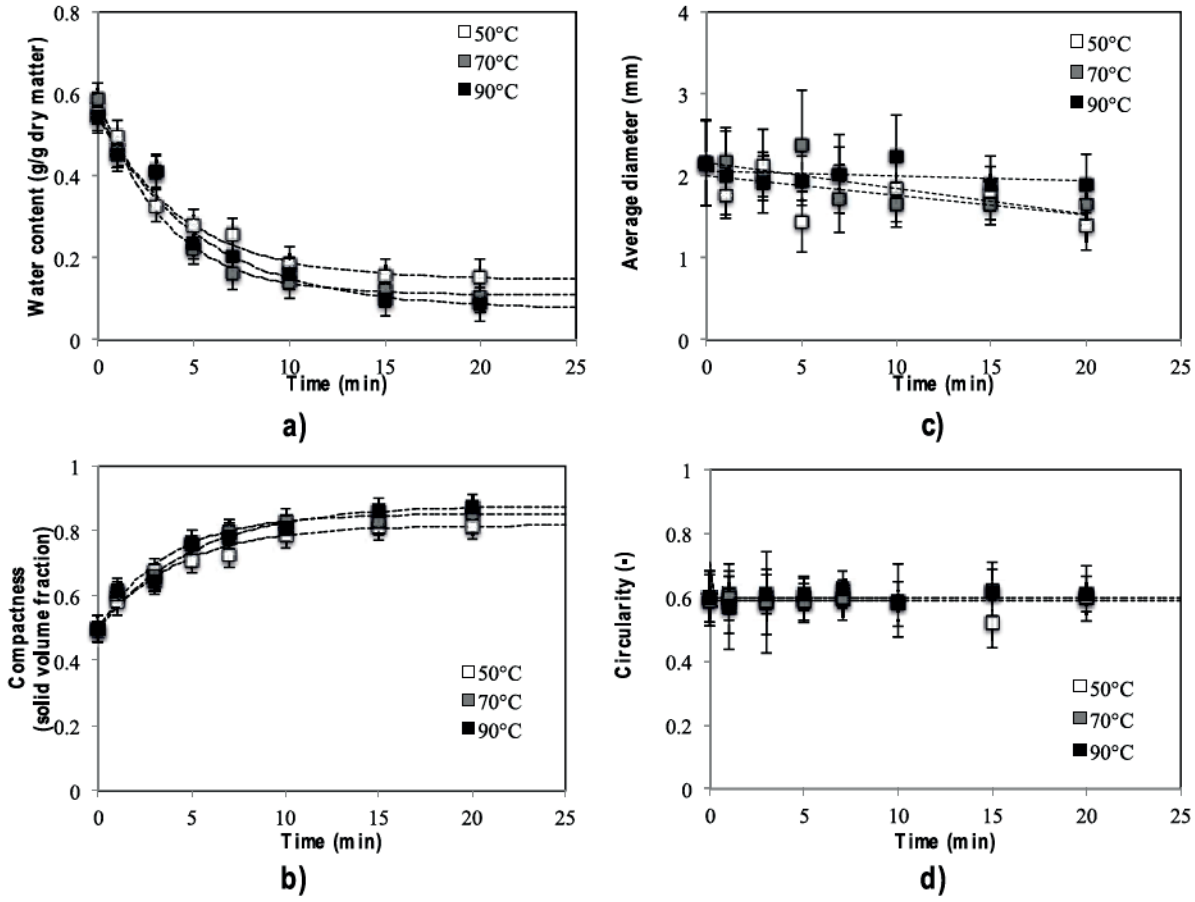


Figure IV.3.1.7. Impact of the drying temperature (50, 70, or 90°C) on the changes in water content (a), compactness (b) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage (at 50% relative humidity) - the dotted line is the first order equation used to fit the data

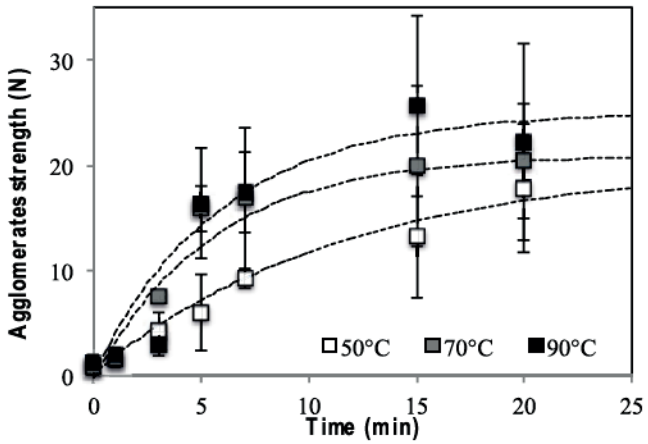


Figure IV.3.1.8. Impact of the drying temperature (50, 70, or 90°C) on the changes in the mechanical strength of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage - the dotted line is the first order equation used to fit the data

IV.3.1.4. Discussion

The present experimental study allows investigating the functional roles of the two hydrothermal treatments, i.e. the steam cooking stage and the drying stage, during processing of the couscous grains of durum wheat. We described the impact of the thermo-hydro-mechanical process conditions on the wheat components and granular characteristics (Cuq et al., 2013). The high temperatures and the different conditions of water contents impact the mechanisms of water transfers, which act on the compactness of the porous grains.

The calculation of the characteristics times of the changes on the physicochemical properties of the grains induced by the steam cooking stage and the drying stage, by using a first order model (Tables IV.3.1.1-2), allows a better understanding of the mechanisms.

During the cooking stage, the characteristic times of the changes of water content, compactness, diameter, and starch gelatinization are quite similar (1.3 - 1.6 min) whatever the conditions (Table IV.3.1.1). The maximum degree of starch gelatinization (>80%) was reached after only 3 min of cooking, whatever the initial water content of the grains (Fig. IV.3.1.1). The final values of water content, compactness, and diameter depend on their initial values before cooking (Fig. IV.3.1.1). The steaming cooking stage increases the water content of the grains (+10 g/g dry matter). The swelling, due to water transfer inside the grains, leads to increase their diameter (+0.8 mm) and to decrease their compactness (-0.07). The values of circularity are not significantly affected by the cooking stage (Fig. IV.3.1.1), even if we observe a slight increase of circularity probably due to the isotropic swelling.

During the drying stage, the characteristic times of the changes in water content, compactness, and mechanical strength are quite similar (3.5 - 6.0 min), whatever the temperature of drying (Table IV.3.1.2). During the drying, the diameter values decrease and the compactness values increase. These are due to the shrinkage mechanisms, which are induced by the water extraction. The values of circularity are not affected by the drying stage (Fig IV.3.1.4).

We demonstrate a significant effect of the drying temperature on the mechanisms. An increase in the drying temperature (from 50 to 90°C) induced slight decreases of the water content and increases of the compactness of the grains (Fig IV.3.1.7-8).

The changes in the characteristics of the grains during the successive stages of steam cooking and drying are promoted by the heat treatments of the grains at different water contents, and by the mass transfers due to water exchanges with the surrounding atmosphere. We have calculated that the mechanisms of heat transfer inside the grains are faster than mass transfers and the deformation, so, we consider the temperature of the grains uniform and at equilibrium with the process temperature. During the steam cooking stage, the increase in water content of the grains is due to water vapour absorption by the wheat components under saturated humidity conditions and to the water condensation at the surface of the grains (Ruiz et al., 2014). During the drying stage, the decrease in water content of the grains is due to water vapour desorption due to the low value of ambiant relative

humidity. The final values of water content can be related to the water desorption isotherms of the wheat components of durum wheat semolina.

The description of physicochemical mechanisms involved in the couscous grain formation can be carried out using the concept of state diagram for durum wheat semolina (Abecassis et al., 2012). State diagram is built from the knowledge of the changes in physical properties of the main wheat components, starch and proteins, as a function of water content and temperature (Cuq et Abecassis, 2003). The physical approach is based on the description of reactivity of the wheat macromolecules as a function of their water content and temperature (Fig. IV.3.1.9). The state diagram defines the conditions of water content and temperature in which occurs the glass transition of amorphous components (proteins and starch chains), the gelatinization of starch granules, and the thermal reticulation of the wheat proteins.

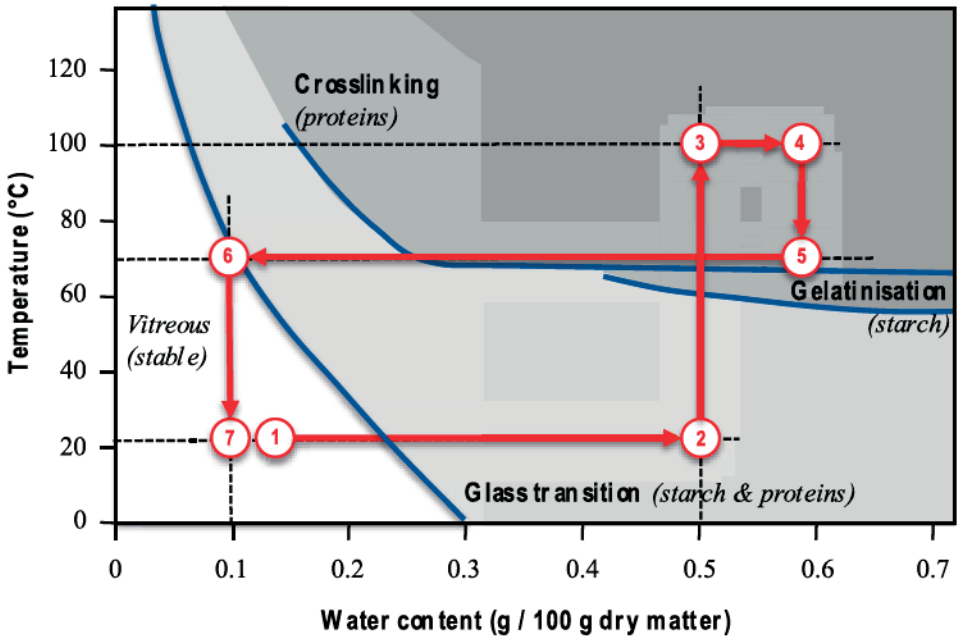


Figure IV.3.1.9. Schematic representation of the "temperature - water content" state diagram for durum wheat semolina (adapted from Abecassis et al., 2012) - technological ways to describe couscous processing on the state diagram for durum wheat semolina, with native semolina (1), wet agglomerates (2), steam cooking stage (3-4), drying stage at 70°C (5-6), and dried final grains (7)

Starting from native semolina, the first stages of agglomeration and rolling of the particles are conducted to generate the wet agglomerates with high water content. The hydration of the particles allows the passage over the glass transition for the wheat components, starch and proteins. The steam cooking stage generates a rapid increase in the temperature until 100°C and a slight subsequent gradual increase in water content. During the steam cooking stage, the process conditions then allow occurring the gelatinization of the starch granules and the reticulation of the wheat proteins.

From all the experimental values measured during the cooking stage, the extent of starch gelatinization has been plotted as a function of the measured water content (Fig. IV.3.1.10). The starch gelatinization is reached at 80% after 3 minutes of cooking. This result consolidates the state diagram of durum wheat (Fig. IV.3.1.9), with the minimal value of water content required to promote the gelatinization of the starch granules (about 0.40 g/g dry matter). Due to the high initial water content of the wet agglomerates and the appropriated rate of heat transfer, the gelatinization mechanism can occur rapidly during the steam cooking stage. The increase in the water content during cooking favours the progress of the reaction.

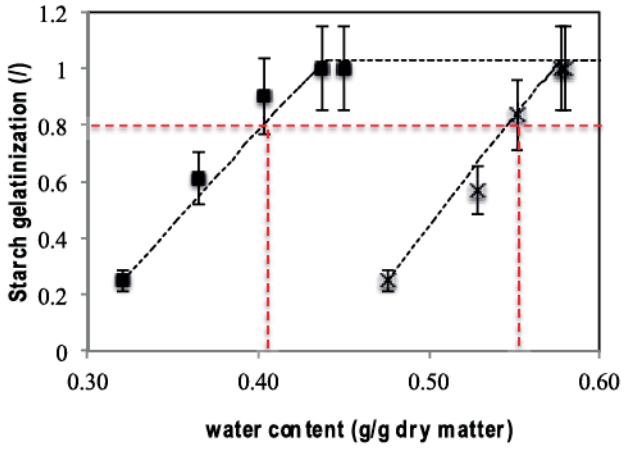


Figure IV.3.1.10. Extent of starch gelatinization as a function to the water content - ■ water addition level of 0.32 g/g dry matter - × water addition level of 0.48 g/g dry matter

At the beginning of the drying stage, the water content and the temperature are still enough high to continue the reactions of starch gelatinization and protein reticulation. This period is short as the decrease in water content is rapid (Fig. IV.3.1.4). The wheat components are still over the glass transition curve and thus display a rubbery plastic behaviour. The final stage of cooling conducts to the final couscous grains with the wheat component in a glassy rigid state.

The changes in the characteristics of the grains during the successive stages of steam cooking and drying are also impacted by the mass transfers due to the water exchanges with the surrounding atmosphere. The impact of process parameters during the successive steam cooking and drying stages on the values of compactness and water content are discussed by using the hydrotextural diagram (Rondet et al., 2009; Ruiz et al., 2011) (Fig. IV.3.1.11). This phase diagram is based on the relations of volumes and masses conservation between the components of a wet granular medium and gives a global representation to depict the hydric and textural state in order to follow their evolutions when process stresses are applied (mixing stress, cooking rate, drying rate, etc.). It is limited in its upper part by the saturation curve, which represents the maximum water content that a medium of a given constant compactness can contain. Under this curve, unsaturated states result of granular, liquid and gaseous arrangements. The initial wet agglomerates generated by the agglomeration - rolling process are located on the saturation curve, as the porous grains are saturated by water (Fig. IV.3.1.11). During the steam cooking stage, the increase in water content of the grains is concomitant with a decrease of

their compactness. It respects a balance of the volumes (Fig. IV.3.1.11a). During the drying stage, the decrease in water content of the wet grains is concomitant with an increase of their compactness (Fig. IV.3.1.11b).

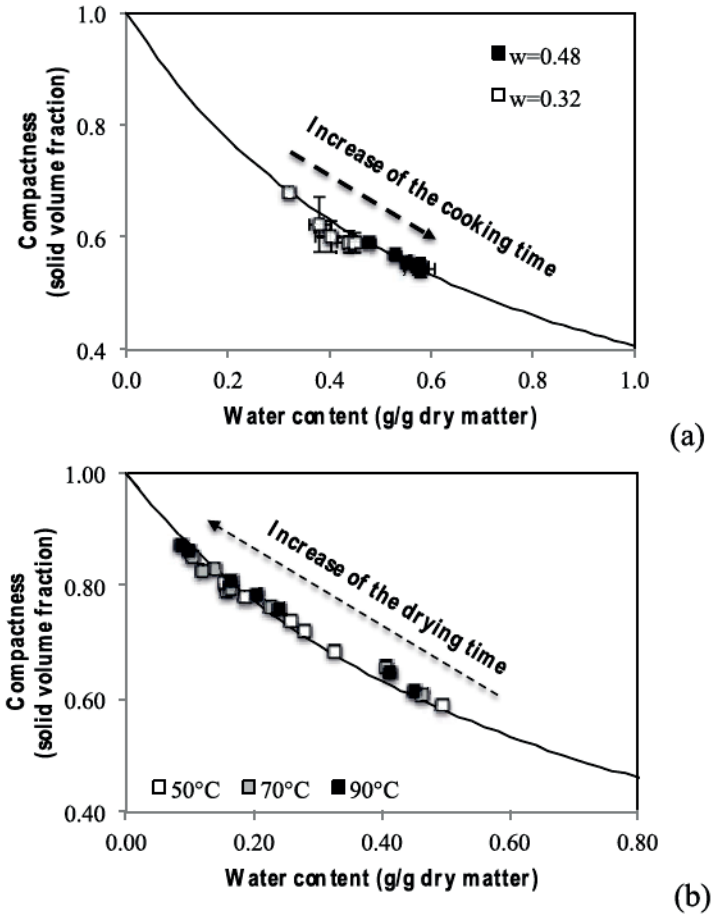


Figure IV.3.1.11. Hydro-textural description (compactness vs. measured water content) of the wet grains of durum wheat during the steam cooking stage (a) at different water contents (0.32 or 0.48 g/g dry matter) and during the drying stage (b) at different drying temperatures (50°C, 70°C, or 90°C) - the saturation curve is the continuous line

The steam cooking stage and the drying stage impact the hydrotextural parameters of the wet grains. Whatever the process parameters the grains generated in this study are found to be close to the saturated state (Fig. IV.3.1.11). The changes in the diameter of the grains are coupled with changes in water content and compactness, so that the grains remains saturated. The swelling of the grains during the cooking stage and the shrinkage of the grains during the drying stage are conducted without gaseous phase apparition, because of the plasticization of the components above the glass transition and the plasticity of the matter. The ability of the durum wheat matter to be deformed during the steam cooking stage and the drying stage is not to be a limit phenomenon. The range of variation of the compactness is essentially due to the particle arrangement under water transfers.

The measured changes in the mechanical strength (compression force) of the grains during the drying stage (Fig. IV.3.1.5 and IV.3.1.8) can be plotted as a function of their water contents (Fig. IV.3.1.12).

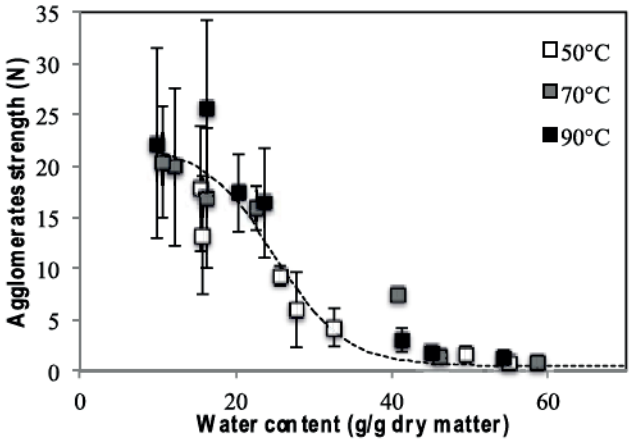


Figure IV.3.1.12. Impact of the drying temperature (50, 70, or 90°C) on the changes in the mechanical strength of wet agglomerates of durum wheat as a function of the water content of the drying stage - the dotted line is the logistic model

During the drying, the decrease in water content induces an increase in the mechanical strength. We observed an abrupt transition from low to high values of apparent strength at a critical level of water content. The values of mechanical strength seem to reach a maximum constant value at low water content. Wet grains behave as a visco-plastic and soft product. Dried grains behaves as a rigid product. A sigmoid curve characterizes the relationship between the apparent strength and the water content of the grain. The changes in mechanical strength as a function of water content (measured at 20°C) can be described by using the logistic model (Eq. IV.3.1.3) adapted to describe sigmoid curves (Cuq et al., 2003b).

$$Y(w) = \frac{Y_H - Y_L}{(1+exp^{\frac{w-w_i}{A}})} + Y_L \qquad \text{(Eq. IV.3.1.3.)}$$

Where Y is the calculated mechanical strength, w is the water content (% dry basis), YH is the calculated maximum value of property, YL is the calculated minimum value of property, wi is the water content (% dry basis) at the inflection point of the sigmoid curve and A is a constant (% dry basis), which characterizes the spread of the transition from high to low values of mechanical property. The logistic model fitted well experimental data (R2 = 0.95), with the following calculated values of parameters: A = 4.5%, wi = 25%, YH = 22 N; YL = 0.5 N. (Table 3). Cuq et al. (2003) explained that the effects of water content on the mechanical strength of dried grains of couscous could be interpreted using the concepts of plasticization and glass transition. The transition of the mechanical properties may be explained by the glass transition of the hydrophilic amorphous components of wheat semolina. The molecular mobility is enhanced by an increase in temperature (i.e., thermal plasticization) or water content (i.e., water plasticization). The critical water content at the glass transition of mechanical strength of dried grains at ambient temperature is almost similar with the glass transition of durum wheat semolina (Cuq et al., 2003b; Cuq et Icard-Vernière, 2001).

By considering rapid heat transfer inside the grains, three mechanisms contribute to the drying phenomena: *(i)* the liquid evaporation at the surface (phase change), *(ii)* the liquid transport in the product (diffusion in the pores network) and *(iii)* the deformation of the product (mechanical

shrinkage), which involves a modification of the local texture. The liquid transfer is localized at the level of the drying air/water interface. As long as the product remains saturated, this interface is located at the periphery of the grain. This interface includes the area of the peripheral capillary meniscus and the contribution of the water films, which wet the particles of the edge and between the capillary meniscus. Due to the difficulty of estimating this area and its evolution during drying, it is often assimilated to the geometric surface of the product. In the case of grains, it could be a simplified a quasi-sphere in a first approximation. This transfer, which is well described by the double layer theory, found limitation of its rate from the kinetic of molecular transport into the diffusional layers. The boundary conditions (the gaseous diffusion layer and the drying atmosphere) are the major factors controlling the transfer during the isenthalpic period, characterized especially by a constant flux. This period is so-called a period at constant rate. These transfer conditions are induced by the process parameters, which controlled the drying atmosphere characteristics. They are fixed at the scale of the reactor. When these process parameters are constant, the end of this drying period is due to the limitation by another kinetic phenomenon, which is expressed "inside the product": desaturation, transport of limiting water, *etc*. On the other hand, the water transfer induces a mechanical shrinkage (case of a deformable material), and it is necessary to take into account the evolution of the exchange surface in order to correct the value of the flux by the loss of surface area (case of the model used).

The transport of water inside the product is linked to the physical nature of the microstructure of the material: liquid conduction within a micro or macro-porous network, liquid diffusion within a nano-porous network or a gel, gaseous diffusion, etc. The kinetic of migration of the water towards the drying surface is related to the gradients of chemical potential of water developed during the drying. The transport properties (permeability, diffusion coefficient, etc.) modulate this rate. An evolution of the microstructure during the drying (case of chemical reactions or mechanical shrinkage) finds its dependence on the state parameters that describe it.

The deformation constitutes a mechanical relaxation over a thermo-hydro-mechanical load applied via the capillary pressure at each contact line. The product adapts itself to the stresses applied locally by the difference between the relative humidity of the drying atmosphere and the water activity. Its amplitude and intensity depend on *(i)* the rheology of the product (and its evolution with the water content), *(ii)* the mechanical stress rate applied by the operating conditions, and *(iii)* its location as a function to the kinetic of transfer.

An analytical model detailed in Rungsiyopas et Ruiz (2017) allows describing the kinetics of average water content during the first part the drying stage (<8 min) at the product scale (Eq. IV.3.1.4) with a good agreement to our data (R2 between 0.96 and 0.98) (Fig. IV.3.1.13).

$$w(t) = w_{init} - d_s^{*-1}\phi_{init}^{-1} + \beta(t-\tau)^3 \qquad \text{(Eq. IV.3.1.4.)}$$

Where β and τ are two terms which take into account the dependence of the liquid/gas exchange rate by its relation with the product shape, assimilating in this paper as a sphere; w_{init} and ϕ_{init} are respectively the initial water content and compactness of the agglomerate.

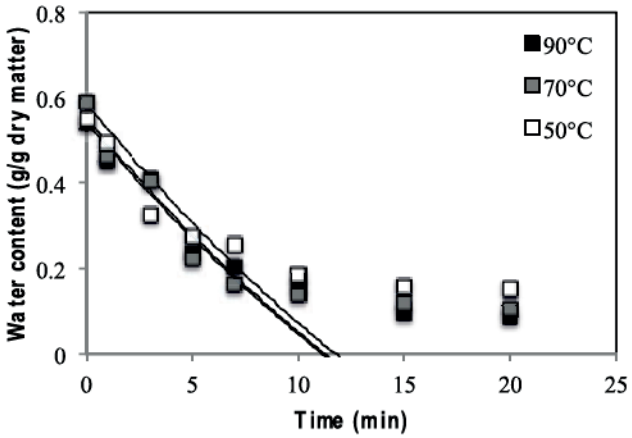


Figure IV.3.1.13. Analytical model (the dotted line) to describe the kinetic of dewatering as a function of the drying temperature (50, 70, or 90°C)

The analytical model allows describing the water desorption until the hygroscopic limit of the product is reached. This hygroscopic limit depends both of the components of the product and transfer conditions induced by the process parameters.

By reporting the equation of the drying model (Eq. IV.3.1.4) in the saturation relation, we can have the kinetic of compactness. Moreover, considering that the circularity is still constant and by assimilating the agglomerate as a quasi-sphere, we can easiest establish the kinetic of radius decreasing. We found by this way that this kinetic is quasi-linear with the time: $R \propto V^{\frac{1}{3}} \propto \phi^{\frac{1}{3}} \propto t$, and this result is confirmed by the experimental datas (Fig. IV.3.1.7c).

IV.3.1.5. Conclusion

The paper investigated the physico-chemical mechanisms promoted by the steam cooking stage at different initial water contents (0.32 or 0.48 g/g dry matter) and by the drying stage at different temperatures (50, 70, or 90°C) during the processing of the couscous grains of durum wheat. We demonstrated significant effect on the water content, compactness, diameter, circularity, and starch gelatinization of the grains. The kinetics of the physicochemical changes were described using a first order model. The calculated values of characteristics times were used to discuss the mechanisms. The transfer of water into the granular matter appears to be the limiting phenomenon during the cooking stage. It promotes the expansion of the structure because of the granular plasticity and it leads to an increase in the diameter of the grains. The filling of the inter particle voids is due to the absorption of water. It also promotes the starch gelatinization. The initial water content does not impact the characteristic times of the water diffusion and starch gelatinization mechanisms. During the drying stage, the transfer of water is also the limiting phenomena. It promotes the compaction of the structure and decreases the diameter of the grains. As the grains remain on the saturation curve all along the process, we supposed that the variations of the compactness are essentially due to the arrangement of the internal structure. We used an analytical drying model to describe the kinetics of average water

content during the first part of the drying stage at the product scale. Using this model and the saturation relation, we modelled the changes in compactness and the subsequent changes in diameter for the agglomerates of couscous grains.

Acknowledgments - *The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR-13-ALID-0002-01) for its financial support through the program "Dur Dur".*

IV.3.2. Innovative processing: the drying of uncooked couscous grains of durum wheat semolina

IV.3.2.1. Introduction

Couscous is defined as the product prepared from coarse and fine durum wheat semolina (*Triticum durum*) that agglomerates by adding potable water and then undergoes physical and thermal treatment. It is a nearly 3000 years old food product, which is becoming more and more present in European countries and Mediterranean area (Abecassis et al., 2012). The classical process for the fabrication of the couscous grains follows four successive steps: wet agglomeration, rolling-sieving, steam cooking, and drying (Abecassis et al., 2012; Bellocq et al., 2017; Ruiz et al., 2014). Semolina and water are first mixed together to promote the wet agglomeration of the semolina particles and form the wet agglomerates. The wet agglomerates are then rolled to give them a spherical shape and they are separated according to their size. The fraction with diameter between 1 and 2 mm was selected and submitted to the following stages of cooking and drying. Theoretical foundations are still missing to understand the uses of reactive powders during the processing of the durum wheat in couscous products (Abecassis et al., 2012). Due to the multiplicity of mechanisms, the theoretical aspects of the four steps are not enough sufficiently understood to predict the end product properties.

The steam cooking is a critical stage during couscous grains processing, as it directly contributes to the sensory, digestibility, and nutritional values to the final product (Abecassis et al., 2012). At the industrial scale, the steam cooking stage is conducted inside a continuous tunnel, at 100°C using steam at atmospheric pressure. The wet agglomerates are layered on a perforated metallic surface. Due to the thickness of the wet agglomerates layer (about 20 cm), the cooking stage takes about 15 minutes to ensure the complete cooking of the grains. A slight increase of 5-10% of the water content of the grain is observed during the cooking stage (Abecassis et al., 2012). This is due to the condensation phenomenon on the surface of the grain surface and the capillary absorption of the water molecules by the wheat components. The absorption of water molecules promotes the expansion of the granular structure due to the plasticity of the wheat components above the glass transition and thus leads to an increase in the diameter of the grains. The filling of the internal porous structure by water occurs almost simultaneously with the absorption of water. The internal porous structure of the grains remains fully saturated by water during all the process. The steam cooking stage also promotes the gelatinization mechanisms of the starch granules. It can induce the formation of amylose-lipid complexes, and the insolubilization of the wheat proteins (Abecassis et al., 2012). The steam cooking stage contributes to increase the mechanical strength of the couscous grains by promoting biochemical links between the wheat components.

The final stage of drying is conducted by evaporating the major part of the water, to reduce the water activity and obtain a long shelf-life stability of the couscous grains. At the industrial scale, the drying stage is conducted in continuous drying tunnel at high temperature (90-120°C) and takes about 15 to 30 minutes (Abecassis et al., 2012). It is a critical step to ensure the microbiological and physicochemical stability of the products by reducing the water activity. It has to reduce the water

content of the couscous grains below 13.5%, in order to agree with the legislation. The principle of the drying for the couscous grains is an extraction of the water by evaporation and vapour entrainment in a stream of hot air at controlled speed, temperature, and relative humidity. Because the wheat components remain in a rubbery state above the glass transition, the drying stage promotes the compaction of the structure and induces significant decrease of the diameter of the grains. The values of the compactness of the grains are located on the saturation curve all along the drying process due to the arrangement of the internal structure simultaneously with the decrease in diameter.

Equipment's and process management used at the industrial scale for the production of the couscous grains are still partly based on inherited history from short cut pasta processing and great technological and human expertise. The steam cooking stage and the drying stage account for more than 70% of the total energy consumption during the production of the couscous grains. Innovative management of these two hydrothermal treatments could be considered to explore the potential of different technological ways during the processing of couscous grains.

The aim of this work is to investigate the opportunity to directly carry on the drying stage on the wet agglomerates, without conducting the steam cooking stage. This work will allow evaluating the effect of a direct drying of the wet agglomerates on the physicochemical mechanisms and on the characteristics of the couscous grains. Specific experimentations were proposed to directly dry the wet agglomerates after the stages of agglomeration and rolling. We will describe the physico-chemical mechanisms occurring at two different scales (the granular scale and the molecular scales) during the drying stage under different conditions of temperature (50, 70 or 90°C) and relative humidity (50 or 80%). We will propose some relationships between the process parameters, the physicochemical mechanisms, and the characteristics of the couscous grains of durum wheat semolina.

IV.3.2.2. Material and methods

IV.3.2.2.1. Raw materials

Industrial quality semolina (Panzani group, France) was used as standard durum wheat semolina. Semolina was stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out. Semolina was first characterized using standardized methods from triplicates. The water content of semolina (14.8 (±0.08) g water/100 g dry semolina) was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying at 105°C for 24 h. The characteristics values (d_{10}, d_{50} and d_{90}) of particle diameter of semolina were measured by a laser particle size analyser (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The median value of particle diameter of semolina (d_{50}) was of 287 (±2) µm. The diameter span was $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 1.51$ (±0.01). The semolina true density (1.415 (±0.003) $g.cm^{-3}$) was measured by using a nitrogen pycnometer. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content (12.44 (±0.04) g proteins/100 g dry semolina) was calculated according to TN-5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970).

IV.3.2.2.2. Agglomeration process

The wet agglomeration process was conducted by using a horizontal low shear mixer. The mixing tank (30 cm length, 11.5 cm width, and 16.5 cm height) was composed of a horizontal shaft axe, positioned at 5.5 cm from the bottom of the tank, with 14 metal rotating paddle blades (4 cm length, 2 cm width, and 7.5 cm gap between 2 blades). A sample of 780 g of semolina was first introduced in the mixer tank and mixed for 2 min at constant mixer arm speed (100 rpm) to equilibrate the temperature at 20°C (±2°C). Water was then directly sprayed over the semolina under mixing at almost constant flow rate (2 $g.s^{-1}$), for a period of 65 or 110 sec to reach the final water content (32.0 or 48.2 g water/100 g dry matter, respectively) by using a single-fluid atomizing system (TPU 6501, Spraying Systems Co., France). After the water addition step, the mixture was stirred for 10 min to homogenize and promote the agglomeration mechanisms. The wet agglomerates were then collected using a plastic bowl and directly sieved over a column of 2 metallic sieves of decreasing mesh (2.0 and 0.9 mm). The sieve column was shaken by hands for 1 min at ambient temperature, to limit the possible breakage of the wet agglomerates. The wet agglomerates were collected between the 2 mm and the 0.9 mm sieves.

IV.3.2.2.3. Drying process

The wet agglomerates were then directly spread as thin layer (about 5 mm, which is approximately 5 agglomerate diameters), over seven stainless-steel grids and introduced inside the drying chamber of a pilot scale dryer (Afrem, Lyon, France). The agglomerates were dried under different conditions of temperature (50, 70, or 90°C), relative humidity (50 or 80%), and for different times (1, 3, 5, 7, 10, 15, or 20 min). The dried couscous grains were collected immediately after the drying stage and stored inside hermetic plastic cups until characterization.

IV.3.2.2.4. Agglomerates characterization

Water content - The water content of agglomerates was determined on 3-5 g samples, by a drying method in an oven (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany) at 105°C for 24 h (AACC Method 44-15A). The water content (w) of agglomerates (g / g dry matter) was calculated by using: $w = m_w/m_s$, where m_w is the mass of water (g) and m_s is the mass of dry matter (g) in the sample. Mean values were determined from triplicate.

Extent of starch gelatinization - Modulated differential scanning calorimetry (DSC Q200, TA Instruments, New Castle, DE, USA) calibrated with indium, was used to determine the extent of starch gelatinization of couscous grains, compared to the native durum wheat semolina which is taken as reference. About 5 mg of sample were placed in a DSC aluminium pan and 12 µL of water were added with a micropipette. The pan was then sealed, reweighed and allowed to stand for 1 h at room temperature. Analyses were performed from 30°C to 110°C at a heating rate of 10°C.min^{-1} using an empty pan as a reference. For each endotherm, the onset (To), peak (Tp) and endpoint (Tc) temperatures and the gelatinization enthalpy (ΔH) were determined by using the TA Instruments analysis software. Experiments were carried out in triplicate. The starch gelatinization degree was determined by comparing gelatinization enthalpy (ΔH) of the sample, with the gelatinization enthalpy

of the native semolina. The degree of starch gelatinization (%) was calculated using: $\left(1 - \frac{\Delta H}{\Delta H semolina}\right) \times 100$. Mean values were determined from triplicate.

Compactness - Samples of agglomerates (about 1 g) were used to determine the compactness, *i.e.* the solid volume fraction: $\phi = \rho_s / \rho_s^*$. The solid apparent density ρ_s of the wet agglomerates was measured by using a hydrostatic balance with paraffin oil, which ensures the wet agglomerates without penetrating them during measurement. The solid true density ρ_s^* was measured by using a nitrogen pycnometer (Ultrapyc 1200e, Quatachrom) after drying the agglomerates at 105°C for 24 h. Mean values were determined from 2 measurements.

Agglomerates strength - The mechanical strength of the agglomerates was determined by using a texture analyser (TA-HD Plus, Stable Micro Systems, UK). The agglomerate strength is the force needed to compress one agglomerate at 50% of its initial height. A 30 kg load cell was used with a compressive metallic cylindrical probe (35 mm diameter) operating at 0.1 $mm.s^{-1}$. Texture experiments were conducted by characterizing the agglomerates one by one. It was not possible to characterize a large number of agglomerates. We selected a restricted number of agglomerates (about 5) having some homogeneity in their size, to be almost representative of the sample. Mean values were determined from 5 measurements.

Model fitting - Apparent first order kinetics were experimentally observed to describe the changes of the physicochemical characteristics of the grains as a function of the time cooking or drying. We used a first order equation (Eq. IV.3.1.1) to describe the process-time dependence of experimental values. The Chapman model has been used by Bayram et al. (2005) to describe the gelatinization mechanisms of durum wheat bulgur as a function of the cooking time. The function is able describing apparent exponential curves converging to a limit value.

$$y = y_0 + a(1 - e^{-bx}) \qquad \text{(Eq. IV.3.2.1.)}$$

Where a and b are the model coefficients related to the final plateau value, and the rate of the changes, respectively. These coefficients were used to calculate the final plateau value (y_0+a) and the process characteristic time (1/b). The coefficients a and b were determined with Excel 2011 solver (Microsoft, Redmond, USA) and the XLSTAT add-on (Addinsoft, Paris, France). Statistical analysis was carried out with XLSTAT at 95% confidence level in order to check the relevance of model coefficients by Student tests and p-value. The coefficient of determination R^2 and residual standard deviation were calculated to gauge the goodness of fit.

Statistical analysis - The statistical significance of results was assessed using single factor analysis of variance (ANOVA). Multiple comparisons were performed by calculating the least significant difference using Microsoft Excel 2010, at a 5% significance level.

IV.3.2.3. Results

Before investigating the mechanisms, we first described the physico-chemical characteristics of the wet agglomerates before the drying stage. The wet agglomerates were collected immediately after the mixing - sieving stage. They were characterized by the water content (0.48 g/g dry matter), compactness (0.68 ± 0.01) and median diameter close to d_{50} = 1.63 mm. Concerning their microstructure (data not shown), the wet agglomerates were grains with a relatively porous internal structure. The semolina particles were still visible in their surface.

IV.3.2.3.1. Kinetic description of the mechanisms

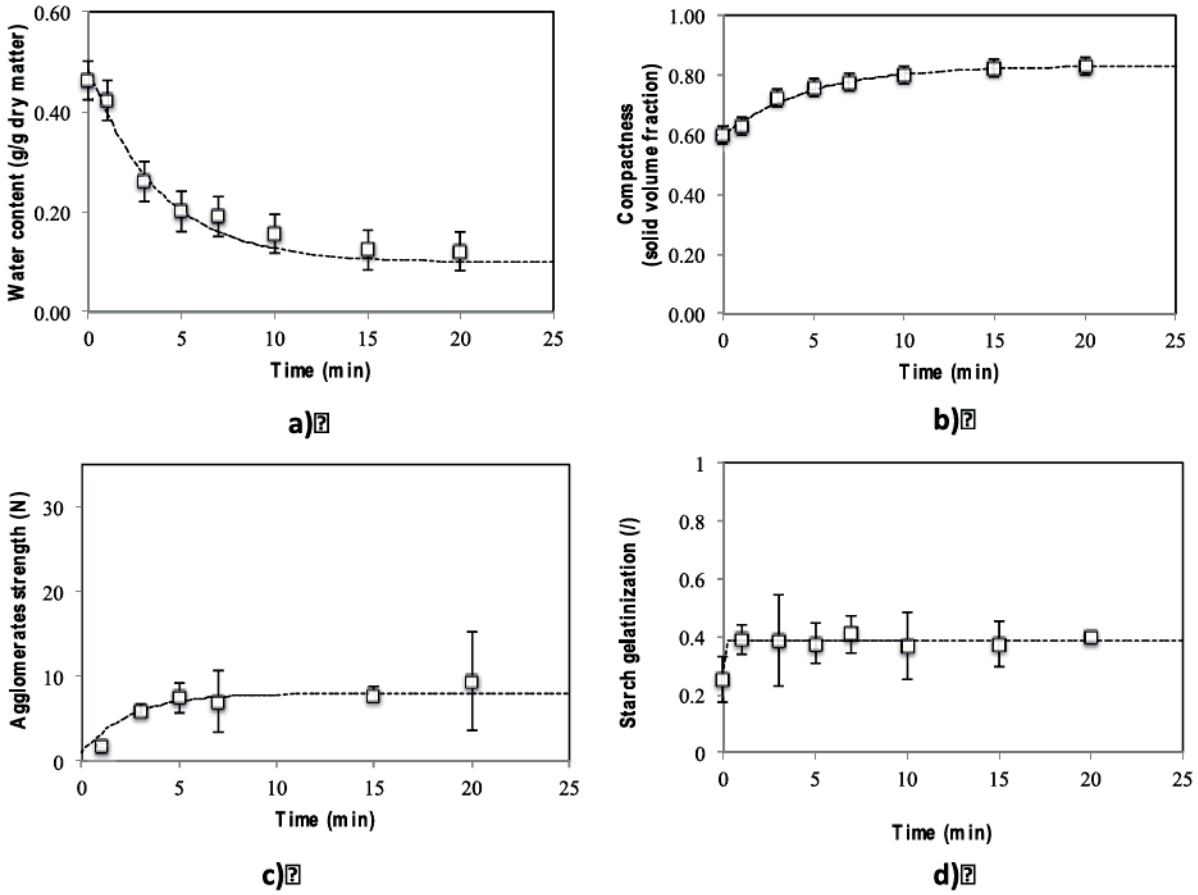


Figure IV.3.2.1. Changes in water content (a), compactness (b), agglomerates strength (c) and starch gelatinization (d) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage at 50°C and 50% of relative humidity - the dotted line is the first order equation used to fit the data

As reference, we analysed the drying at 50°C of the wet agglomerates (Fig. IV.3.2.1). The drying curves showed that the water content starts instantly to decrease during the first minutes of drying (Fig. IV.3.2.1a). The rate of water desorption was relatively high between 0 to 5 min. The drying rate decreased between 5 to 10 min and the water content reached the stationary phase after 10 min of drying. The final water content of the dried grains was close to 0.12 ± 0.02 g/g dry matter. Almost similar curves were observed for the changes in compactness as a function of the drying time. The final value of compactness was close to 0.83 ± 0.01 (Fig. IV.3.2.1b). The measured values of

mechanical strength of the grains first rapidly increased (from 1.85 to 7.48 N) during the five first minutes of drying. Above 5 min, we observed a slight increase in the values of mechanical strength and a final value of 9.48 N ± 2.8 (Fig. IV.3.2.1c). The extent of starch gelatinization was found to increase (from 0.25 to 0.39) immediately after 1 minute of the drying stage and remained constant during the drying (Fig. IV.3.2.1d).

The first order equation was well adapted (R^2 between 0.927 and 0.990) to fit the kinetic mechanisms related to water desorption and the changes in compactness and in the mechanical strength of the agglomerates (Table IV.3.2.1). The calculated values of the model coefficient (b) were used to calculate the characteristic time (1/b) of the mechanisms (Table IV.3.2.1). Almost similar values of the characteristic times were found to describe the changes in water desorption (3.78 min), compactness (4.70 min) and mechanical strength (2.50 min). Almost similar values of the characteristic times have been previously found to describe the physicochemical changes (water content and compactness) during the classical drying of the cooked grains of couscous, in similar drying conditions (4.43 min, 4.29 min, respectively). On the other hand, we observed significant differences between the final values of the water content and compactness after the drying. This was due to different initial values of the water content and compactness between the cooked grains and uncooked grains, before the drying. We also observed that the direct drying (at 50°C and 50% RH) of the uncooked grains did not allow the complete gelatinization of the starch granules. We only observed a slight extent (40%) of gelatinization, in comparison with the fully gelatinized grains after the cooking stage.

Table IV.3.2.1. Calculated values of the coefficient Y_o+a and 1/b and fitting quality parameters (R^2 and residual difference) of the first order equation used to describe the changes of the physic-chemical characteristics of the wet grains of durum wheat semolina, as a function of the time of the drying stage at different drying temperature (50, 70, 90°C) and different relative humidity (50 and 80%)

	Relative humidity (%)	Temperature (°C)	Coef. a	Coef. b	$Y_o + a$	1/b	R^2	Sum square
Water content	50	50	-0.386	0.265	0.100	3.78	0.984	0.004
	50	70	-0.383	0.271	0.103	3.69	0.993	0.001
	50	90	-0.407	0.210	0.075	4.76	0.959	0.014
	80	50	-0.280	0.171	0.170	5.86	0.978	0.002
	80	70	-0.277	0.406	0.173	2.47	0.981	0.002
	80	90	-0.292	0.456	0.159	2.20	0.976	0.003
Compactness	50	50	0.234	0.213	0.830	4.70	0.990	0.001
	50	70	0.258	0.245	0.843	4.08	0.992	0.001
	50	90	0.290	0.180	0.877	5.56	0.965	0.005
	80	50	0.192	0.168	0.796	5.96	0.899	0.004
	80	70	0.190	0.326	0.801	3.07	0.984	0.001
	80	90	0.216	0.321	0.819	3.11	0.956	0.003
Mechanical strength	50	50	7.00	0.400	8.00	2.50	0.927	4.12
	50	70	10.00	0.116	11.00	6.25	0.852	5.73
	50	90	13.76	0.141	14.76	7.07	0.954	5.82
	80	50	7.34	0.117	8.37	8.58	0.853	6.22
	80	70	10.09	0.238	9.26	4.21	0.891	6.53
	80	90	16.29	0.141	17.12	7.11	0.982	1.52

IV.3.2.3.2. Influence of the drying temperature

We evaluated the influence of the drying temperature by conducting drying process of wet uncooked agglomerates at three different temperatures (50, 70 or 90°C) and similar relative humidity. The experimental curves obtained during the drying at 50, 70, or 90°C and at 50% relative humidity are presented in Fig IV.3.2.3. Almost similar experimental curves were obtained at 80% relative humidity (data not shown).

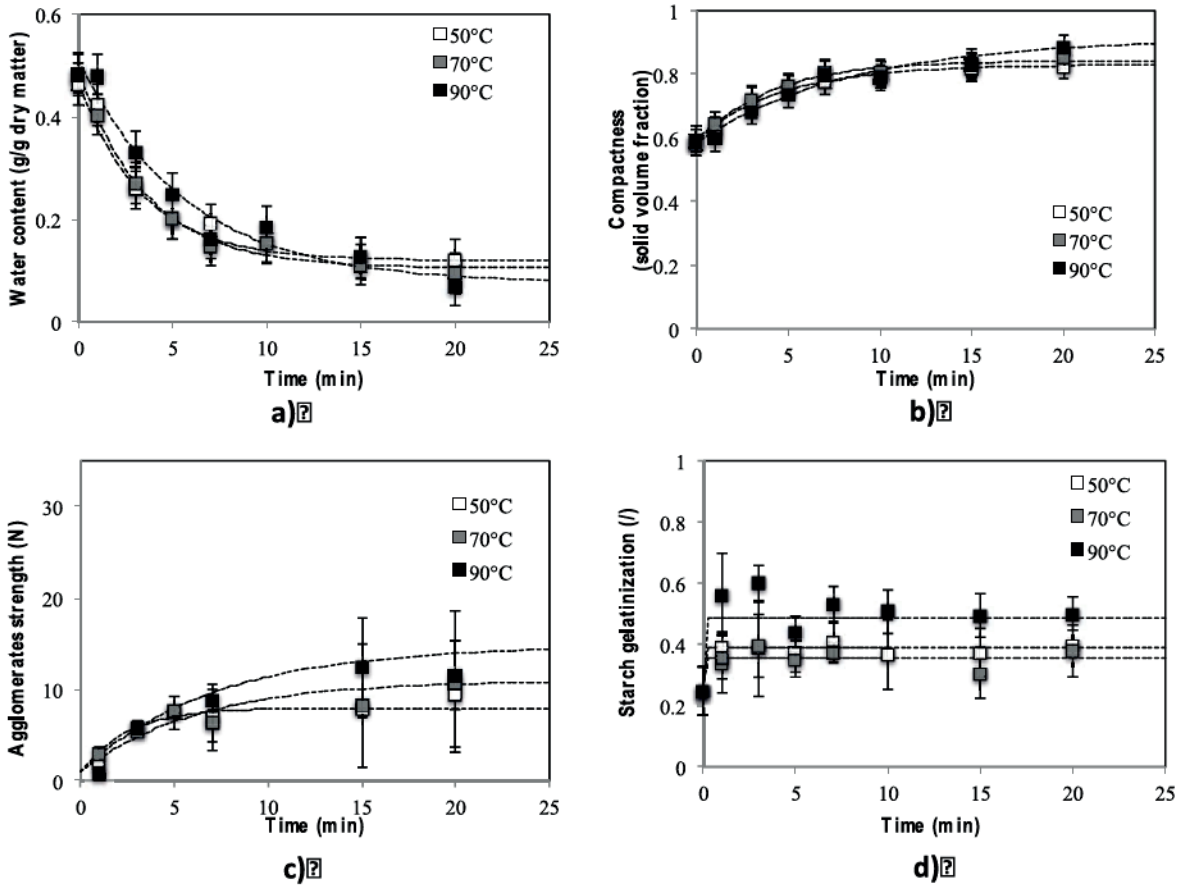


Figure IV.3.2.2. Impact on the drying temperatures (50°C, 70°C, 90°C) on the changes in water content (a), compactness (b), agglomerates strength (c) and starch gelatinization (d) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage at 50°C and 50% of relative humidity - the dotted line is the first order equation used to fit the data

The measured drying curves obtained at 70 or 90°C display almost similar shapes than those measured at 50°C (Fig. IV.3.2.2). The increase of the drying temperature did not significantly change the initial rate of water desorption (Fig. IV.3.2.2a). We only observed a slight decrease of the final water content (0.10 g/g at 70°C, 0.07g/g at 90°C) at the end of the drying stage. The increase of the drying temperature did not significantly impact the initial rate of change of compactness (Fig. IV.3.2.2a). We reported that a slight increase of the final values of the compactness (0.85 and 0.88) with an increase in the temperature (at 70 and 90°C, respectively) (Fig. IV.3.2.2b). Almost similar curves were observed for the changes in mechanical strength according to the time of the drying stage at the different drying temperatures (Fig. IV.3.2.2c). Whatever the process temperature, the extent of starch gelatinization was found to rapidly increase during the first minute of drying (Fig. IV.3.2.2d). Increasing the drying

temperature (at 70 or 90°C) induces an expected increase of the extent of starch gelatinization (0.36 and 0.50, respectively) (Table IV.3.2.2).

Whatever the drying temperature, the first order equation was well adapted to describe the kinetic of water desorption, changes in compactness and changes in agglomerates strength (R^2 between 0.854 and 0.984) (Table IV.3.2.1). It was difficult to propose relationships between the calculated values of characteristic times (1/b) for the kinetics of water desorption (3.78 and 4.76 min), changes in compactness (4.70 and 5.56 min), and changes in agglomerates strength (2.50 and 7.07 min) and the drying temperatures (between 50 and 90°C). Almost similar characteristic times have been previously found to describe the changes during the classical drying of the cooked wet grains of couscous, in similar drying conditions.

Table IV.3.2.2.

Extent of starch gelatinization as a function of the temperature and the relative humidity at the end of the drying stage

Temperature of drying	Extent of starch gelatinization (HR=0.5)	Extent of starch gelatinization (HR=0.8)
50°C	39 % (±1.4)	50 % (±12.6)
70°C	36 % (±2.9)	47 % (±11.0)
90°C	50 % (±6.9)	52 % (±12.1)

IV.3.2.3.3. Influence of the relative humidity conditions

We evaluated the influence of the relative humidity of the drying airflow by conducting drying process of wet uncooked grains at two different values of relative humidity (50 or 80%). The effect of the relative humidity was studied at the different drying temperature (50, 70 or 90°C). The experimental curves obtained during the drying at 50 or 80% relative humidity and at 50°C, are presented in Fig. IV.3.2.3. Almost similar experimental curves were obtained at 70 and 90°C (data not shown) and we have chosen to present the experimental curves obtained during the drying at 50 or 80% RH and at 70°C in Fig. IV.3.2.4.

We observed slight changes in the measured drying curves (*i.e.* the changes in water content, compactness and mechanical strength and extent of starch gelatinization with time) at 80% RH in comparison to those measured at 50% RH (Fig. IV.3.2.3). Nevertheless, no change occured in the measured drying curve at 80% RH in comparison to those measured at 50% RH for the temperatures of 70°C and 90°C (Fig. IV.3.2.4), where same initial rates of water desorption were observed. It seemed that the conditions of drying decreased the rate of water desorption by using a relative humidity of 80% and a temperature close to 50°C. On the contrary, for temperature close to 70°C and higher, same initial rate of water desorption were observed (Fig. IV.3.2.4). In comparison with experiments conducted at 50% RH, we only observed, for each temperature, a slight increase of the final water content at the end of the drying stage. The increase of the relative humidity did not significantly impact the initial rate of change of compactness (Fig. IV.3.2.3b). The final values of the compactness decreased with an increase of the relative humidity of the drying air (Fig. IV.3.2.3b). We also reported a slight increase of the final values of the mechanical strength of the agglomerates when drying at 80%

RH. Finally, a slight increase of the extent of starch gelatinization was observed during the drying at 80% RH (Table IV.3.2.2).

Whatever the relative humidity of the drying air, the first order equation is well adapted to describe the kinetic of water desorption, changes in compactness and changes in agglomerates strength (R^2 between 0.853 and 0.992) (Table IV.3.2.1). The calculated values of the characteristic times (1/b) of the kinetics of water desorption, changes in compactness and changes in agglomerates strength were higher using a 80% RH and a temperature of 50°C. It indicates a lower water desorption mechanism. On the other hand, the calculated values of the characteristic times were not significantly affected by the increase in the relative humidity by using temperature equal or higher than 70°C. Almost similar characteristic times have been previously found to describe the changes during the classical drying of the cooked wet grains of couscous, in similar drying conditions.

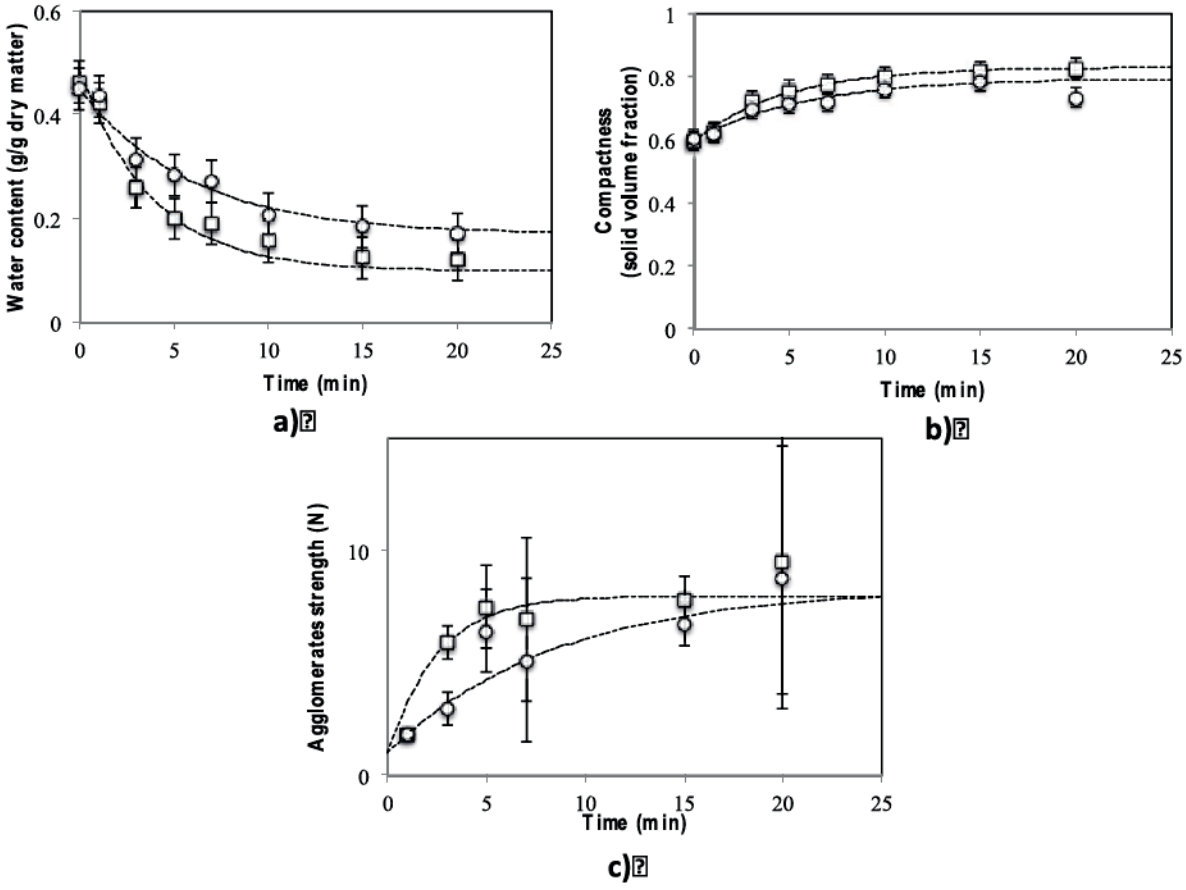


Figure IV.3.2.3. Changes in water content (a), compactness (b), force (c) and starch gelatinization (d) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage at **50°C**

O: relative humidity of 80% □: relative humidity of 50% - the dotted line is the first order equation used to fit the data

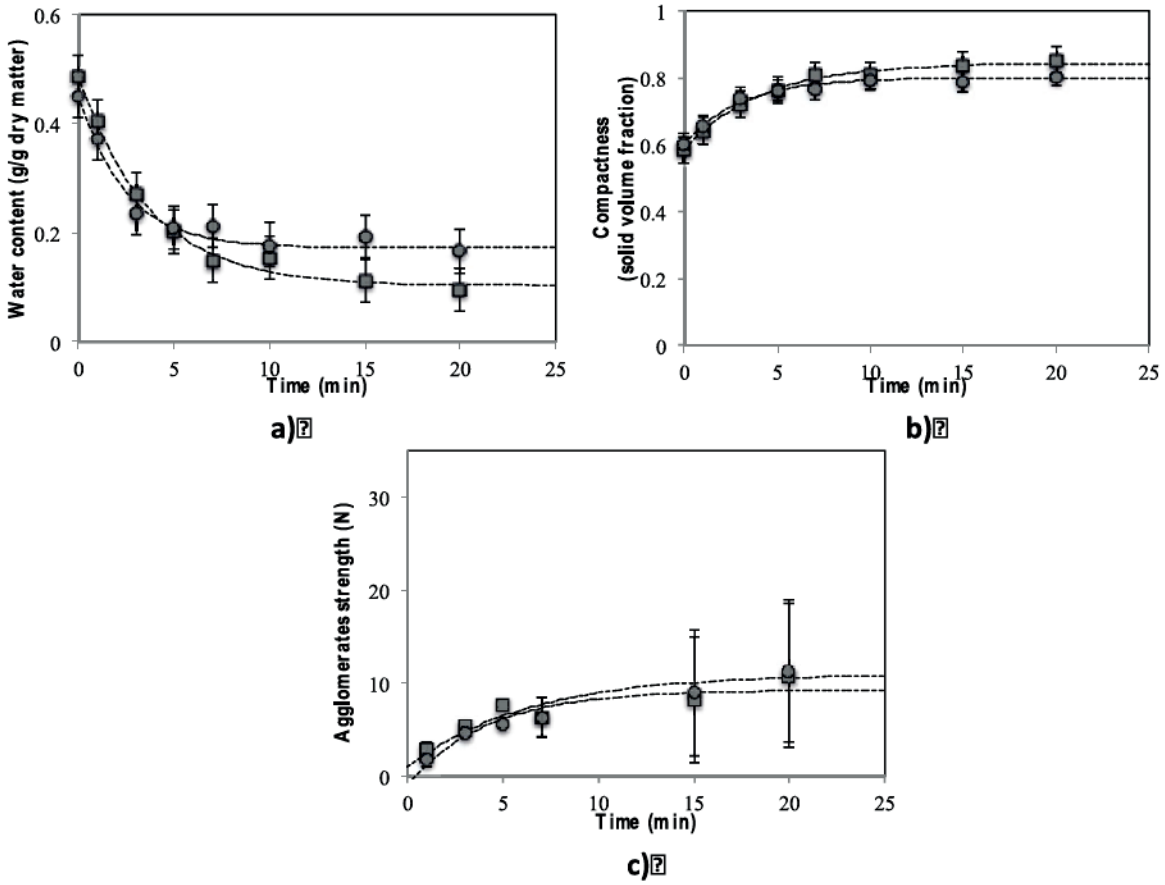


Figure IV.3.2.4. Changes in water content (a), compactness (b), force (c) and starch gelatinization (d) of wet agglomerates of durum wheat as a function of the time of the drying stage at **70°C**

O: relative humidity of 80% □: relative humidity of 50% **-** the dotted line is the first order equation used to fit the data

IV.3.2.4. Discussion

The present work allows investigating the functional roles of the direct drying of the wet uncooked agglomerates of durum wheat semolina (*i.e.* without the cooking stage), by studying the mechanisms impacting the wheat components and the granular structure as a function of the process conditions (*i.e.* temperature and relative humidity). These mechanisms are promoted by the treatments at high temperatures under different conditions of water content, and by the water transfers. The mechanisms were described by taking into consideration the specific hydrothermal conditions generated by the specific conditions of drying of uncooked wet agglomerates.

The calculated values of the characteristics times (Tables IV.3.2.1-3) of the physicochemical changes induced by the drying stage were used to describe the impact of process on the grain structure. The values of the characteristic times associated to the changes in water content and compactness are quite similar (between 2.20 and 4.08 min) and not really impacted by the drying conditions for temperatures of 50, 70 and 90°C at 50% RH and 70 and 90°C at 80% RH. Slightly higher characteristic times are observed for a temperature of 50°C at 80% RH (between 3.78 and 5.86 min).

We demonstrated that the drying temperature significantly affects the physicochemical mechanisms. An increase in the drying temperature (from 50 to 90°C) induces slight decreases of the water content and increases of the compactness of the dried couscous grains (Fig. IV.3.2.2-3). It also induces higher extends of starch gelatinization and higher agglomerates strength. In a same way, an increase of the relative humidity (at 80%) of the drying air impacts the characteristics of the grains, with a slight increase of the water content and a decrease of the compactness of the couscous grains (Fig. IV.3.2.2-3). The starch gelatinization and the agglomerate strength are also slightly improved at higher relative humidity.

The changes in the characteristics of the grains during the drying are promoted by the heat treatments of the grains at different water contents and by the mass transfers due to water exchanges with the surrounding atmosphere. We supposed that the mechanisms of heat transfers inside the grains are very fast and the temperature of the grains is rapidly uniform and equal to the process temperature. The changes in water contents are controlled by the process parameters. During the drying stage, the decrease in water content of the grains is due to water vapour desorption due to the low relative humidity conditions. The final values of water content are related to the equilibrium water desorption isotherms of the wheat components of durum wheat semolina.

To describe the physicochemical mechanisms involving the wheat components, we use the state diagram of the durum wheat semolina (Abecassis et al., 2012) (Fig. IV.3.2.4). The hydration of the semolina particles allows the passage over the glass transition for the wheat components, starch and proteins. During processing, the first stages of agglomeration of the native particles and rolling generate the wet agglomerates with high water content (Fig. IV.3.2.4). The drying stage first generates a rapid increase in the temperature (at 50, 70, or 90°C), without affecting the water content of the grains (Fig. IV.3.2.4). At the beginning of the drying stage, the drying temperature is critical to promote, or not, some physicochemical mechanisms. When using a drying air at 90°C, the temperature is enough high to promote the reactions of starch gelatinization and protein reticulation. On the other hand, when using drying air at 50°C, the temperature is just enough high to partially initiate the starch gelatinisation or protein reticulation. However at 50°C, the rapid decrease in water content (Fig. IV.3.2.2a) does not give enough time to these reactions. During the most part of the drying stage at 70 and 90°C, the wheat components are still over the glass transition curve and thus display a rubbery plastic behaviour. The final stage of cooling conducts to the stable dried grains, with the wheat component in a glassy rigid state. When considering the drying at 50°C, the wheat components pass through the glass transition curves and are in the glassy state before the end of the drying stage, when the water content reach about 0.2-0.25 g/g.

The state diagram (Fig. IV.3.2.4) indicates that the process needs a minimal temperature of 70°C and a minimal value of water content of 0.40 g/g dry matter to significantly promote the gelatinization of the starch granules. During the drying stage, the maximum values of extent of starch gelatinization are already reached after 1 minutes of drying, whatever the temperature. The selected conditions of the drying temperature and the rapid decrease of the water content do not allow starch gelatinization to

largely occur. 50°C is the lower limit to initiate the starch gelatinisation mechanisms. At 70 and 90°C, the water content is enough high but the rapid decrease in the water content does not allow reaction occurring and promote large extent of starch gelatinisation. The higher values of starch gelatinization were observed at high temperature (90°C) and high relative humidity (80%). Due to the rapid heat transfers and rapid decrease of water content, the mechanisms cannot induce the complete gelatinization (>80%) during the drying stage.

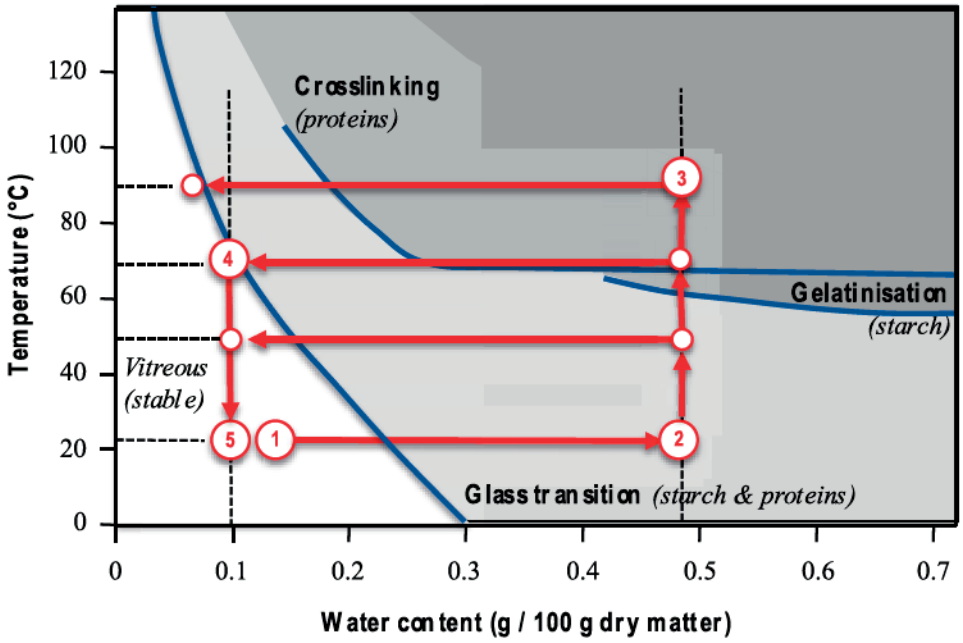


Figure IV.3.2.4. Schematic representation of the "temperature - water content" state diagram for durum wheat semolina (adapted from Abecassis et al., 2012) - technological ways to describe couscous processing on the state diagram for durum wheat semolina, with native semolina (1), wet agglomerates (2), drying stage at 50, 70, 90°C (3-4), and dried final grains (5)

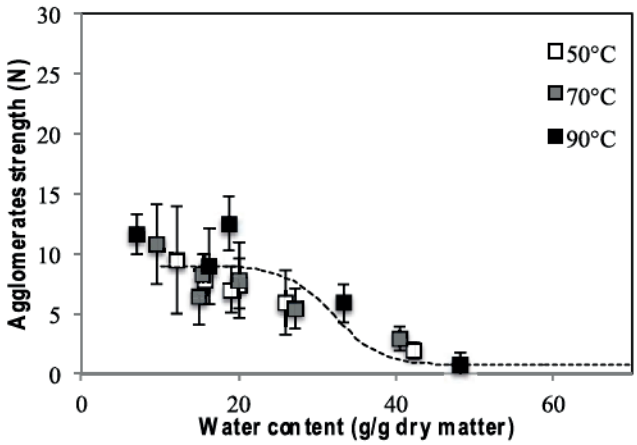


Figure IV.3.2.4. Impact of the drying temperature (50, 70, or 90°C) on the changes in the mechanical strength of wet agglomerates of durum wheat for a relative humidity of 50%, as a function of the water content of the drying stage - the dotted line is the logistic model

The measured values in the mechanical strength (compression force) of the grains (measured at 20°C) during the drying stage (Fig. IV.3.2.2-3) are plotted as a function of their water content (Fig. IV.3.2.5). Changes in mechanical strength as a function of water content can be described by using the logistic model (Eq. IV.3.1.3). The logistic model fitted quite well the experimental data ($R^2 = 0.85$), with the following calculated values of parameters: A = 3%, W_i = 32%, Y_H = 9 N; Y_L = 0.7 N. In comparison, the value of the final maximum mechanical strength (Y_H = 22 N) was higher when describing the drying of the cooked grains (cf. Paragraph IV.3.1). The cooking stage seems to improve the mechanical resistance of the dried agglomerates after the drying. These results indicated that the starch gelatinization help to strengthen the structure of the final dried grains.

The structural characteristics of the grains are impacted during the drying by the mass transfers due to water exchanges with the surrounding atmosphere. These transfers affect the water content, compactness, and diameter of the agglomerates. The changes are discussed by using the hydro-textural diagram (Ruiz et al., 2011) (Fig. IV.3.2.5). The initial wet agglomerates are located on the saturation curve, as the porous grains are saturated by water (Fig. IV.3.2.5). During the drying stage, the decrease in water content of the wet grains is concomitant with an increase of their compactness (Fig. IV.3.2.5). The drying stage promotes a strong positive impact on the compactness of the grain whatever the initial water content of the agglomerates. Whatever the drying conditions (temperature and relative humidity), the mechanisms of water desorption are associated with some mechanisms of densification of the structure. The grains remain saturated during the drying that does generate internal porosity and the range of variation of the compactness is essentially due to the remove of the air trapped and the particle arrangement. The changes in the diameter of the grains are coupled with changes in water content and compactness, so that the grains remain saturated. The shrinkage of the grains during the drying stage is conducted without generating internal porosity, because of the plasticization of the components above the glass transition and the plasticity of the matter. The ability of the durum wheat matter to be deformed is not a limiting phenomenon. The range of variation of the compactness is essentially due to the particle arrangement. The drying stage induces shrinkage of the couscous grains and improves their mechanical resistance. The phenomenon of densification depends both on the drying temperature and on the initial water content of the agglomerates because the molecular mobility is enhanced by an increase in temperature (*i.e.*, thermal plasticization) or water content (*i.e.*, water plasticization).

The present results can allow proposing some specifications to improve the mechanisms during the drying without cooking. High temperature of drying and high water content of the wet agglomerates are efficient factors to initiate the starch gelatinization mechanisms and to strengthen the structure. In the present study, the drying diagram has been conducted with only one stage, at constant temperature and relative humidity along the process. Different drying diagrams could be proposed with several successive stages, in a similar ways as the diagrams used for the drying of pasta. This kind on drying diagrams could be suggested to extend the gelatinization mechanisms of the starch granules. The first stage could be conducted at high temperature (to initiate the physicochemical reaction) and at high relative humidity (to limit the water desorption phenomenon). In these conditions, the wheat

components could be above the glass transition and the mechanisms of starch gelatinization and protein reticulation could occur. The second stage could be conducted using a lower relative humidity to promote the water desorption mechanisms and to dry the grains. .

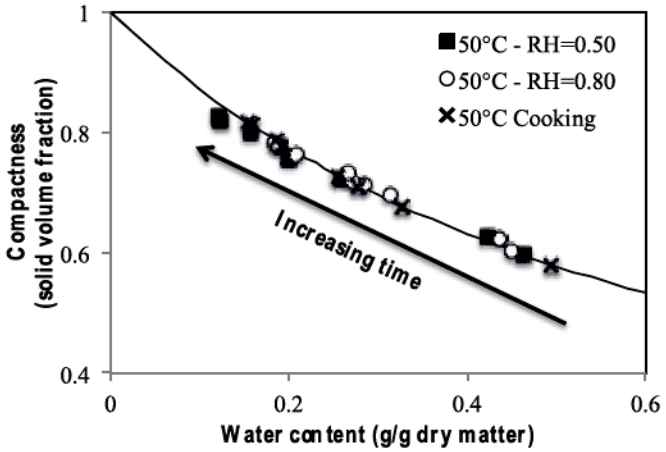


Figure IV.3.2.5. Hydro-textural description (compactness vs. measured water content) of the wet grains of durum wheat during the drying stage (a) with a previous cooking stage and (b) at different relative humidity (50 and 80%) - the saturation curve is dotted points

IV.3.2.5. Conclusion

The paper investigated the drying of uncooked couscous grains of durum wheat semolina. We studied the physicochemical mechanisms promoted by the drying stage at different relative humidity's (50 or 80%) and temperatures (50, 70, or 90°C) during. The kinetic of the physicochemical changes was described using a first order equation. The calculated values of characteristics times were used to discuss the dependence of the mechanisms. We demonstrated significant effect of a previous cooking stage, temperature and relative humidity, on the water content, compactness and starch gelatinization of the grains. The grains remain on the saturation curve all along the process, which proves that the variation of the compactness is essentially due to the arrangement of the internal structure (even with no previous cooking stage). The transfer of water is the limiting phenomena. It promotes the compaction of the structure and decreases the diameter of the grains. As the transfer of water is relatively fast at the beginning of the drying stage, it does not allow a complete starch gelatinization. Our results are in good agreement with the state diagram of the durum wheat components. A low starch gelatinization impacts the final agglomerates strength at the end of the drying stage. It was possible to define a specification for the drying diagram without cooking.

Acknowledgments *- The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR-13-ALID-0002-01) for its financial support through the program "Dur Dur".*

IV.4. Fluidized bed Agglomeration

Le lit fluidisé est un appareil utilisé (entre autre) pour l'agglomération humide de poudres alimentaires et non alimentaires. Il a beaucoup été étudié dans le cas de poudres alimentaires pour l'agglomération de particules laitières. Hafsa et al. (2015) ont initié des travaux sur l'agglomération de semoule de blé dur en lit fluidisé. Ils ont montré que l'agglomération de semoule de blé dur est possible avec ce type d'équipement et ils ont caractérisé les agglomérats (propriétés de structure et propriétés fonctionnelles) pour une condition d'agglomération en sortie d'appareil. Dans le cadre du programme de l'EIR-A animé par Agreenium, nous avons organisé au cours de la thèse un échange avec le laboratoire de Particulate Engineering de Cork (Irlande). Afin de poursuivre les travaux commencés, nous avons voulu approfondir avec eux l'étude sur un procédé innovant d'agglomération de particules de semoule dans un lit fluidisé. L'objectif de ce travail a été l'étude *(i)* des mécanismes d'agglomération dans un lit fluidisé et *(ii)* de l'impact du procédé sur les propriétés de structure des agglomérats de couscous.

La présentation des résultats d'agglomération en lit fluidisé est présentée sous la forme d'une publication : Bellocq B., Duri A., Ruiz T., Cuq B. 2017. Impact of fluidized bed granulation on structure and functional properties of the agglomerates based on the durum wheat semolina. Innovative Food Science and Emerging Technologies (accepted for publication).

IV.4.1. Impact of fluidized bed granulation on structure and functional properties of the agglomerates based on the durum wheat semolina

IV.4.1.1. Introduction

Wet agglomeration is based on the coupling of two phenomena: mixing the powder and incorporating a binder. The structuration of associated sticky particles takes place under shear stress (Iveson et al., 2001). Agglomeration of powders using a fluidized bed has been largely investigated either in batch or in open mode (Boerefijn and Hounslow, 2005; Nienow, 1995; Philippsen et al., 2015; Rambali et al., 2001; Rieck et al., 2015; Turchiuli et al., 2005; Zhai et al., 2009). This technology can be used to agglomerate powders by spraying a binder solution directly onto the fluidised powder bed (Saleh and Guigon, 2009c; Turchiuli et al., 2005a). The growth mechanisms of the agglomerates depend on the ability of process parameters to activate the surface reactivity of particles and promote collisions. The liquid binder is usually distributed by means of an atomising nozzle, above or inside the powder bed. A vertical air stream agitates the fluidized particle's bed and contributes to the heat and moisture transfers. Several simultaneous and/or competitive mechanisms occur (wetting/drying, growth/rupture, swelling/shrinkage, consolidation, chemical reactions…) and contribute to the agglomeration (Leuenberger et al., 2009). Spray nozzle orientation and design, binder flow rate, flows and distribution of the fluidization gas inside the processing chamber, relative humidity, and temperature are the multiple process parameters involved (Jacob, 2007; Pathare et al., 2012). As the binding liquid is sprayed as small droplets, the agglomeration mechanisms are initiated by the coating of the native particles. The formation of initial nuclei is followed by the coalescence mechanisms (Banjac et al., 1998; Barkouti et al., 2013; Turchiuli et al., 2013). The pneumatic agitation of the

powder bed produces collisions between the wetted particles that could coalesce by the formation and the persistence of liquid bridges. The growth of granules is also affected by the rupture mechanisms of the structures due to shear stress between the wall and/or breakage induced by the intensity of the collisions. The distinction between these coupled phenomena in terms of rate and spatial localisation in the reactor represents a challenge to improve agglomeration (Hemati et al., 2003; Smith and Nienow, 1983). The shape and texture of the agglomerates are essentially depending on the mechanical environment generated in the reactor. Due to the low shear stresses developed by the air flow, the granules formed using a fluidised bed are generally more porous and have more irregular shape than those produced by using rotating drums and mechanical shear mixer (Jacob, 2007; Ji et al., 2017; Morin and Briens, 2014).

The food powders can be agglomerated to improve their properties (*e.g.* size distribution, shape, flowability, instant properties, colour, *etc.*) (Barkouti et al., 2013; Dacanal and Menegalli, 2010; Palzer, 2011). Fluid bed agglomeration has been used to improve the instant properties and the flowability of dairy powders, instant coffee, cocoa beverages, or culinary powders (Palzer, 2011; Turchiuli et al., 2013). The binder solution is simply water when processing amorphous water-soluble particles, but viscous liquids are used to agglomerate crystalline water-soluble particles (Cuq et al., 2013). The agglomeration is a key operation in the elaboration of couscous grains of durum wheat semolina (Barkouti et al., 2012; Saad et al., 2011). Industrial couscous grains are made by successive operations: wet agglomeration, rolling, cooking, drying, and screening. In the industrial context, the durum wheat semolina is granulated using mechanical low shear mixers, to imitate the traditional homemade processing (Abecassis et al., 2012). Wet granulation stage is one of the critical stage that determines the production yield, the final size, shape and functionalities of the couscous grains (Barkouti et al., 2014; Hafsa et al., 2015; Hébrard, 2002; Oulahna et al., 2012; Saad et al., 2011). Only few technical and scientific works are available to rationalize the management of the process, which restricts the potential of rupture innovation by only optimization and incremental solutions.

The objective of the present paper is to explore the capability of the fluidised bed technology to produce agglomerates of durum wheat semolina. The impact of different processing conditions on the structure characteristics and functional properties of the agglomerates have been investigated by experiments. Results are discussed in regard to the hydrotextural approach (Ruiz et al., 2011), in order to get a better representation and understanding of the mechanisms and relationships between process, structure, and properties.

IV.4.1.2. Material and Methods

IV.4.1.2.1. Raw materials

Two different durum wheat semolina were used as raw material for the agglomeration experiments: standard industrial semolina (Panzani group, France) and coarse semolina (UMR IATE, France). Semolina were stored in hermetic containers at 4°C until experiments were carried out. Semolina were characterized using standardized methods (Table IV.4.1.1). The water content was determined according to the approved method 44-15A (AACC, 2000), by weighing after oven drying at 105°C for 24 h. The characteristics values of particle diameters were measured by a laser particle size analyser (Coulter TMLS 230, Malvern, England) at room temperature. The semolina true dry density (ρ_s^*) was measured by using a nitrogen pycnometer (ULTRAPYC 1200e, Quatachrom) after oven drying at 105°C for 24 h. The semolina apparent density (ρ) was measured by a hydrostatic balance (RB 360, WC Heraeus GmbH, Hanau, Germany). From these values, the compactness of the semolina particles at each water content was calculated as: $\phi_P = \frac{\rho}{(1+w).\rho_s^*}$. The total nitrogen content (TN) of semolina was determined by the Kjeldahl method, and the crude protein content was calculated according to TN-5.7 based on the AFNOR method V 03-050 (AFNOR, 1970). All experimental measurements were carried out in triplicate.

Table IV.4.1.1.

Physicochemical characteristics of the two-selected durum wheat semolina

	Standard semolina	Coarse semolina
Water content (g/g dry semolina)	14.8 (±0.5)	15.0 (±0.5)
Protein content (g/g dry matter	12.4 (± 0.1)	11. 6 (± 0.1)
Particle diameter - d_{10} (µm)	66 (±1)	434 (±1)
Particle diameter - d_{50} (µm)	283 (±1)	619 (±1)
Particle diameter - d_{90} (µm)	542 (±4)	888 (±1)
True density	1.415 (±0.005)	1.453 (±0.003)
Apparent density	1.372 (±0.007)	1.414 (±0.006)
Compactness	0.845 (±0.009)	0.846 (±0.009)

IV.4.1.2.2. Agglomeration process

The wet agglomeration process was conducted by using a glass fluidised bed granulator (Mini-Airpro, ProcepT, Belgium) (Fig. IV.4.1.1), whereby the lower portion is conical in shape and the upper portion is cylindrical (height = 0.73 m). Water was used as the liquid binder. Water was sprayed using a nozzle in a downward direction (*i.e.* in the counter current to the air flow). The temperature of the inlet airflow was kept constant during experiments (25°C) and controlled using a temperature probe (Fig. IV.4.1.1). A constant weight of semolina (300 g) was first introduced inside the unit and was fluidized by ascendant airflow at constant rate (0.70 m^3/min) for 2 min to equilibrate the temperature. The flow rate of water was kept constant using a peristaltic pump (8 mL/min), and controlled by the continuous measurement of the weight of the water tank. The time for water addition (3, 6, 9, 12.5, or 16.3 min) was defined in regards with the amount of added water (24, 48, 72, 100, or 130 g) that was incorporated inside the reactor, in order to reach specific amount of added water (0.08, 0.16, 0.24, 0.33, or 0.43 g of added water / g of semolina), and specific values of apparent process water contents (0.24, 0.33, 0.42, 0.53, or 0.65 g of water / g dry matter).

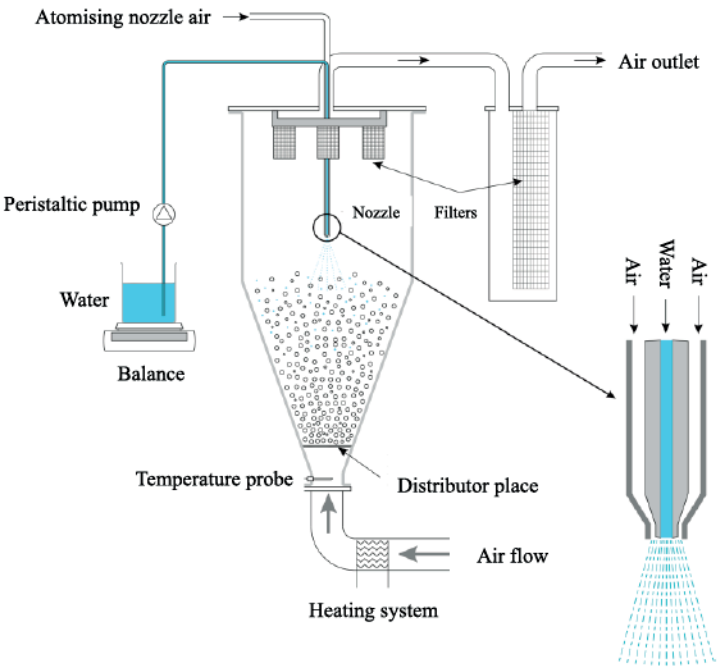


Figure IV.4.I.1. Schematic description of the fluidized bed equipment

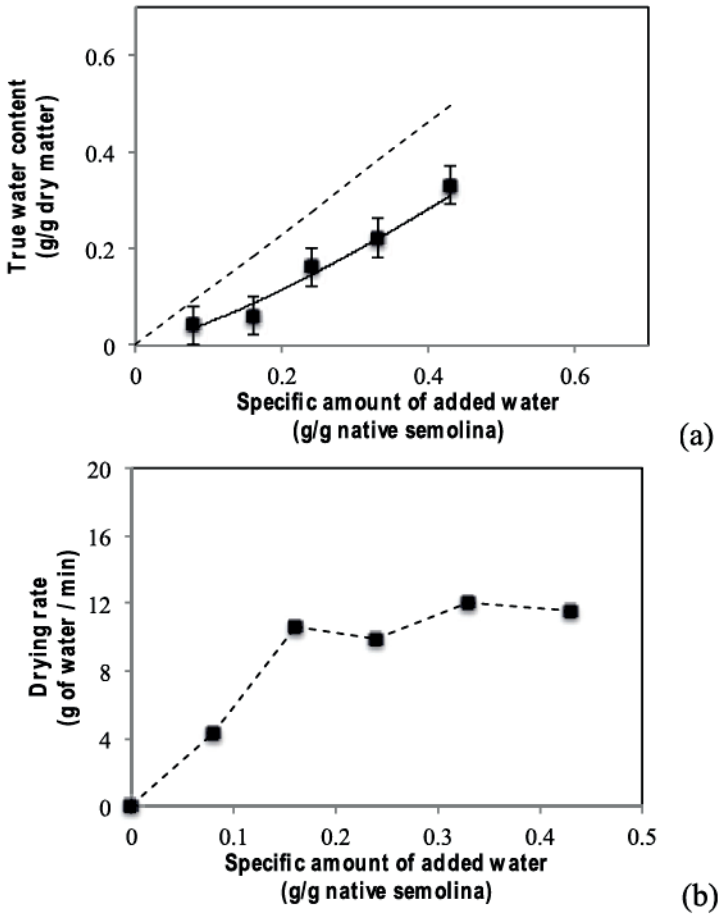


Figure IV.4.1.2. Experimental curves of the true water contents (a) and the drying rates (b) as a function of the specific amount of added water in the fluidized bed - the dotted line in figure (a) corresponds to the apparent process water content

Due to the simultaneous drying mechanisms occurring during processing, the values of the apparent process water content were significantly higher than the true water content measured in the bed at the end of the process (Fig. IV.4.1.2). An almost constant value of the drying rate (11.0 ±0.9 g of water / min) was determined whatever the process conditions. Immediately after the end of the water addition stage, the wet agglomerates were collected. Trials were conducted in triplicate.

IV.4.1.2.3. Cooking and drying process

Immediately after the agglomeration stage, the collected wet agglomerates were sieved over a column of 2 metallic sieves of decreasing mesh (1.4 and 0.85 mm) for 2 min at ambient temperature. The sieve column was softly shaken manually to limit the possible breakage of the wet agglomerates. The range of mesh size was determined in regards with the capacities of the experimental equipment and with the values classically used for the industrial production of the couscous grains. The wet agglomerates that were collected over the 0.85 mm sieve, were immediately spread as a thin layer (about 3 mm) over a stainless steel plate inside a steam cooker (Kenwood rice cooker RC310), and steamed for 10 min at 100°C using saturated steam at atmospheric pressure. The steamed agglomerates were immediately collected, spread as a thin layer (about 3 mm) over stainless steel mesh and then drying in an oven (GallenKamp Plus II oven 150L) for 25 min at 50°C and 15% relative humidity. The dried agglomerates were collected and stored inside hermetic plastic cups until characterization.

IV.4.1.2.4. Characterization of the agglomerates

Water content - The water content (w) of agglomerates (dry base) was determined on 3-5 g samples, by a drying method in an oven at 105°C for 24 h (AACC, Method 44-15A): $w = m_w/m_s$, m_w is the mass of water (g) and m_s is the mass of dry matter (g) in the sample. Mean values were determined from triplicate.

Compactness - The compactness of the agglomerates (ϕ) is calculated using Eq. (IV.4.1.1).

$$\phi = \frac{V_s}{V} = \frac{m_s}{V.\rho_s^*} \qquad \text{(Eq. IV.4.1.1.)}$$

Where V_s is the solid volume of the agglomerate (cm^3 of solid matter); V is the total volume of the agglomerate (cm^3); m_s is the solid mass (g of dry matter), ρ_s^* is the solid real density of durum wheat semolina. The apparent volume (V_a) of the agglomerates was measured by using a Camsizer (Retsch, Germany) digital image analyser. The solid mass (m_s) was measured with a digital balance with sensitivity of 0.001 g. In the case of unsaturated structures, the compactness is a function of the water content and the saturation degree ($S=V_w/V_{void}$) and for strictly wet media ($0 < S \leq 1$) Eq. (IV.4.1.2) can be written as follow:

$$\phi(w,S) = \frac{1}{1+d_s^*\frac{w}{S}} \qquad \text{(Eq. IV.4.1.2.)}$$

Size distribution of the wet agglomerates - The wet agglomeration process generates agglomerates with dispersed sizes, which were measured directly after the agglomeration stage. Size distribution was determined by sieving all the collected agglomerates over a column of 7 metallic sieves of

decreasing mesh size (3.35, 2.8, 2.36, 1.40, 0.85, 0.71, and 0.425 mm). The sieve column was manually shaken for only 1 min, to limit the possible particle breakage. The size distribution was obtained by weighing the mass of agglomerates remaining on each sieve. The weight distribution according to size criteria was expressed as the percent of total weight. Even if the particle size distribution curves were not fully unimodal, the apparent median diameter (d_{50}) and apparent span: $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$, of the size distribution were calculated as global apparent descriptors. The agglomerates, that were collected on the sieves of 0.425, 0.71, 0.85, 1.40, or 2.36 mm mesh size, were characterized by their size, water content, and compactness.

Median diameter of the dried agglomerates - Samples of agglomerates (about 10 g) were used to determine the median diameter on each sieve, using the Camsizer (Retsch, Germany) digital image analyser. Particle size distributions were characterized by the value of the median diameter. Measurements were conducted in triplicate.

Agglomerates shape – The sphericity of the dried agglomerates was determined by using the Camsizer (Retsch, Germany) digital image analyser. Samples of agglomerates (about 10 g) were used. Sphericity is an aspect ratio defined by the measurement of the length/width relationship. The values range between 0 (perfect circle) and 1 (needle shaped object). Measurements were conducted in triplicate.

Agglomerates microstructure - The microstructure of the dried agglomerates was observed by scanning electron microscopy (Inspect F by FEI operating at 5kV). A sample of agglomerates was dispersed on a conducting carbon tape prior to analysis. Representative pictures were selected for each sample.

Agglomerates strength - The strength of the dried agglomerates was measured using a texture analyser (TA-HD Plus, Stable Micro Systems, UK). The agglomerates strength is defined as the force needed to compress one agglomerate over a distance of 400 µm. A 5 kg load cell was used with a compressive probe operating at 100 $\mu m.s^{-1}$. Texture experiments were conducted by characterizing the agglomerates one by one. It was thus not possible to characterize a large number of agglomerates. A restricted number of agglomerates (about 10) having some homogeneity in their size, to be statistically representative of the sample were tested. Mean values were determined from 10 measurements.

IV.4.1.2.5. Statistical analysis

The statistical significance of results was assessed using single factor analysis of variance (ANOVA). Multiple comparisons were performed by calculating the least significant difference using Microsoft Excel 2010, at a 5% significance level.

IV.4.1.3. Results

IV.4.1.3.1. Characterisation of the wet agglomerates after the agglomeration stage

The wet agglomeration process by using the fluidized bed was first conducted with the standard semolina and apparent process water content of 0.53 g/g dry matter. As expected, the wet agglomerates collected after the fluidized bed processing were characterized by high values of measured water content (0.37 ±0.04 g/g dry matter) and low values of compactness (0.41 ±0.04), compared to the native semolina particles (0.148 g/g dry matter and 0.85, respectively). The size distribution of the wet agglomerates (Fig. IV.4.1.3) demonstrated a relatively large range in the diameter values (from 500 to more than 4000 µm), with median diameter (d_{50}) close to 650 µm (±3 µm). The value of the span (2.27) was relatively low, indicating that the majority of the grains were centred on the median diameter. The mass fraction of the wet agglomerates with diameter ranging between 1000 and 2000 µm was about 40%. This value is almost similar than the mass yield usually observed during the industrial processing of the couscous grains using low shear mechanical mixers (Abecassis et al., 2012).

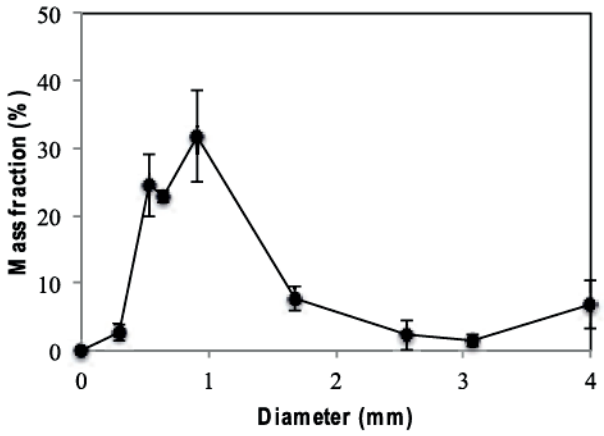


Figure IV.4.1.3. Distribution curve of the diameters of the wet agglomerates processed by the fluidized bed (experiments using standard semolina and true water content of 0.37 g/g dry matter)

The physicochemical characteristics of the wet agglomerates were measured for each class of agglomerates as a function to their diameter (Fig. IV.4.1.4). The water content of the wet agglomerates was positively correlated with their diameter (Fig. IV.4.1.4a). Similar positive correlations have already been observed for the wet agglomerates of durum wheat semolina processed by the mechanical mixing under low shear conditions (Barkouti et al., 2012; Bellocq et al., 2017).

The increase in the median diameter of the wet agglomerates is also associated to changes in compactness (Fig. IV.4.1.4b). The compactness of the wet agglomerates decreases (from 0.43 to 0.36) with an increase in the median diameter until 1600 µm. Above 1600 µm, the compactness tends to increase as the median diameter increases.

The results also demonstrated a positive relationship between the values of sphericity and the diameter of the wet agglomerates (Fig. IV.4.1.4c). The large agglomerates were more spherical than the small

ones. It should be noticed that the wet agglomerates with diameters between 1000 and 2000 µm were characterized by high values of sphericity (0.82 - 0.87) and low values of compactness (0.36 - 0.40), when compared to the wet agglomerates obtained by using a low shear mechanical mixer (0.67 and 0.61, respectively) (Bellocq et al., 2017).

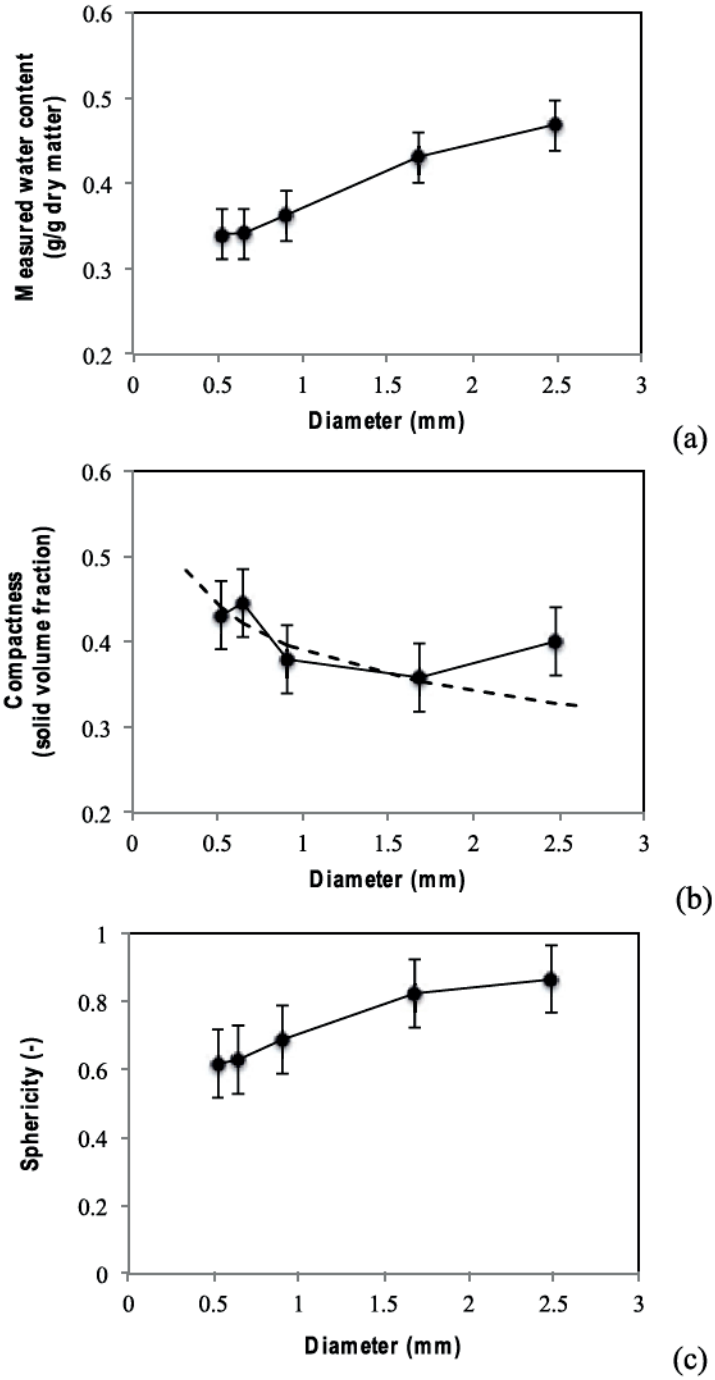


Figure IV.4.1.4. Distribution curves of the measured values of water content (a), compactness (b) and sphericity (c), as a function of the diameter of the wet agglomerates processed by the fluidized bed (experiments using standard semolina and true water content of 0.37 g/g dry matter) - the dotted line in figure (b) is the fractal model using Eq. (IV.4.1.3)

IV.4.1.3.2. Impact of the process parameters of the fluidized bed

Impact of the amount of water

The impact of the water content of the bed was studied by applying different processing times for water spraying. The physicochemical characteristics of the wet agglomerates were measured for each class of wet agglomerates according to their diameter, and plotted for the different measured true water content from 0.19 to 0.48 g/g dry matter (Fig. IV.4.1.5-7). Increasing the water content did not significantly change the shape of the curve of the size distribution, but generated higher amounts of the fractions of the large agglomerates (Fig. IV.4.1.5). An increase in the water content improved the capability of the fluidised bed to produce higher amounts of the wet agglomerates of larger diameter. The mass fraction of agglomerates between 1000 and 2000 µm reached a value of 66% when processed at 0.48 g / g dry matter.

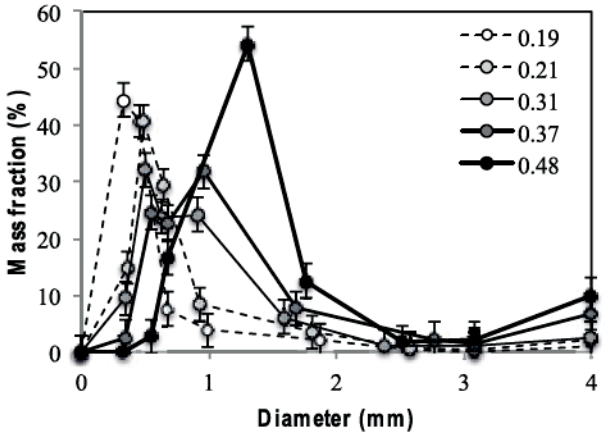


Figure IV.4.1.5. Impact of the true water content on the distribution curves of the diameters of wet agglomerates processed by the fluidized bed (experiments using standard semolina)

An increase in the water content induced an almost linear increase in the median values (d_{50} from 349 µm to 1032 µm) of the diameter (Fig. IV.4.1.6). The values of the diameter span were constant (from 1.49 to 1.10) with true water content from 0.24 to 0.42 g/g dry matter. It then increased with values of water content higher than 0.37 g/g dry matter.

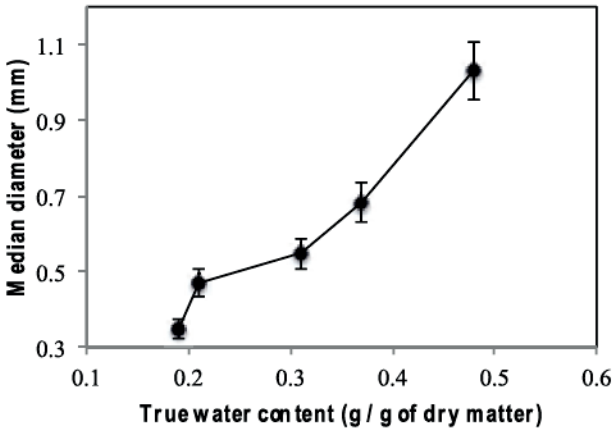


Figure IV.4.1.6. Impact of the true water content on the median diameters (d_{50}) of wet agglomerates processed by the fluidized bed

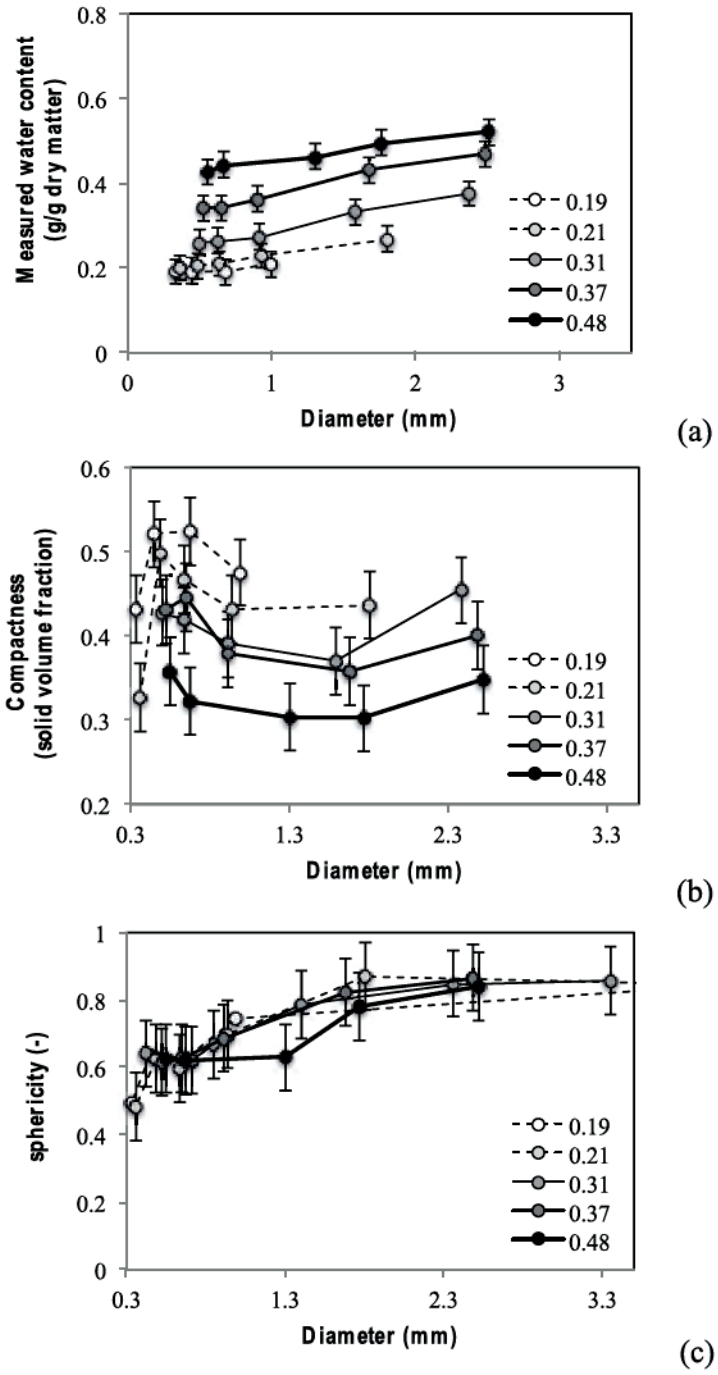


Figure IV.4.1.7. Distribution curves of the measured values of the water content (a), compactness (b), and sphericity (c), as a function of the diameter of wet agglomerates processed by the fluidized bed at different true water contents (from 0.19 to 0.48 g / g of dry matter)

The relationships between the diameter and measured water contents for the different wet agglomerates did not change (Fig. IV.4.1.7a), whatever the amount of added water. There were positive relationships between diameter and water content of the wet agglomerates. The large agglomerates were more hydrated than the small ones.

The impact of an increase of the amount of added water on the measured water content of the wet agglomerates depended on their diameter (Fig. IV.4.1.7a). Increasing the amount of water largely increased the water content of the agglomerates. We could suppose that the fluidized bed homogeneously distributed the added water over the small grains and the grains of intermediate size.

An increase in the amount of added water decreased the compactness of the wet agglomerates, irrespectively of their diameter. Nevertheless, increasing the amount of added water did not significantly change the dependence observed previously, between the compactness and the diameter of the wet agglomerates (Fig. IV.4.1.7b). The compactness decreased with an increase in the median diameter until a median diameter close to 1600 µm. The compactness then slightly increase with an increase in diameter above 1600 µm. Similar phenomena were observed whatever the amount of added water added during processing.

Whatever the amount of added water, the large agglomerates were more spherical than the small ones (Fig. IV.4.1.7c). An increase in the amount of water did not have a significantly impact on the sphericity of the wet agglomerates. The wet agglomerates were characterized by the same values of sphericity, depending on their diameter.

Impact of the particle size of the native semolina

We evaluated the influence of the diameter of the native raw material, by comparing the agglomeration behaviour of the standard semolina (d_{50} = 280 µm) and coarse semolina (d_{50} = 619 µm) (Fig. IV.4.1.8-9). It was possible to produce wet agglomerates by the fluidised bed using the coarse semolina. Using coarse semolina favoured the production of larger wet agglomerates (Fig. IV.4.1.8), with higher value of median diameter (d_{50} = 1273 µm) and similar span (2.11), when compared to those previously determined using the standard semolina (d_{50} = 650 µm and span = 2.27). It is recognized that the wet agglomeration process increases the diameter of the structures of approximately a decade, regarding to the size of the native particles (Ruiz, 2012).

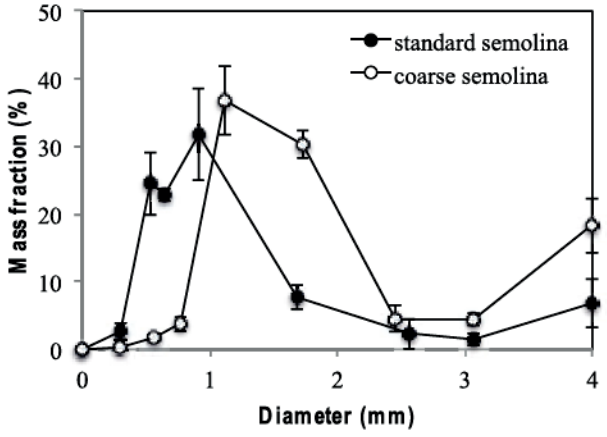


Figure IV.4.1.8. Impact of the diameter of the semolina on the distribution curves of the diameters of wet agglomerates processed by the fluidized bed

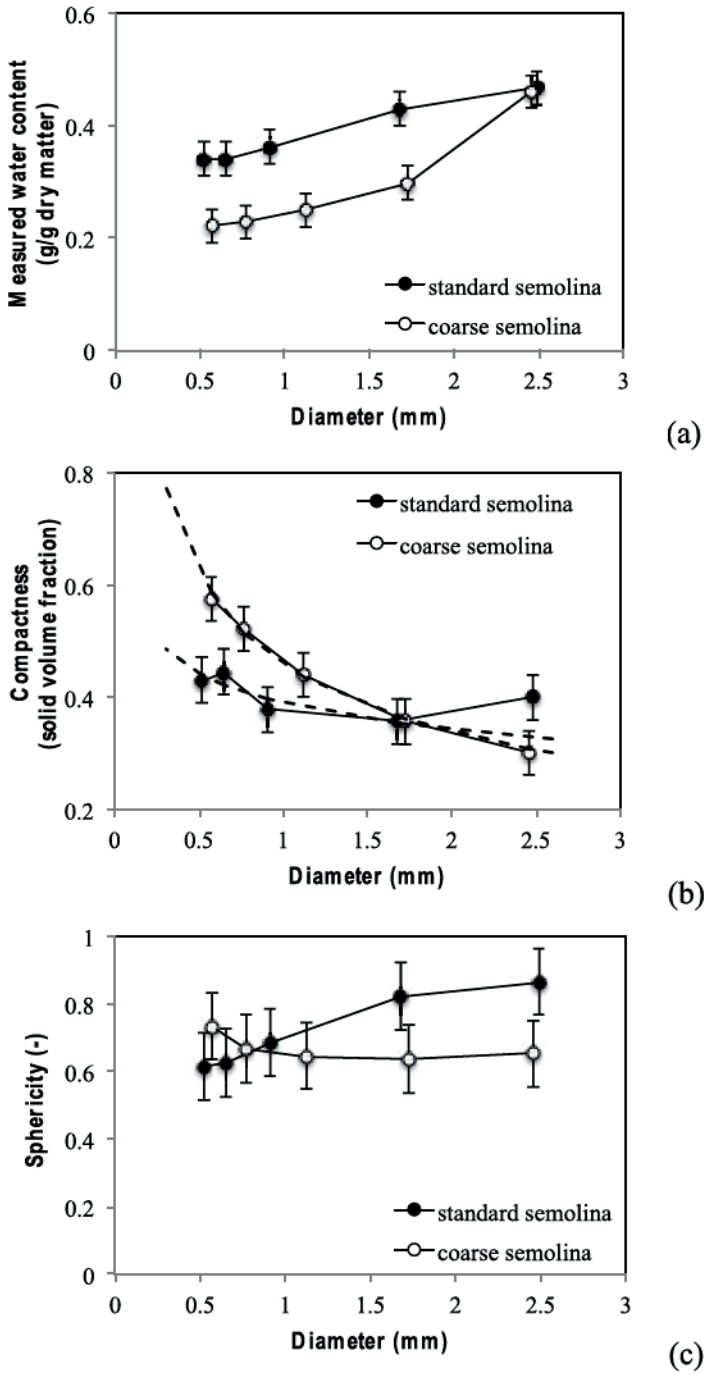


Figure IV.4.1.9. Impact of the diameter of the particles of semolina on the values of water content (a), compactness (b), and sphericity (c) as a function of the diameter of wet agglomerates processed by the fluidized bed - the dotted lines figure (b) is the power law model using Eq. (IV.4.1.3)

Using the coarse semolina gave wet agglomerates with lower values of water content and compactness (Fig. IV.4.1.9a-9b). By incorporating the same amount of water in the fluidized bed (100 g), we could expect the same measured water content in the bed and for the wet agglomerates at the end of the wet agglomeration, whatever the type of semolina. However, the measured water content of the collected powder is close to 0.30 ±0.04 g/g dry matter, which is broadly lower than the value measured using the standard semolina (0.37 ±0.04 g/g dry matter). The lower values of compactness of the wet

agglomerated of coarse semolina could lead to higher water evaporation mechanisms during fluidized bed processing and to lower values of water content.

Using the coarse semolina significantly affected the values of sphericity (Fig. IV.4.1.9c). A slight decrease in the values of sphericity was observed from the small to the large wet agglomerates, while a positive relationship was demonstrated for the standard semolina. The large agglomerates were less spherical than the small ones. It could be more difficult to form a spherical grain with fewer and larger particles.

IV.4.1.3.3. Characterisation of the agglomerates after cooking and drying

After sieving, the wet agglomerates that were collected between the sieves 850 and 1400 µm were processed by two successive stages: steam cooking and final drying. The characterization of the agglomerates was conducted after the cooking stages and after the final drying stage (Fig. IV.4.1.10 and Table IV.4.1.2).

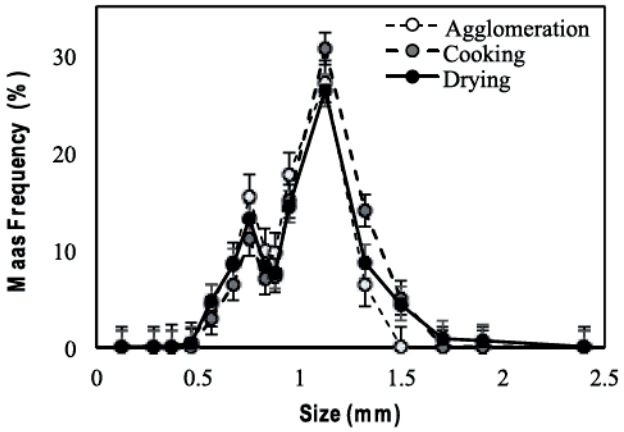


Figure IV.4.1.10. Distribution curves of the diameters of the agglomerates after the agglomeration, cooking and drying stages (experiments using standard semolina and true water content of 0.37 g/g dry matter)

Table IV.4.1.2.

Physicochemical characteristics of the agglomerates after the cooking stage and after the drying stage

	d_{50} (mm)	Span (-)	Water content (g / g dry matter)	Compactness (-)	Sphericity (-)
Wet	0.91 *(±0.05)* [a]	0.47 *(±0.02)* [a]	0.36 *(±0.02)* [c]	0.38 *(±0.02)* [b]	0.687 *(±0.02)* [c]
Cooked	1.00 *(±0.01)* [b]	0.53 *(±0.02)* [b]	0.45 *(±0.06)* [d]	0.30 *(±0.03)* [a]	0.572 *(±0.05)* [a]
Dried	0.95 *(±0.02)* [a]	0.64 *(±0.02)* [c]	0.14 *(±0.01)* [b]	0.49 *(±0.04)* [c]	0.662 *(±0.01)* [b]
Industrial	1.60 *(±0.01)* [c]	0.56 *(±0,.1)* [b]	0.10 *(±0.01)* [a]	0.81 *(±0.04)* [d]	0.844 *(±0.01)* [d]

The steam cooking stage and the drying stage did not change the shape of the distribution curves of the diameters of the agglomerates of semolina (Fig. IV.4.1.10). The size distribution of the wet agglomerates was almost fixed by the wet granulation stage (Table IV.4.1.2) and only slightly affected by the steam cooking stage and by the drying stage. The median diameter of the wet agglomerates (d_{50} = 910 µm) was slightly increased by the subsequent steam-cooking stage (d_{50} = 1000 µm) due to partial

water absorption and swelling mechanisms. The final drying stage slightly reduced the median diameter of the agglomerates through possible shrinking mechanisms (d_{50} = 950 µm). The results also demonstrated that the span of the distribution of the diameters of the wet agglomerates (0.47) was slightly increased by the cooking stage (0.53) and by the drying stage (0.64). It could be associated with some breakage or collapse mechanisms generated by these two stages that increase the range of the diameters. The present results indicated that distribution of the diameters of the agglomerates of durum wheat was mainly controlled by the agglomeration process stage. This stage greatly controlled the total yield of dried agglomerates production of correct diameter, according to the classic couscous manufacturing.

The steam-cooking stage induces swelling caused by hydration. This phenomenon reduced the compactness (0.30), which corresponds to the increase of the agglomerates volume exactly due to the increasing of the water content (0.45 g/g dry matter) (Table IV.4.1.2). The cooking stage promotes mechanisms of expansion due to water absorption and swelling mechanisms, which take place at the scale of the wheat components. These heat and mass transfers impact some physico-chemical changes under high temperature, such as starch gelatinization. The swelling of the agglomerates seemed to be more important than the progressive filling of their internal pore by the water molecules.

The drying stage induced an increase in the compactness (0.49) and a decrease in the water content (0.14) of the agglomerates (Table IV.4.1.2). The dewatering generates slight mechanisms of shrinking, which induce a decrease of the internal porosity and diameter of the agglomerates. The drying stage contributes to the texturation of the grains by the densification of the structure. We observed that swelling and shrinking mechanisms generated by the successive steam cooking and drying stages did not significantly affect the sphericity of the agglomerates (Table IV.4.1.2). Water penetration and water extraction were in isotropic condition of the transfers in this case. The sphericity ranged from 0.687 after the wet agglomeration stage and 0.662 after the drying stage. The wet agglomeration stage mainly determined the sphericity of the agglomerates.

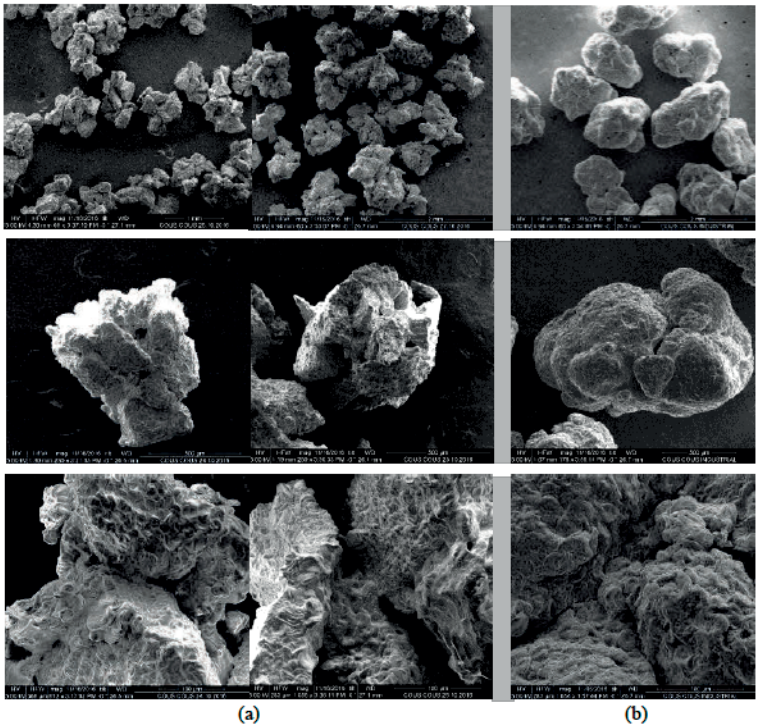
The microstructure of the dried agglomerates were observed by scanning electron microscopy and compared to those of industrial couscous grains (Fig. IV.4.1.11). The dried agglomerates of durum wheat semolina processed by the fluidised bed are characterized by irregular shape, with very rough surfaces. The native semolina particles were clearly visible and distinguishable in the dried agglomerates: they appeared as semi discrete particles glued to each other. The dried agglomerates were not dense objects as internal porosity between adjacent particles was observed demonstrating that solid fusion between the semolina particles had not occurred. On the other hand, the classical couscous grains were characterized by spherical shape with regular surfaces. The native semolina particles were poorly visible in the grains, as they were partly glued to each other. The grains were almost dense objects, as only little internal porosity can be observed demonstrating that solid fusion between the semolina particles had largely occurred.

The mechanical properties of the agglomerates were measured by the mean force required to compress them (Table IV.4.1.3). As expected, the wet agglomerates were characterized by lower values of mechanical strength. The cooking and drying stage improved the mechanical resistance of the agglomerates by increasing the mechanical strength (from 1.23 to 4.25 N). However, the force required compressing the dried agglomerates produced by the fluidized bed processing remained significantly lower than those measured for the classical couscous grains (23 N).

Table IV.4.1.3.

Comparison of the mechanical strength of the wet agglomerates and of the dried agglomerates of durum wheat semolina prepared with the fluidized bed. Comparison with commercial couscous grains

	Strength (N)
Wet agglomerates	1.23 *(±0.89)* [a]
Dried agglomerates	4.25 *(±1.19)* [b]
Classical couscous grains	22.99 *(±5.60)* [c]



(a) (b)

Figure IV.4.1.11. Microstructure of the agglomerates based on of durum wheat semolina prepared with the fluidized bed (a) and commercial couscous grains (b) at different magnifications

IV.4.1.4. Discussion

Granulation process by using the fluidized bed technology generates agglomerates of durum wheat semolina with specific functional attributes. The present results describe the potentialities of the fluidized bed to agglomerate wheat powders and investigate the process - structure - properties relationships. The final properties of the dried agglomerates can be discussed in regards with the classical couscous grains that are granulated by using low shear mixers.

IV.4.1.4.1. Agglomeration mechanisms

Whatever the investigated process conditions using the standard semolina, the growth of the wet agglomerates was characterized by one positive correlation between water contents and diameters (Fig. IV.4.1.7a), and by a specific diameter (d_{50} = 1600 µm) that separated two correlations between compactness and diameter: a negative slope at $d_{50} \leq 1600$ µm and a positive slope at $d_{50} \geq 1600$ µm (Fig. IV.4.1.4b and IV.4.1.7b).

For the $d_{50} \leq 1600$ µm, a power law (Eq. IV.4.1.3) can be used to describe the relationship between the compactness and the median diameter:

$$\phi = A_i d_i^{(D_f - 3)} \qquad \text{(Eq. IV.4.1.3.)}$$

where A_i is a prefactor characterizing the amplitude of the phenomenon and D_f is the mass fractal dimension linked to the growth mechanism of the grain. The existence of a power law relationship between the diameter and the compactness was demonstrated by Rondet et al. (2010) during the wet agglomeration of various powders (kaolin, microcrystalline cellulose, and calcium phosphate) using low shear mixers. Our results could be interpolated with a good agreement by the power law (R^2 from 0.68 to 0.98) (Table IV.4.1.4). For $d_{50} \leq 1600$ µm, the calculated values of the D_f factor (2.81 - 2.90) were not affected by the changes in the water content. We only observed a decrease in the A_i values (from 0.48 to 0.32) when increasing the water content. The prefactor is linked to the nuclei characteristics (compactness and median diameter). Explanation of this variation needs to characterise the nuclei, elementary association of semolina, which lead to the agglomerate structure by association, unrealised in this study. By this analyse, mechanism for the wet agglomeration using the fluidized bed in the cited process conditions can be considered as fractal morphogenesis for the smaller structures ($d_{50} \leq 1600$ µm). Saad et al. (2011) also found a fractal-structuring model to describe the agglomeration of durum wheat semolina using a low shear mixer with a value of $D_f = 2.89$ and $A_i = 0.56$.

For $d_{50} \geq 1600$ µm, the value of the compactness slightly increased with the diameter of the agglomerates (Fig. IV.4.1.4b and IV.4.1.7b). This increase in compactness could be associated to the values of D_f close to 3. We could then suppose that some phenomena of densification of the grains occurred for the larger structures ($d_{50} \geq 1600$ µm) due to collisions with the wall and/or between the agglomerates themselves in the fluidized bed velocity field.

Considering the coarse semolina, the calculated value of $D_f = 2.56$ was lower than this obtained with the standard semolina (Fig. IV.4.1.9b). The lower value of D_f could indicate that the agglomeration process induces less mechanisms of densification on the investigated range of water contents.

Two types of agglomeration mechanisms can be considered. The first type is the association of the native semolina particles that generates nuclei at the beginning of the wetting/mixing process. Nuclei are small and compact. Nuclei association leads progressively to form larger structures, called agglomerates. Agglomerates growth is characterized by an increase in their size and a decrease in their compactness. The power law model highlights the interdependency between compactness and size

until 1600 µm. The fractal growth model allowed describing the increase in the median diameter along with the decrease in compactness. A second type of mechanisms of densification of the grains occurred for the larger agglomerates due to collisions with the wall and/or between the agglomerates themselves. Several structures could be distinguished in the fluidized bed, according to their sizes, compactness and water contents: native semolina, nuclei, small agglomerates (<1600 µm) and large agglomerates (>1600 µm).

IV.4.1.4.2. Hydrotextural analysis

The values of the physico-chemical characteristics of the wet agglomerates can also be discussed according to the hydrotextural analysis (Ruiz, Delalonde, Bataille, Baylac, & Dupuy de Crescenzo, 2005). The wet agglomerates were considered as the superposition of three dispersed phases: solid particles, liquid and gaseous phases. Three non-reduntant variables provide a description of the system in term of mass and volume. The easiest chosen variables are generally the apparent volume (V), the mass of water (M_w) and the mass of solid (M_s). These variables were used to calculate the water content, the compactness and the saturation degree.

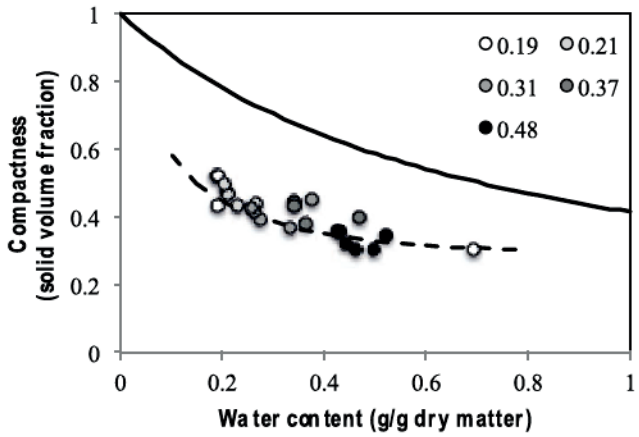


Figure IV.4.1.12. Hydrotextural description (compactness vs. water content) of the wet agglomerates of durum wheat semolina according to the true water content. The black line represents the saturation curve - the dotted line represents the model curve (Eq. IV.4.1.6)

The hydrotextural diagram is limited in its upper part by the saturation curve, which represents the maximum water content that a grain of a given constant compactness can contain (Fig. IV.4.1.12). The saturation curve is calculated using Eq. (IV.4.1.4):

$$\phi_{sat} = \frac{1}{1+d_s^* w_{sat}} \qquad \text{(Eq. IV.4.1.4)}$$

Whatever the process conditions, the values of water content and compactness measured for the wet agglomerates were located under the saturation curve (Fig. IV.4.1.12). The wet agglomerates were porous structures at the scale of semolina particles (intraparticle porosity) and between particles (interparticle porosity). The range of variation of the compactness is essentially due to the particle re-arrangment. During the add of water, the filling of the interparticle voids did not occur by a simple

remove of the air trapped. Capillary forces induced a re-arrangment between the particles that was observed by a variation of the compactness (Fig. IV.4.1.12) and the saturation degree.
The saturation degree increased (from 0.20 to 0.44) with an increase in the water content: experimental values became closer to the saturation curve (Fig. IV.4.1.12). It was observed that the growth could be fitted by a sigmoidal curve, comparable to this purposed by Ruiz et al. (2005) :

$$S(w) = 1 - \frac{1}{1+e^{\frac{w-w_m}{d}}} \qquad \text{(Eq. IV.4.1.5.)}$$

where w_m is the water content at S=50% and d is the reverse slope of the central quasi-linear section of the sigmoidal curve. The relationship between water content and compactness (Fig. IV.4.1.12) means that inter granular arrangements led to an expansion followed by a densification of the wet agglomerates. The first stage of expansion was induced with an addition of water: the compactness decreased significantly and the saturation degree slightly increased. During the second stage, the structures continued to grow up but with densification mechanisms due to the capillarity influence. During this stage, the compactness slightly changed but the saturation degree highly increased, which correspond to a high filling of the inter granular voids. By associating Eq. (IV.4.1.2) and Eq. (IV.4.1.5), it was possible to describe the variation of the compactness by the water content, the real densities of the solid and liquid phases and the two parameters (w_m and d):

$$\phi(w) = \frac{1}{1+d_s^* w\left(1-e^{\frac{w-w_m}{d}}\right)} \qquad \text{(Eq. IV.4.1.6.)}$$

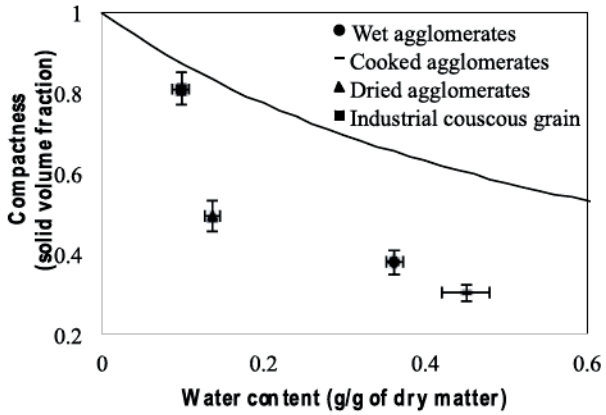


Figure IV.4.1.13. Hydro-textural description (compactness vs. water content) of the agglomerates of durum wheat semolina after the agglomeration, cooking, or drying stage - comparison with an industrial couscous grains

This relationship (Eq. IV.4.1.6) reduces to one (water content) the number of state variables necessary and sufficient to describe the structure of the wet agglomerates of durum wheat semolina produced by using the fluidized bed. In all case, our results could be interpolated with a good agreement ($R^2 = 0.93$) by the relationship using Eq. (IV.4.1.6), $w_m = 0.822$ and $d = 0.513$. Our experimental results did not investigate the properties of the wet agglomerates beyond this stage. Consolidation mechanisms could follow the stage of densification (Ruiz et al. 2005). The values of water content and compactness of the agglomerates measured after the agglomeration, cooking, and drying stages were presented on the hydro-textural diagram (Fig. IV.4.1.13). The cooked and dried agglomerates were not dense grains as

they remain under the saturation curve. It can be observed that the phenomenon of retraction during the drying stage increased the compactness of the grains. The dried grains of wheat semolina produced using the fluidized bed technology were significantly different from the classical couscous grains, which were more compact and almost saturated.

IV.4.1.4.3. Comparison with the couscous grains

The dried grains of durum wheat semolina produced by the fluidized bed were more brittle and less compact than the classical couscous grains. Using the fluidized bed technology, the water addition stage was critical as it promotes the cohesion between the particles and the physicochemical reactivity of the wheat components. The simultaneous agglomeration and drying mechanisms restricted the contribution of the physicochemical reactivity of the wheat components at the surface of particles, which were briefly in contact with water. Adhesion between the particles could mainly comes from physical forces, as capilarity forces, and liquid bridges involving superficial mechanisms. This may explain the lower compactness in the grain prepared by fluidized bed processing. It can be supposed that partial starch gelatinisation mechanisms only occurs at the interface between the particles. The resulting strength to compress the granules was significantly lower than those measured for the classical couscous grains. The classical couscous grains were more compact and consolidated by complete starch gelatinisation during the cooking stage. The fluidized bed technology produced agglomerates of durum wheat semolina with specific functional attributes, which were significantly different from those associated with the couscous grains.

IV.4.1.4.4. Process efficiency

The process efficiency is related to the mass fraction of wet agglomerates with diameter between 1000 and 2000 µm collected after the granulation stage. It is admitted that the wet agglomeration stage controls for the process efficiency of the manufacture of the industrial couscous grains (Abecassis et al., 2012). The classical low shear mixers generate low process yield, with only 30 to 40% of grains with correct diameter and high amounts of out of specification wet grains that do not have the correct diameter. In the present study, the fluidized bed technology allowed reaching high values of yield of agglomeration, close to 66%. The fluidized bed granulation process generated low dispersion in the diameter of the wet agglomerates, with a low proportion of the too large grains (only 10%), compared to those obtained by a low shear mixer (20-25%). Fluidized bed technology could be a novel way to produce high amounts of agglomerates of durum wheat semolina.

IV.4.1.5. Conclusion

The agglomeration process using a fluidized bed has been found to produce agglomerates of durum wheat with different attributes compared to those produced by granulation using low shear mixers. The dried agglomerated grains obtained using the fluidized bed were less compact than the traditional couscous grains manufactured using low shear mixers. Fluidized bed granulation allowed producing higher amounts of agglomerates with diameter between 1000 and 2000 µm. Whatever the process conditions, the relationship between the compactness and the median diameter can be described using a power law model. It allowed demonstrating that agglomeration is driven by a fractal formation process for the wets agglomerates with $d_{50} \leq 1600$ µm, and by densification mechanisms for the large agglomerates ($d_{50} \geq 1600$ µm). This result indicates that the mechanisms which occur in the fluidized bed present analogy between low shear mixer agglomeration. By using the hydrotextural diagram, we proposed a specific model to describe the interparticle arrangements, which associated expansion and densification of the wet agglomerates. The relationship between the saturation degree and the compactness of the wet agglomerates was reduced to only one state variables to describe the agglomeration mechanisms of durum wheat semolina using a fluidized bed. This result is interesting because by using Eq. (IV.4.1.3) and Eq. (IV.4.1.6), we could predict the variation of the median diameter of agglomerates at different water contents. Investigation of the nucleation phase needs to be conduct to describe the agglomeration mechanism with more details. As in the case of agglomeration in high shear mixer, nucleation regimes could be identified in relation to the hydrodynamic conditions of the fluidized bed process.

Acknowledgments - *The authors would like to thank the Agence Nationale de la Recherche (ANR ALID 2013) for its financial support through the program "Dur Dur"*

Chapitre V : DISCUSSION ET PERSPECTIVES

Le projet ANR Dur-Dur aborde la durabilité de la filière blé dur avec pour objectif général de repenser conjointement la conduite des itinéraires agronomiques pour la production de blé dur et les procédés de transformation pour la fabrication des aliments. La tâche 3 du projet ANR Dur-Dur vise à repenser les procédés dans le cas de la fabrication de grains de couscous. L'objectif est de contribuer à l'amélioration des connaissances associées aux procédés et aux mécanismes de structuration de la matière granulaire, pour améliorer durablement l'itinéraire technologique de fabrication des grains de couscous. Les résultats de ce travail de thèse sont essentiellement de nature expérimentale. Ils sont déclinés en quatre sujets de recherche, construits d'une part autour des trois principales opérations unitaires de la fabrication de grains de couscous (agglomération, roulage, cuisson/séchage) et d'autre par pour aborder un procédé innovant d'agglomération de grains de couscous par la technologie des lits fluidisés. L'ensemble de ces travaux participe à une meilleure compréhension des phénomènes impliqués au cours de la succession des opérations unitaires et au suivi et à la maîtrise de la conduite du procédé.

La démarche globale développée dans le cadre de la thèse s'appuie sur trois approches : une approche technologie et procédé, une approche mécanistique associée aux dynamiques de structuration, et une approche d'intégration multi-échelles des connaissances (échelle produit ; échelle procédé ; échelle processus). Nous proposons dans ce chapitre de discuter des points suivants :

(i) des procédés et des mécanismes de structuration générés par chacune des opérations unitaires du procédé de fabrication des grains de couscous.

(ii) du coût énergétique des opérations de transformation à l'échelle pilote, en proposant des spécifications pour envisager des améliorations futures.

(iii) de la contribution des constituants du blé dur au travers des variations de leur réactivité physicochimique en fonction des variations de température et de teneur en eau induites par les opérations unitaires avec l'utilisation d'un diagramme d'état.

(iv) du comportement de la matière granulaire, en discutant de la contribution des caractéristiques des poudres et des facteurs de contrôle du procédé de fabrication, à travers l'approche hydrotexturale.

V.1. Structuration des grains de couscous

L'opération d'agglomération est la première opération du procédé de fabrication des grains de couscous. Dans l'industrie, elle est conduite dans des mélangeurs horizontaux avec deux axes de mélange. Le premier axe d'études (Chapitre IV.1) a consisté à décrire cette opération unitaire d'agglomération humide de la semoule de blé dur. Notre démarche a été notamment d'étudier quantitativement les fractions massiques des différentes structures formées et d'étudier qualitativement les propriétés morpho-granulométriques (diamètre et forme) et hydrotexturales (teneur en eau et compacité) de ces structures. Nous avons étudié l'impact des caractéristiques de la semoule de blé dur native sur les distributions granulométriques et les caractéristiques hydrotexturales des structures formées, à travers la contribution de ses caractéristiques de taille (diamètre médian et étendue de la distribution granulométrique) et de sa teneur en protéines (Chapitre IV.1.1). Nous avons

également décrit l'impact des facteurs de contrôle de différents équipements dits mélangeurs à « faible » taux de cisaillement (Chapitre IV.1.2). Nous avons montré que la distribution de taille des particules natives a un effet significatif sur les distributions granulométriques des structures formées après l'agglomération. En revanche, la teneur en protéines des semoules natives ne semble moduler que légèrement les distributions granulométriques finales et l'impact est beaucoup moins marqué que pour la distribution de taille. Le rôle de la teneur en protéines du blé ne semble donc pas être un facteur déterminant dans la structuration des grains de couscous. Nous n'avons observé que de légers changements dans le processus d'agglomération humide lors de l'utilisation de semoules entre 7,7% et 13,8% de teneur en protéines. Nous avons néanmoins émis l'hypothèse qu'une teneur en protéine élevée est susceptible de renforcer la structure en favorisant la cohésion entre les particules de semoule. Ce travail a mis en évidence la saturation en eau des structures agglomérées et ce quelles que soient la taille et la teneur en protéines de la semoule native. Ce résultat est original par rapport à de précédentes études menées par Barkouti et al. (2014) et Saad et al. (2011). Nous avons calculé une dimension fractale de 3 pour décrire la croissance des agglomérats de par la saturation des structures. Cette valeur indique que l'agglomérat peut-être assimilé à un objet géométrique dans lequel le nucléi n'est pas une unité de base de la structure agglomérée. Elle ne rend donc pas compte d'un mécanisme de croissance fractale des agglomérats. L'étude de l'agglomération avec une gamme de teneur en eau inférieure aurait pu nous permettre de montrer cette croissance fractale. Nous avons néanmoins étudié l'impact de variations modérées de la teneur en eau au moment de l'étape d'agglomération. Grâce à la caractérisation hydrotexturale des structures agglomérées, nous avons mis en évidence des différences entre les fragments (plus petits, moins compacts et plus hydratés) et les nucléi (plus gros, plus compacts et moins hydratés). Ces résultats nous permettent de montrer que les mécanismes d'agglomération qui se produisent en même temps dans le mélangeur sont *(i)* un mécanisme de nucléation/croissance et *(ii)* un mécanisme de formation de pâte/fragmentation. Les caractéristiques de la semoule de blé, la distribution de taille et (à une moindre échelle) la teneur en protéine favorisent l'un ou l'autre de ces mécanismes d'agglomération. Les résultats montrent que le mécanisme de croissance/nucléation, qui permet une distribution de taille plus homogène et un meilleur rendement en agglomérats entre 1 et 2 mm, est favorisé avec une semoule native ayant un diamètre médian inférieur à 280 µm et une teneur en protéine supérieure à 12%.

Nous avons également étudié l'impact de différents procédés de mélange à « faible » taux de cisaillement. Les résultats indiquent que les agglomérats sont saturés quelles que soient les technologies et les conditions de malaxage. L'évolution de la répartition granulométrique des structures agglomérées (nucléi, agglomérats et morceaux de pâte) en fonction des valeurs de compacité traduit le développement concomitant d'un mécanisme de croissance continu et d'un mécanisme de rupture des gros morceaux de pâte. En effet, si l'agglomération s'initie systématiquement par une étape de nucléation, l'inhomogénéité du mélange liée *(i)* aux difficultés de transmission d'énergie mécanique des appareillages, *(ii)* à l'étendue de la dispersion granulométrique des particules natives et *(iii)* à la localisation en surface de la zone d'hydratation, conduit au développement de gradients qui, à minima, maintiennent l'étendue de la distribution granulométrique, mais peuvent aller jusqu'à l'amplifier. Nous avons montré notamment que les fluctuations de compacité et les fluctuations de teneur en eau autour

des moyennes sont corrélées et ce, pour toutes les classes granulométriques étudiées. Ce résultat est systématique quelles que soit les technologies et les conditions d'agitation. Il indique que les différentes structures s'associent suivant les mêmes modalités. La quantification de chaque population et l'analyse des caractéristiques hydrotexturales sur les agglomérats humides montrent qu'il est possible de corréler les impacts des différents procédés pour générer des agglomérats avec des fonctionnalités similaires.

Ce travail sur l'étape d'agglomération pourrait être approfondi en investiguant plus en avant d'autres paramètres de contrôle du procédé d'agglomération. L'étude bibliographique nous a montré l'importance du flux spray adimensionné pour caractériser les régimes de nucléation (Lister et al., 2001). Ce nombre qualifie « l'efficacité » du contact grain/goutte lors de la genèse d'un nuclei, mais il n'est pas rattaché au caractère granulaire (distribution de taille et réactivité) de la matière à agglomérer. De fait, Ruiz (2012) propose une modification de ce flux spray adimensionné pour intégrer le rapport du diamètre médian de la goutte sur le diamètre médian du grain. Notre étude sur l'opération d'agglomération a montré que dans des conditions de pulvérisation constante (et donc un rapport taille de goutte/taille de grain qui varie), la distribution de taille des particules natives influence les proportions des fractions massiques des structures agglomérées sans changer leurs propriétés hydrotexturales. Les perspectives seraient d'étudier directement ce rapport en analysant la distribution de taille des gouttes et l'angle de pulvérisation grâce à des techniques d'optiques (*e.g.* analyse PIV, ombroscopie, *etc.*). Mandato et al. (2012) ont par exemple proposé une analyse dimensionnelle permettant de calculer la taille des gouttes issues de buse de pulvérisation mono ou bi-fluide. A terme, il serait intéressant de déterminer l'impact de la distribution de taille des gouttes et leur répartition dans le jet sur les propriétés morpho-granulométriques et hydrotexturales des structures agglomérées. Il serait également judicieux d'intégrer à l'étude de l'opération d'agglomération, des technologies à « fort » taux de cisaillement (comme un malaxeur Stephan). Nous pourrions penser à analyser l'ensemble des résultats de l'étude des procédés avec une seule analyse dimensionnelle. Les nombres adimensionnels de cette analyse pourraient alors traduire une mobilité granulaire dans le mélangeur et une interaction entre les grains et les gouttes de liant. Ils permettraient ensuite d'étudier les mécanismes de nucléation/croissance et formation de pâte/fragmentation grâce à l'identification de différents « régimes » sur des diagrammes d'aide à la conduite de procédé.

Etape de roulage et de classification - L'opération de roulage et de classification permet la classification des agglomérats humides obtenus par l'agglomération. Le rouleur est un tambour composé d'une grille cylindrique qui tourne à l'aide d'un motoréducteur. Dans le cadre de la fabrication à l'échelle pilote de grains de couscous, il est composé de deux tamis métalliques de 1 et 2 mm qui permettent de séparer les agglomérats trop fins (<1 mm), les agglomérats dans la gamme commerciale (1< moyens <2 mm) et les agglomérats trop gros (>2 mm). Le Chapitre IV.2 a permis de décrire et de comprendre le fonctionnement d'un équipement pilote de roulage. Nous avons évalué l'impact des facteurs de contrôle du rouleur (vitesse de rotation, angle d'inclinaison, et débit d'alimentation) sur l'efficacité de classification de chacune des fractions et sur les propriétés hydrotexturales (teneur en eau et compacité) et morphologiques (circularité) des agglomérats de taille

comprise entre 1 et 2 mm. Dans un premier temps, nous avons évalué l'efficacité de classification à l'aide d'une approche originale basée sur une analyse matricielle. L'analyse matricielle nous a donné accès à des valeurs calculées qui traduisent l'efficacité « globale » du procédé, la « pollution » de la fraction « agglomérats » entre 1 et 2 mm par des particules fines et la « perte » d'agglomérats entre 1 et 2 mm présents dans la fraction des grosses particules. Nous avons montré que l'efficacité « apparente » du rouleur, c'est à dire la classification correcte de chaque fraction, varie entre 89 et 96% en fonction des paramètres de réglage de l'appareil. Ces pourcentages élevés traduisent la haute performance du rouleur dans sa fonction de classification. L'efficacité de classification optimale est obtenue avec *(i)* une vitesse de rotation entre 6 et 20 rpm *(ii)* un angle d'inclinaison entre 6 et 12° et *(iii)* un débit d'alimentation autour de 7 g/sec d'agglomérats en entrée de rouleur. Nous avons également mis en évidence que l'opération de roulage a un léger impact sur la circularité des agglomérats à la sortie, mais ne change pas leurs propriétés hydrotexturales, et ce quels que soient les réglages du rouleur. Une approche de type analyse dimensionnelle a aussi été menée pour proposer une modélisation mathématique reliant la circularité aux paramètres du procédé (*i.e.* vitesse, angle et débit). La modélisation mathématique décrit assez bien les données expérimentales, néanmoins les conditions du procédé et de fait les nombres adimensionnels testés (les nombres « pi ») doivent être étendus pour améliorer et conforter le modèle.

Au vu de notre étude, le rouleur pilote utilisé est un équipement qui permet essentiellement la classification des agglomérats en sortie de la mélangeuse. Cette fonction de classification pourrait faire l'objet d'un travail de recherche plus approfondie afin de dimensionner l'appareil pour améliorer la conduite du procédé (temps et efficacité apparente). Nous avons commencé un travail sur l'expression de vitesses rendant compte *(i)* du transport dans le tambour tournant incliné et *(ii)* du tamisage à travers une maille de taille inférieure. Le rapport de ces vitesses pourrait constituer un nombre adimensionnel susceptible de discriminer des régimes de fonctionnement de ce tambour tournant. Nous avons ainsi cherché à évaluer les angles de talus sous les tamis de l'appareil et étudier les angles de repos, afin de comprendre d'abord le régime d'écoulement et de transport de la poudre. Nous avons aussi mené une étude sur le tamisage de poudre cohésive. Nous avons déterminé l'impact de la cohésion de la poudre, de la charge du tamis et du mode de sollicitation mécanique (rotationnelle, vibrationnelle ou choc) sur le tamisage de la poudre. Outre cette fonction de classification, un travail sur le rouleur pourrait également être mené pour améliorer sa fonction de roulage et d'agglomération secondaire. L'équipement pilote utilisé n'impacte que légèrement la circularité des agglomérats et ne génère pas d'agglomération secondaire des structures. Nous pourrions penser à l'améliorer pour favoriser la fonction de roulage et envisager des conditions permettant d'induire des mécanismes d'agglomération secondaire. L'augmentation de la longueur de l'équipement augmenterait le temps de séjour des agglomérats et pourrait permettre d'améliorer l'efficacité du roulage. Il serait également possible de concevoir un équipement pilote avec des zones pour le roulage sans classification (des tôles), suivi de zones pour la classification (des tamis). L'ajout de buse de pulvérisation de fines gouttelettes au sein de l'appareil pourrait aussi limiter les phénomènes de déshydratation et de fragmentation des structures agglomérées et pourrait même permettre une agglomération secondaire des structures. Enfin, l'analyse des agglomérats en sortie de rouleur pourrait être précisée et facilitée grâce à l'utilisation d'appareils

analytiques de type morpho-granulomètres. Ces appareils de mesure optique permettraient d'avoir accès à la distribution de taille et à la distribution de forme des structures sans tamisage, susceptible de modifier l'aspect et la texture des agglomérats.

Etape de cuisson - L'opération de cuisson à la vapeur est une étape clé dans le procédé de fabrication des grains de couscous. Elle induit des mécanismes physico-chimiques dont principalement la gélatinisation des granules d'amidon qui contribue à la formation d'un "réseau" moléculaire au niveau des interfaces entre les particules de semoule et renforce la résistance des agglomérats. Nous avons étudié à l'échelle pilote les cinétiques de variations de la teneur en eau, de la compacité et du taux de gélatinisation de l'amidon au cours de la cuisson pour les agglomérats de taille comprise entre 1 et 2 mm. Les cinétiques ont été mesurées pour des agglomérats humides à deux teneurs en eau initiales (0.32 et 0.48 g/g de matière sèche) en sortie de l'opération de roulage - classification. Les grains ont été disposés sur des grilles, en une couche de faible épaisseur (1 cm) pour faciliter les transferts de chaleur et d'eau. Il est à noter qu'à l'échelle industrielle, la couche de grains de couscous introduite dans le cuiseur peut atteindre 10 à 20 cm d'épaisseur (Ruiz et al., 2014), ce qui induit une phase transitoire nécessaire aux transferts de chaleur et d'eau au cœur du produit. Les résultats expérimentaux ont montré que la teneur en eau, la compacité et le pourcentage d'amidon gélatinisé varient de manière significative et atteignent des valeurs stationnaires après 3 min de cuisson à la vapeur. L'analyse hydrotexturale montre que les agglomérats sont saturés tout au long de la cuisson. Elle traduit un mécanisme d'expansion de la structure du grain de couscous qui est contrôlé par l'absorption d'eau au cours de l'opération. La réaction de gélatinisation de l'amidon est également contrôlée par ces transferts d'eau au sein de la structure des agglomérats. En considérant que les transferts d'eau sont le phénomène limitant lors de la cuisson de grains humides de couscous, il serait judicieux d'utiliser des technologies qui favoriseraient ce transfert. On pourrait par exemple étudier la cuisson dans des cuiseurs à vapeur sous pression. Cette technologie permettrait d'atteindre des températures supérieures à 100°C dans le cuiseur. Elle générerait des mécanismes physico-chimiques autres que la réticulation des protéines et la gélatinisation de l'amidon, par exemple la formation de complexes amylose-lipide de forme I et de forme II (Tufvesson et al., 2003) et pourrait avoir une influence sur la texture du grain à la sortie du cuiseur. Il serait intéressant d'enrichir les travaux par une étude biochimique pour déterminer précisément les zones de gélatinisation en fonction du temps de cuisson, le phénomène de réticulation des protéines, mais également la formation de ces complexes amylose-lipide.

L'opération de séchage est la dernière opération unitaire du procédé de fabrication des grains de couscous. Nous avons étudié l'impact de cette opération en mesurant les cinétiques de variation de la teneur en eau, de la compacité, de la taille et de la forme des agglomérats, pour différentes températures de séchage (50, 70 et 90°C). Nous avons également essayé le séchage d'agglomérats non cuits en jouant sur l'humidité relative (80%) et la température de séchage (50, 70 et 90°C). L'opération de séchage à l'échelle pilote a été réalisée en disposant les grains en une couche statique de faible épaisseur (1 cm). Dans les séchoirs industriels, les grains de couscous sont généralement disposés en couche épaisse dans des gobets et sont soumis à une agitation pour favoriser les transferts. Les résultats indiquent que les agglomérats sont saturés au cours du séchage, quelle que soit la température dans le

séchoir. Une température de séchage élevée permet d'atteindre une teneur en eau finale à l'équilibre plus faible et une compacité plus élevée. Du fait de la saturation des agglomérats, l'augmentation de la compacité est corrélée à une diminution de diamètre. Dans ces conditions, il suffit de 15 min à 70°C ou 10 min à 90°C pour sécher les grains et les amener à une teneur en eau finale inférieure à 12% (norme en vigueur dans le *Codex Alimentarius* du couscous). Le travail mené a également permis de montrer qu'une gélatinisation partielle de l'amidon est possible dans un séchoir. Le diagramme de séchage doit être construit pour limiter les transferts d'eau du cœur vers l'extérieur du grain, avec une humidité relative plus élevée dans le séchoir. Des travaux complémentaires pourront enrichir cette étude. Il serait intéressant d'étudier des conditions de séchages plus « drastiques », en augmentant l'écart entre l'humidité relative de l'air et l'activité de l'eau (a_w) du produit (températures supérieures à 100°C et humidité relative inférieure à 50%), sur les cinétiques de teneur en eau, taille et compacité. La durée du séchage serait alors diminuée et il serait envisageable d'analyser les propriétés mécaniques des grains et de les comparer à celles obtenues après un séchage classique (saturation en eau et résistance mécanique). Il serait pertinent de penser à un diagramme de séchage avec plusieurs phases pour les grains de couscous. Nous pourrions ainsi imaginer un procédé de cuisson / séchage en simultanée qui permettrait de gélatiniser l'amidon et de sécher les grains dans le même équipement. Une phase initiale permettrait de gélatiniser l'amidon avec une température et une humidité relative élevée. Une seconde phase permettrait des sécher les grains. Enfin, il serait également judicieux de mener une étude biochimique plus aboutie, de même que pour l'opération de cuisson, afin d'étudier les zones de gélatinisation de l'amidon, la réticulation des protéines et la formation de complexes amylose-lipide.

V.2. Coût énergétique du procédé

Le challenge de l'agriculture et des industries alimentaires aujourd'hui est de produire une alimentation saine et durable. Une alimentation durable passe par une production réfléchie et efficiente n'engendrant pas de perte énergétique et hydrique (Ryan et al., 2008).

A l'échelle industrielle, le procédé de fabrication des grains de couscous reste encore conduit de façon relativement empirique. Il est considéré comme très énergivore. Il s'appuie sur une opération de classification et de sélection d'une partie des produits intermédiaires (selon des critères de taille) qui génère un flux continu de recyclage de grains humides « hors gammes », c'est à dire avec un diamètre supérieur à 2 mm ou inférieur à 1 mm. Les recyclas gros sont broyés avant d'être réintroduits dans les mélangeuses. Les recyclas fins sont directement réintroduits dans les mélangeuses. Ce flux de recyclage est très important et peut représenter plus de trois fois le flux de semoule native de blé dur introduite initialement (Ruiz et al., 2014). Une meilleure compréhension des mécanismes d'agglomération des grains de couscous et des opérations unitaires doit permettre de minimiser ces flux de recyclage et de diminuer l'énergie dépensée « inutilement ». Ces flux nécessitent *(i)* un surdimensionnement des équipements pour l'étape d'agglomération humide et pour l'étape de roulage classification, *(ii)* l'utilisation de broyeurs pour réduire la taille des recyclas gros et *(iii)* une surconsommation d'eau pour ajuster la teneur en eau des recyclas avant leur introduction dans la

mélangeuse. Il faut également souligner le fait que ces recyclas participent aux mécanismes de structuration des grains de couscous. Ils doivent contribuer aux qualités finales des grains, du fait des différences d'état physico-chimique par rapport à la semoule de blé dur native. Ces effets n'ont pas encore été étudiés à ce jour.

Le coût énergétique du procédé de fabrication des grains de couscous à l'échelle industrielle n'a pu être estimé dans le cadre de ce travail expérimental. Des travaux sont actuellement en cours dans le cadre d'un autre projet de recherche confidentiel impliquant l'UMR IATE et les fabricants français de grains de couscous. En revanche, nous avons cherché à déterminer les consommations énergétiques des différents équipements pilotes utilisés pour la fabrication des grains de couscous, à l'échelle du laboratoire. Au cours de différentes approches expérimentales, nous avons mesuré les consommations énergétiques des malaxeurs et du séchoir à l'aide de wattmètres directement branchés sur les équipements pilotes. Nous avons estimé la consommation énergétique du rouleur grâce aux données de la littérature. Nous avons utilisé les caractéristiques de l'équipement de cuisson pour estimer la consommation énergétique et le débit de vapeur du cuiseur. Le Tableau V.1.1 présente les consommations énergétiques totales (kJ) et spécifiques (kJ/kg) en régime stationnaire de l'ensemble des équipements.

Table V.1.1.

Consommations énergétiques des équipements de la filière

Equipement	**Temps d'utilisation (sec)**	**Charge (max) (kg)**	**Consommation instantanée (W)**	**Consommation totale (kJ)**	**Consommation spécifique (kJ/kg)**
Rouleur	600	≈ 5.0	0.12	72	48
Cuiseur vapeur	600	≈ 1.0	8	4800	4800
Séchoir	900	≈ 1.0	25	22500	22500

Il faut rappeler que ces estimations ont été réalisées dans les conditions d'expérimentation à l'échelle pilote. Les consommations énergétiques des mélangeuses et les charges testées ont permis de calculer les coûts énergétiques dans différentes conditions de fonctionnement. Les expérimentations sur le rouleur pilote ont été menées avec une charge d'environ 20% des capacités maximales de l'appareil. Le coût énergétique pourrait donc être diminué en augmentant cette charge. Le cuiseur vapeur est un appareil pilote de laboratoire qui n'a pas été conçu pour optimiser son impact énergétique. La charge maximale de l'appareil est très faible (1 kg) pour maîtriser les conditions de cuisson. De fait, les estimations énergétiques du cuiseur sont probablement surévaluées par rapport à un cuiseur à l'échelle industrielle. Le séchoir pilote permet de reproduire les diagrammes industriels de séchage. Néanmoins la charge testée dans nos conditions d'expérimentation (1 kg) est largement inférieure aux capacités maximales de charge de l'équipement. Les estimations pour les équipements de cuisson et de séchage sont à relativiser mais elles permettent d'accéder à un ordre de grandeur du coût énergétique global.

La description des valeurs du Tableau V.1.1 montre clairement que les opérations impliquant un traitement thermique (cuisson à la vapeur et séchage) sont les plus énergivores dans le procédé de

fabrication des grains de couscous. Nous avons schématisé les consommations énergétiques en pourcentage des quatre opérations unitaires sur le diagramme de fabrication des grains de couscous (Fig. V.1.1). Nous n'avons pas pris en compte dans ce pourcentage la part d'énergie nécessaire au broyage et au recyclage des agglomérats.

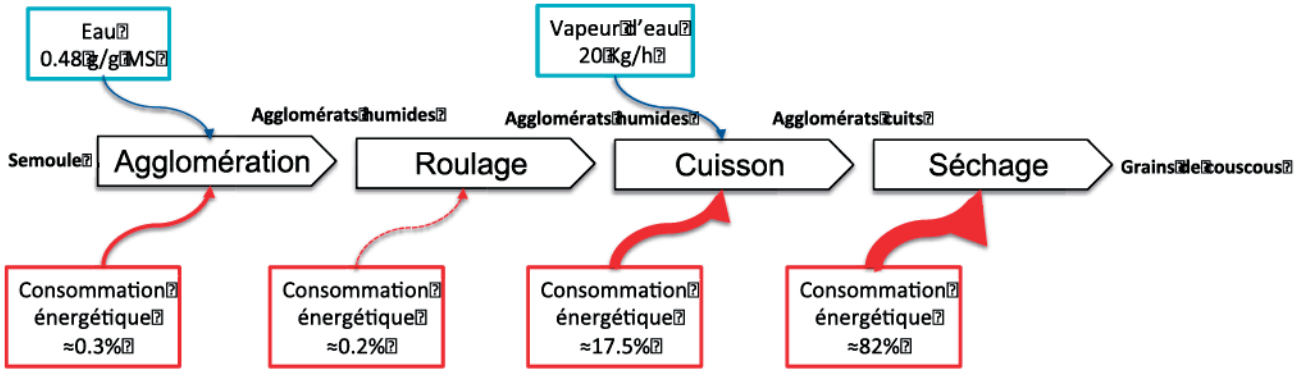


Figure V.1.1. Diagramme de fabrication des grains de couscous et récapitulatif des consommations énergétiques de chaque opération unitaire

Etape d'agglomération - Nous avons mesuré la consommation énergétique des mélangeurs et les rendements matière des produits générés, en prenant en considération la proportion des agglomérats avec un diamètre entre 1 et 2 mm, qui sont sélectionnés pour la suite du procédé conduisant à la fabrication des grains de couscous. La consommation énergétique de l'opération d'agglomération provient essentiellement du moteur relié à l'axe mobile de la mélangeuse. Nous avons négligé les consommations énergétiques des systèmes d'alimentation en liquide (eau) et en solide (semoule de blé dur) dans la cuve de mélange. Les mesures de consommation énergétique instantanée (en kW) ont été réalisées tout au long de la durée de la phase d'agglomération. Ces données sont utilisées pour calculer le coût énergétique de l'opération avec deux indicateurs. *(i)* La consommation instantanée (kJ) de l'opération d'agglomération, pour une charge donnée dans le malaxeur. Cette valeur nous permet d'accéder à un indicateur de l'intensité des apports mécaniques imposés au produit au cours de l'agglomération. Cela pourrait être un élément de comparaison entre différents équipements. *(ii)* A partir du rendement en agglomérats de 1-2 mm formés, nous avons calculé un coût énergétique spécifique (kJ/kg), en divisant les consommations énergétiques totales par les masses de produits formés. Cette valeur est un indicateur du coût énergétique apparent de l'opération d'agglomération. Les données de consommation énergétiques déterminées pour l'opération d'agglomération sont présentées dans le tableau V.1.2. Les données sont présentées pour chaque type de mélangeuse, en fonction des conditions expérimentales (teneur en eau, vitesse de mélange et durée). Les résultats présentés dans le Chapitre IV.1 ont montré que sur la gamme étudiée, la teneur en eau impacte la consommation énergétique dans les différents mélangeurs. L'augmentation de la vitesse de mélange augmente nécessairement la consommation énergétique de l'appareil. Il apparaît que la consommation énergétique spécifique (kJ/kg) la plus faible est obtenue dans le mélangeur horizontal. Ce mélangeur semble aussi favoriser un mécanisme de croissance et génère un meilleur rendement d'agglomérats entre 1 et 2 mm. En moyenne, la part de l'opération de mélange est estimée à 0.3% de la consommation énergétique totale du procédé de fabrication des grains de couscous (Fig. V.1.1).

Table V.1.2.

Consommations énergétiques des différents mélangeurs pour une teneur en eau proche de 0.45 g/g de matière sèche et un temps de mélange de 15 minutes

Mélangeur	Vitesse de rotation (rpm)	Agglomérats (1- 2 mm) (%)	Agglomérats (1-2 mm) (kg)	Consommation instantanée (kJ)	Consommation spécifique (kJ/kg)
Vertical	80	0.26	0.78	0.15	177
Horizontal	114	0.37	1.9	0.14	68
Planetary	70	0.26	0.52	0.08	139

Etape de roulage et de classification - L'opération unitaire de roulage est réalisée à l'aide d'un tambour rotatif relié à un moteur. D'un point de vue énergétique, le coût énergétique de l'opération de roulage / classification se limite à la consommation électrique du motoréducteur utilisé pour générer la rotation du tambour. Comme pour l'opération d'agglomération, nous avons négligé la consommation énergétique du système d'alimentation en poudre qui alimente le tambour rotatif avec les agglomérats humides. Au moment de l'étape de roulage, la charge de produit à l'intérieur du tambour (au maximum quelques kg) est très faible par rapport à la masse du tambour. De fait, la consommation électrique du moteur provient essentiellement de la mise en rotation du tambour et n'est quasiment pas affectée par la présence de produit. Le poids des agglomérats n'a donc pas d'impact sur la consommation électrique du moteur. Au niveau de l'approche énergétique de l'opération de roulage / classification, la consommation d'énergie du rouleur peut être définie par rapport au temps de séjour nécessaire pour rouler les agglomérats humides et pour les tamiser correctement afin d'extraire la fraction d'intérêt. Les travaux réalisés pendant la thèse ont permis de déterminer l'effet de la vitesse de rotation du tambour, de l'angle d'inclinaison du tambour ou du débit d'alimentation en agglomérats humides sur l'efficacité du tamisage (rendement de classification en agglomérats humide de 1-2 mm) et sur le temps de séjour dans le rouleur. Une augmentation de l'angle d'inclinaison et de la vitesse de rotation diminue le temps de séjour mais également l'efficacité de classification (légèrement) due à un écoulement plus rapide des agglomérats dans le tambour. Au niveau du temps de séjour dans ce tambour rotatif, nous avons déterminé expérimentalement un temps de séjour moyen de 10 minutes des agglomérats humides. Les travaux réalisés ne nous ont pas permis de d'évaluer les effets des paramètres de contrôlé de l'opération de roulage / classification sur le temps de séjour. Le coût énergétique de l'opération de roulage / classification a été estimé à environ 48 kJ/kg pour une fraction massique d'agglomérats entre 1 et 2 mm d'environ 30%. Il ne représente que 0.2% de la consommation énergétique totale (sans compter la consommation du recyclage) à l'échelle du procédé (Tableau V.1.1).

Il est important de noter que l'efficacité globale de l'opération d'agglomération est faible, puisqu'elle génère moins de 40% d'agglomérats entre 1 et 2 mm (calibre commercial). Elle est à l'origine de la faible efficacité du procédé de fabrication de grains de couscous à l'échelle industrielle. L'opération suivante de roulage subit les faibles rendements de l'agglomération. De plus, ce travail nous a montré que le rouleur ne permet pas une agglomération secondaire et n'amène pas un meilleur rendement en agglomérats dans la gamme commerciale. Bien que ces deux premières opérations représentent une consommation énergétique très faible comparée aux opérations de traitements hydrothermiques, elles contribuent aussi à la consommation énergétique des broyeurs et des flux engendrés pour le recyclage

à la suite de l'agglomération et du roulage. Ce recyclage des agglomérats représente une part énergétique non négligeable dans le procédé de fabrication et les faibles coûts énergétiques de ces deux opérations sont donc à relativiser.

Etape de cuisson - L'étape de cuisson est une étape qui contribue de manière importante dans le coût énergétique du procédé de fabrication des grains de couscous. Les consommations énergétiques de l'opération de cuisson sont issues de la consommation de vapeur utilisée. Il s'agit d'une vapeur détendue à pression atmosphérique et à 100°C. La quantité de vapeur consommée à l'échelle pilote a été estimée à environ 11 kg vapeur / kg de grains de couscous cuits, pour une durée de traitement de 10 min. Le calcul de la consommation énergétique spécifique donne une valeur d'environ 4800 kJ/kg de couscous cuits. La contribution de l'opération de cuisson vapeur au procédé complet de fabrication des grains de couscous est estimée à environ 17.5% de la consommation énergétique totale. Au cours de la démarche expérimentale sur l'équipement pilote, l'étude des cinétiques de cuisson a montré que les mécanismes de gélatinisation de l'amidon et les modifications des caractéristiques physico-chimiques et structurales (teneur en eau, compacité, diamètre) des grains de couscous sont quasi complets après seulement 3 min de cuisson. On pourrait ainsi envisager d'appliquer un temps de cuisson plus court. Il faudrait cependant vérifier cela au niveau de l'impact sur les caractéristiques finales des grains de couscous. A l'échelle industrielle, on pourrait imaginer une optimisation de l'opération de cuissons, qui passe par une diminution de la couche de grains dans le cuiseur et par une augmentation de la vitesse de passage dans le cuiseur pour diminuer la durée de cuisson, tout en maintenant le débit de produit dans le cuiseur. Cette démarche d'optimisation pourrait (peut-être) permettre de trouver des conditions qui réduisent la quantité de vapeur consommée pour induire les modifications nécessaires des grains de couscous. En rappelant que la cuisson représente un quart de la consommation énergétique de la filière, une optimisation de l'étape de cuisson impacterait alors fortement les dépenses énergétiques.

L'étape de séchage est l'étape la plus importante sur le coût énergétique du procédé de fabrication des grains de couscous. L'estimation du coût énergétique de l'opération de séchage à l'échelle pilote représente 22500 kJ/kg. Cette opération consomme environ 82% de la consommation énergétique totale. La consommation énergétique d'un séchoir est essentiellement due aux ventilateurs qui permettent de générer le flux d'air envoyé au contact du produit, aux éléments pour chauffer l'air à la température de consigne de séchage et aux éléments mécaniques utilisés pour déplacer le produit dans le séchoir. C'est le cas pour les tunnels de séchage industriels, mais pas pour le séchoir statique pilote, au sein duquel le produit est immobile. Une partie de la quantité d'énergie consommée est proportionnelle à la température de l'air utilisée pour le séchage, à la durée du séchage et à la quantité d'eau présente dans le couscous cuit et à évaporer. Au vu de l'impact énergétique du séchage dans la fabrication des grains de couscous, une diminution, même minime, du temps de séchage diminuerait significativement les dépenses énergétiques du procédé. Cependant, une réduction de la température pourrait nécessiter une augmentation du temps de séjour dans le séchoir et ne diminuerait pas nécessairement ce coût énergétique. De même, une diminution de l'épaisseur du gâteau au sein du tunnel de séchage ne réduirait pas forcément la consommation énergétique de l'opération évaluée en kWh/kg de couscous secs. La diminution du temps de séchage pourrait être envisagée en diminuant la

teneur en eau des agglomérats à l'entrée du séchoir. Nous avons montré que l'amidon pouvait être gélatinisé pour des agglomérats ayant des teneurs en eau inférieures aux teneurs en eau « classiques », autour de 0.48 g/g de matière sèche. En revanche, une diminution de la teneur en eau dès l'étape d'agglomération pourrait diminuer le rendement en agglomérats de 1-2 mm. Au vu du rapport entre la consommation énergétique nécessaire à l'agglomération et la consommation énergétique nécessaire au séchage, des travaux complémentaires sur ces points devront être menées.

La cuisson-vapeur et le séchage sont les deux opérations unitaires pour lesquelles une innovation par le procédé permettrait une diminution significative de la consommation énergétique globale (Fig. V.1.1.). L'innovation pourrait être, dans un premier temps à équipements constants, une optimisation du procédé de cuisson et du procédé de séchage en jouant sur les quantités de produits, sur le temps de séjour dans les équipements et sur les conditions de traitement. Cette optimisation pourrait être envisagée au niveau de l'étape de cuisson par une diminution de l'épaisseur du gâteau de grains de couscous et/ou au niveau de l'étape de séchage par une diminution de la teneur en eau des agglomérats en entrée de séchoir. Il serait aussi souhaitable de penser les procédés de traitements hydrothermiques par des innovations en « rupture », en s'affranchissant par exemple de la couche de grains qui limite les transferts d'eau et de chaleur. Nous avons montré que l'agglomération de semoule de blé dur dans un lit fluidisé permet de produire des agglomérats à partir de la semoule de blé dur. Ces derniers sont différents des grains de couscous produits dans des mélangeurs avec une pale d'agitation. Ils sont plus poreux, plus fragiles et ont une teneur en eau plus faible. Nous pourrions également envisager de cuire et de sécher des agglomérats humides de couscous dans un lit fluidisé. Les grains seraient alors cuits et séchés individuellement très rapidement. Le lit fluidisé pourrait peut-être permettre une économie d'énergie puisque le procédé est connu pour être peu énergivore (données de l'ADEME, 2017). Nous pourrions également penser à une cuisson et un séchage dans un tambour tournant dans lequel l'agitation du lit de poudre permettrait une cuisson et un séchage plus rapide des grains. Un autre moyen de s'affranchir des problèmes de transferts de chaleur et d'eau serait également d'utiliser une autre technique de chauffage. La technologie de chauffage grâce aux micro-ondes permettrait une élévation très rapide de la température au cœur des grains et une réalisation séquentielle de la cuisson et du séchage des grains avec un seul et même procédé. Il est à noter que dans ce travail de thèse nous avons évalué les caractéristiques physiques des grains de couscous afin de mieux comprendre les mécanismes de structuration. Une évaluation des qualités finales des grains de couscous, en termes de couleur, de qualités fonctionnelles (ex : capacité d'absorption d'eau ou indice de gonflement) ou de qualité gustatives devra aussi être menée avant d'envisager une innovation dans le procédé de fabrication.

V.3. De la semoule aux grains de couscous : quels mécanismes ?

Les mécanismes impliqués dans la structuration des grains de couscous peuvent être décrits à plusieurs échelles. A l'échelle macromoléculaire, ils sont décrits à partir d'un itinéraire « technologique » représenté sur un diagramme d'état des principaux constituants du blé (amidon, protéines et lipides) (Ruiz et al., 2014). Cet itinéraire technologique correspond à un changement de la teneur en eau et de

la température du produit d'un point initial « A » à un point final « B ». A l'échelle des grains, nous avons utilisé dans ce travail de thèse l'approche hydrotexturale (Ruiz et al., 2005) pour étudier les mécanismes de structuration. Nous aurions également pu utiliser cette approche pour décrire les mécanismes de structuration à l'échelle du lit de grains, mais ce point n'a pas été abordé dans cette thèse.

V.3.1. Mécanismes physico-chimiques et diagrammes d'état

A la différence d'un grain de sable, les particules de semoule de blé dur sont réactives aux contacts de l'eau. Les phénomènes tels que la diffusion de l'eau vers le cœur des particules, la solubilisation partielle des constituants de surface ou l'activation de réactions enzymatiques sont initiés dès la première opération d'agglomération. Les mécanismes de structuration des grains de couscous nécessitent de considérer la réactivité de la semoule de blé dur à l'échelle macromoléculaire.

Nous proposons d'apporter un regard différent sur les mécanismes physico-chimiques à l'échelle macromoléculaire induits par les opérations unitaires du procédé. Nous avons reporté sur le diagramme d'état des constituants du blé dur (Fig. V.1.2), les itinéraires technologiques qui amènent un changement de réactivité des deux principaux constituants que sont l'amidon et les protéines au cours des 4 opérations unitaires. Nous avons représenté sur ce diagramme, la gamme de teneurs en eau étudiées lors de l'agglomération (Figure V.1.2a), les deux teneurs en eau initiales étudiées lors de la cuisson (Figure V.1.2d) et les 3 températures étudiées lors du séchage (Figure V.1.2.d). Au regard du diagramme d'état des constituants du blé, l'étape d'agglomération induit une augmentation de la teneur en eau à une température constante (autour de 25°C) (Fig. V.1.2a). Cette opération unitaire permet le passage de la transition vitreuse des zones amorphes des protéines et de l'amidon. Les protéines peuvent alors générer des interactions avec d'autres protéines au niveau de la surface des particules en contact. Après l'agglomération de la semoule de blé dur, les agglomérats sont classifiés pour ne retenir que la fraction comprise entre 1 et 2 mm. Lors de la cuisson, l'augmentation de température induit plusieurs mécanismes réactionnels impliquant les protéines et l'amidon. Les granules d'amidon gélatinisent grâce à l'eau contenue dans les agglomérats et à l'apport de vapeur d'eau à la cuisson. Les protéines peuvent réticuler et renforcer considérablement la structure des agglomérats cuits au niveau des interfaces entre les particules (Fig. V.1.2c). La réticulation des protéines se poursuit lors de l'étape de séchage. Enfin la phase de refroidissement amène les constituants du blé sous la courbe de transition vitreuse pour stabiliser la texture finale des grains de couscous (Fig. V.1.2d). Au vu de l'étude de la contribution des protéines du blé dur dans la fabrication des grains de couscous à l'aide du diagramme d'état, nous sommes amenés à penser qu'une augmentation de la teneur en protéines de la semoule de blé dur pourrait avoir un impact positif sur la texture des grains de couscous après les traitements hydrothermiques. Ce travail pourra faire l'objet d'une future étude pour décrire les réactions biochimiques impliquant les protéines du blé dur au cours des opérations unitaires lors de la fabrication de grains de couscous.

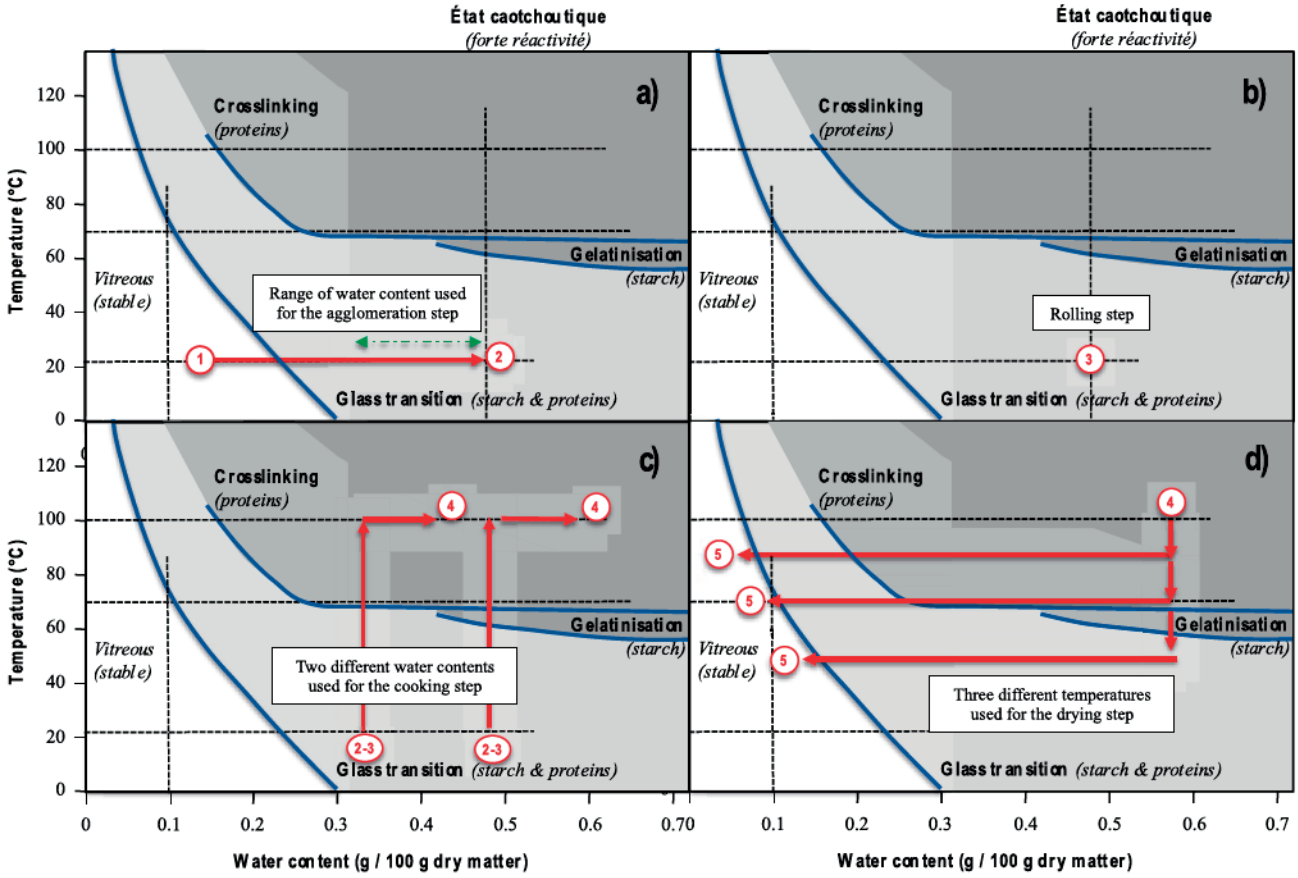


Figure V.1.2. Diagrammes d'état des constituants du blé dur et schématisations des itinéraires technologiques étudiés lors des opérations d'agglomération a), de roulage b), de cuisson c) et de séchage d)

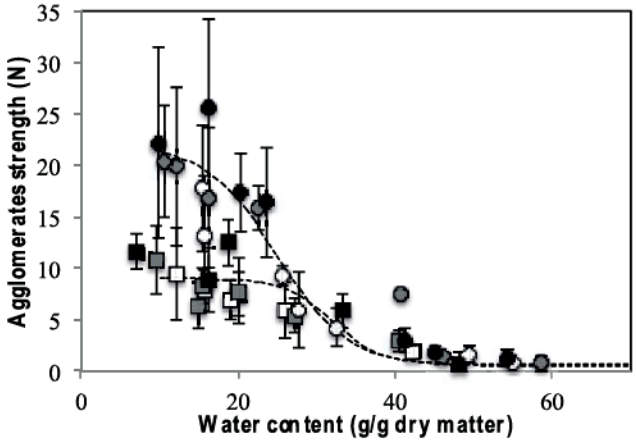


Figure V.1.3. Evolution de la résistance mécanique des agglomérats en fonction de leur teneur en eau :
○Agglomérats cuits ■ Agglomérats non cuits

L'étude de séchage de grains de couscous non cuits a montré une gélatinisation partielle des granules d'amidon à des températures supérieures à 70°C et une humidité relative autour de 80%. Le taux d'amidon gélatinisé reste cependant inférieur à 50%. En évaluant la résistance mécanique en fonction de la teneur en eau pour des agglomérats cuits et non cuit, nous montrons que la résistance mécanique finale d'agglomérats cuits est supérieure à celle d'agglomérats non cuits (Fig. V.1.3). La gélatinisation

de l'amidon permet la formation d'une « colle » entre les particules de semoule et améliore la résistance mécanique des grains de couscous.

V.3.2. Mécanismes physiques et approche hydrotexturale

Dans la thèse, nous avons étudié l'impact du procédé sur les caractéristiques des agglomérats (compacité et teneur en eau) à l'aide du diagramme hydrotextural pour chaque opération unitaire du procédé de fabrication (agglomération, roulage, cuisson et séchage). Ce diagramme est borné dans sa partie supérieure par la courbe de saturation, au-delà de laquelle le milieu n'a plus de réalité physique en tant que mélange. L'équation théorique de la courbe de saturation lie la fraction volumique solide et la teneur en eau à saturation. Le degré de saturation est alors égal à 1. La courbe de saturation caractérise la teneur en eau pour laquelle un milieu de compacité donnée voit ses pores complètement remplis par la phase liquide (*i.e.* le solide est « saturé » par le liquide). Le diagramme hydrotextural permet de suivre le degré de saturation des objets à l'échelle des grains et à l'échelle du lit de grains. Nous avons choisi de représenter sur le diagramme hydrotextural l'ensemble des opérations unitaires afin d'avoir une vision globale de l'itinéraire technologique « complet » pour la fabrication de grains de couscous (Fig. V.1.2.). Une proposition de modèle structural pour décrire les mécanismes de structuration à l'échelle des grains est schématisée sur la Figure V.1.4.

Au cours de l'opération d'agglomération, la semoule de blé dur et l'eau sont mélangées dans un malaxeur. L'eau permet la formation de contacts cohésifs entre les particules hydratées et assure la cohésion interne des agglomérats formés. L'énergie mécanique permet la dispersion des molécules d'eau au sein des particules de semoule et la génération d'interactions entre les particules. L'interaction des particules avec les molécules d'eau et la mobilité granulaire favorisent les mécanismes de croissance et de consolidation des agglomérats. Les nucléi sont les premières structures formées. Ils constituent « le germe » des futurs agglomérats et leur taille varie entre 600 et 1000 µm. Nous avons vu que pour une teneur en eau de 0.48 g/g de matière sèche et une agitation dans un malaxeur mécanique horizontal autour de 100 rpm, les structures formées ont une compacité élevée et sont totalement saturés en eau. Ces nucléi s'associent ensuite pour former les agglomérats sous l'effet structurant des contraintes mécaniques imposées par le malaxage. Les études précédentes (Barkouti et al., 2014; Rondet et al., 2010; Saad, 2011) ont montré « la fractalité » du couscous dont le mode de croissance assure une autosimilarité par changement d'échelle. Les gammes de teneurs en eau étudiées dans notre étude pour l'agglomération de la semoule et la saturation des nucléi n'ont pas permis de montrer cette croissance fractale. La croissance des agglomérats a été caractérisée par une augmentation couplée du diamètre et de la porosité par incorporation de vide. Leur taille varie entre 1000 et 2000 µm. Ils sont de moins en moins compacts mais restent toujours saturés en liquide. Ces agglomérats s'associent ensuite en morceaux de pâtes lorsque leur teneur en eau est proche de la limite de plasticité de la semoule (w=0.59 g/g de matière sèche). Ces morceaux de pâtes sont de taille très supérieure aux agglomérats. La percolation de l'eau dans ces structures induit une forte déformabilité et des changements biochimiques importants.

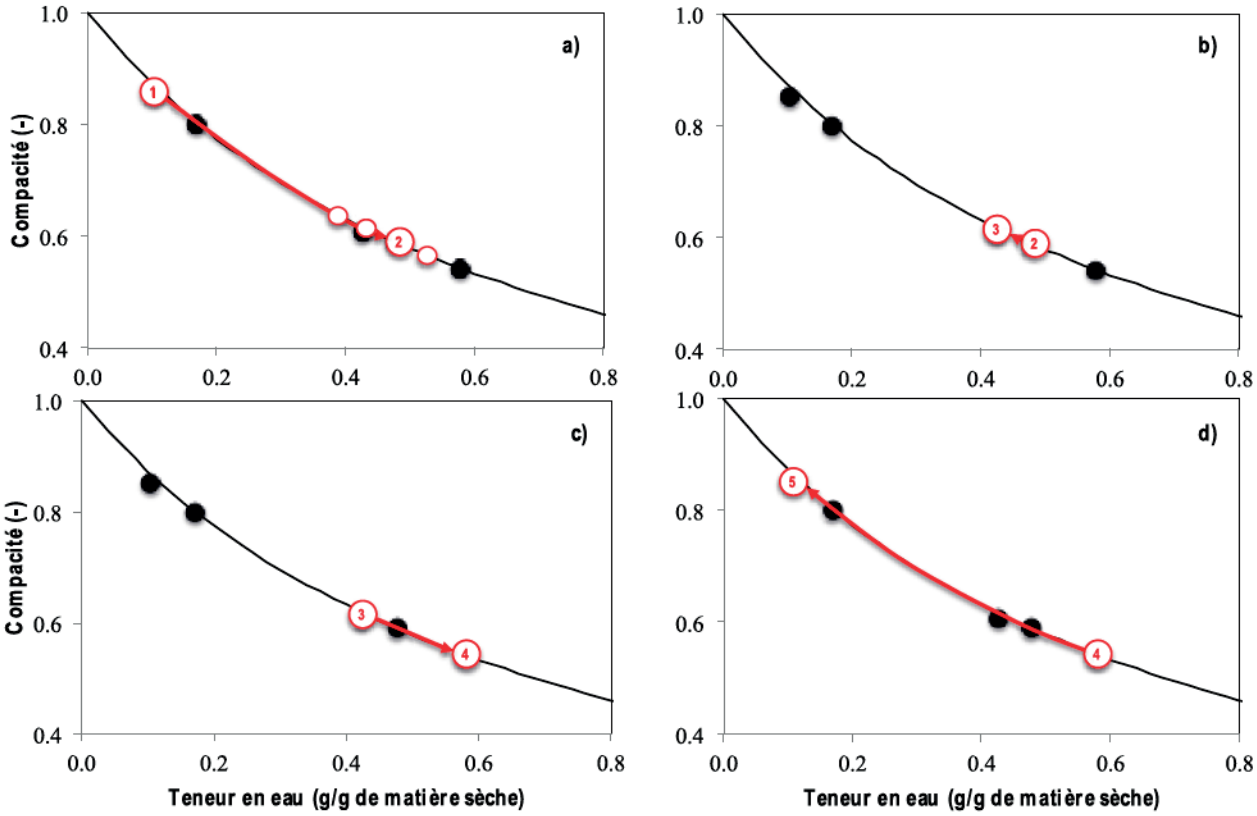


Figure V.1.4. Schématisation sur le diagramme hydrotextural des opérations unitaires d'agglomération a), de roulage b), de cuisson c) et de séchage d) - la courbe de saturation est la courbe noire continue

Nous avons étudié les caractéristiques hydro-texturales des grains après l'opération de roulage / classification. Nous avons montré que les agglomérats ne subissent pas d'agglomération secondaire dans la gamme des paramètres étudiés du procédé de roulage (angle d'inclinaison, vitesse et débit). Dans ces conditions, l'opération de roulage n'a pas d'impact sur les caractéristiques hydrotexturales (compacité et teneur en eau) des agglomérats. Le suivi de l'itinéraire technologique de l'opération de roulage sur la Figure V.1.3 fait état d'une légère déshydratation des agglomérats (séchage au contact de l'air) après leur passage dans le tambour rotatif, mais ces derniers sont toujours saturés en liquide.

La cuisson à la vapeur des agglomérats permet de renforcer la structure formée après l'agglomération. Au cours de la cuisson, les agglomérats augmentent légèrement leur diamètre et leur porosité par incorporation de vide. Ils sont toujours situés sur la courbe de saturation en eau. Après l'opération de cuisson les particules de semoule native sont « fondues » entre elles et n'apparaissent plus visibles à l'œil nu.

Le séchage a pour objectif d'extraire l'eau des agglomérats cuits afin de les amener à une teneur en eau inférieure à 13.5% et garantir la stabilité microbiologique. Nous avons montré que les transferts de chaleur à l'intérieur du grain sont rapides (<1 min), de par leur structure granulaire quasi-sphérique et leur faible diamètre. Nous avons également montré que la plasticité de la matière granulaire, dans les conditions de procédé étudiées, permet le réarrangement des grains et le transfert de l'eau de

l'intérieur vers l'extérieur du grain. Le transfert de l'eau est finalement le seul phénomène limitant lors du séchage de grains de couscous. L'extraction de l'eau amène un réarrangement de la matière granulaire qui augmente la compacité et diminue la taille du grain. Ce dernier reste aussi sur la courbe de saturation tout au long du procédé de séchage.

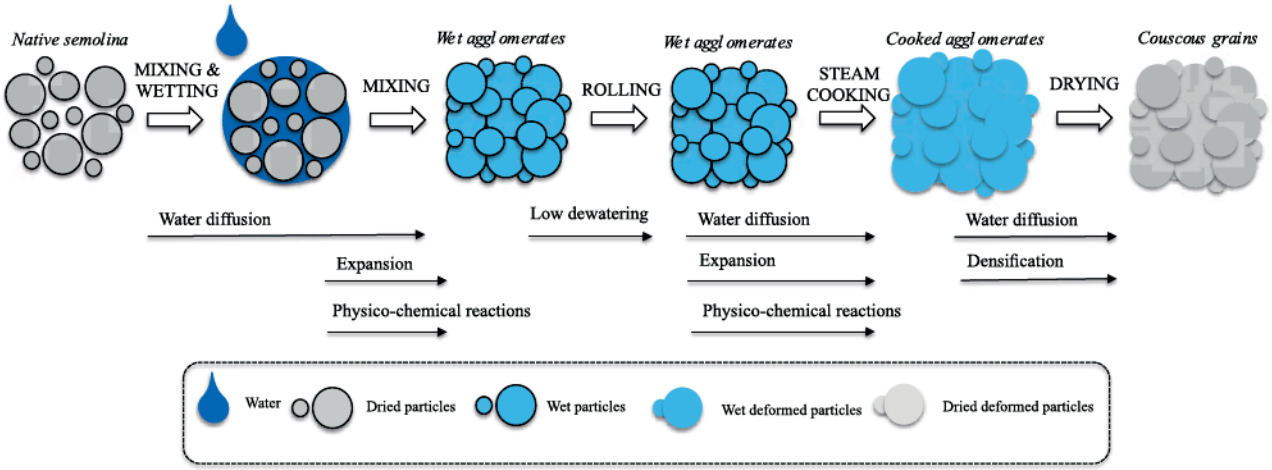


Figure V.1.3. Schématisation des mécanismes de structuration physiques et physico-chimiques subis lors des opérations unitaires d'agglomération, de roulage, de cuisson et de séchage des agglomérats de couscous

Le diagramme hydrotextural est un diagramme de phases dont les trois grandeurs d'état nécessaires et suffisantes (densité solide, teneur en eau et compacité) permettent de situer les états physiques des agglomérats de couscous. Il permet une représentation générique des états macroscopiques résultants des phases comme les transitions de connexité ou encore les transitions de consistance rhéologique (Ruiz, 2012). Cette représentation nous a permis de suivre l'évolution de la structuration d'un grain de couscous à partir de semoule de blé dur sous les contraintes imposées par le procédé (hydratation, malaxage, compactage, vitesse de cuisson / séchage... *etc*). Il nous permet également de comparer les procédés entre eux grâce à l'étude des états macroscopiques générés à l'échelle d'un lit de grains ou à l'échelle même du grain, en analysant l'influence d'un ou plusieurs paramètres opératoires représentatifs sur l'état hydro-textural. Il est enfin possible de construire un diagramme de phases en ajoutant l'axe "opératoire" de la grandeur thermodynamique caractéristique de la transformation subie *i.e.* contrainte de compression, énergie de malaxage, humidité...

Cette thèse constitue un premier travail de l'étude de l'ensemble des opérations unitaires du procédé de fabrication des grains de couscous. A travers l'approche multi-échelles « produit-procédé-processus », nous avons montré que les paramètres du produit et des procédés « modulent » les proportions des fractions massiques des structures générées et les vitesses de réaction, mais n'influencent pas les mécanismes de structuration, de croissance, de rétraction et de consolidation. Ce travail a permis d'identifier des leviers qui pourraient constituer une base de réflexion pour la re-conception des équipements. Il a aussi permis de proposer des éléments pour l'élaboration d'un cahier des charges spécifique pour la semoule de blé dur. Nous avons montré que la distribution de taille est un paramètre de contrôle important lors de l'agglomération. En revanche, la teneur en protéines semble

jouer un rôle moindre sur cette même opération d'agglomération. Il est à noter que son impact n'a pas été évalué au cours des autres opérations unitaires et que le travail nécessite d'être poursuivi. Les recherches ont été essentiellement menées pour étudier les mécanismes de structuration et l'impact du procédé à l'échelle du grain. Il serait souhaitable d'enrichir les résultats en étudiant ces mêmes mécanismes à l'échelle macromoléculaire. Ainsi l'étude des phénomènes de diffusion de l'eau, de gélatinisation de l'amidon ou de solubilisation en surface de composants, comme des protéines, serait susceptible d'apporter des résultats complémentaires sur la contribution de la matière première lors de la structuration d'un grain de couscous. Ce travail amène une base de compréhension de l'ensemble des opérations unitaires du procédé, mais il soulève également de nombreuses questions sur ce même enjeu de « couscousabilité ».

REFERENCES

Références

AACC, 2000. American Association of Cereal Chemists, Official M. ed. The Association, St. Paul, MN, USA.

Abberger, T., Seo, A., Schæfer, T., 2002. The effect of droplet size and powder particle size on the mechanisms of nucleation and growth in fluid bed melt agglomeration. Int. J. Pharm. 249, 185–197.

Abecassis, J., Cuq, B., Boggini, G., Namoune, H., 2012. Other traditional durum derived products, in: Durum Wheat: Chemistry and Technology. pp. 177–200.

AFNOR, 1970. Directives générales pour le dosage de l'azote avec minéralisation selon la méthode de Kjeldahl, in: Norme Française V03-050.

Ahmadian, H., Hassanpour, A., Ghadiri, M., 2011. Analysis of granule breakage in a rotary mixing drum: experimental study and distinct element analysis. Powder Technol. 210, 175–180.

André, C., Demeyre, J.F., Gatumel, C., Berthiaux, H., Delaplace, G., 2014. Derivation of dimensionless relationships for the agitation of powders of different flow behaviours in a planetary mixer. Powder Technol. 256, 33–38.

Atterberg, A., 1911. Die Plastizität der Tone. Int. Mitteilungen Für Bodenkd. 10–43.

Ax, K., Feise, H., Sochon, R., Hounslow, M., Salman, A., 2008. Influence of liquid binder dispersion on agglomeration in an intensive mixer. Powder Technol. 179, 190–194.

Bahrani, S.A., 2013. Modification des propriétés physico-chimiques de l'amidon par procédés hydrothermiques: Contribution à l'étude des transferts couplés chaleur-masse. Université de La Rochelle.

Banjac, M., Stakic, M., Voronjec, D., 1998. Kinetics of agglomeration of milk powder in a vibro-fluidized bed, in: 11th International Drying Symposium. pp. 998–1005.

Barbosas-Canovas, G.V., Ortega-Rivas, E., Juliano, P., Yan, H., 2005. Food Powders: physical properties, processing, and functionality, Kluwer Aca. ed. Plenum Publishers.

Barkouti, A., 2012. Agglomération humide de poudres à réactivité de surface - Approche mécanistique de la morphogénèse de structures alimentaires agglomérées. Thèse de docotrat. Université de Montpellier 2.

Barkouti, A., Delalonde, M., Rondet, E., Ruiz, T., 2014. Structuration of wheat powder by wet agglomeration: Case of size association mechanism. Powder Technol. 252, 8–13.

Barkouti, A., Rondet, E., Delalonde, M., Ruiz, T., 2012. Influence of physicochemical binder properties on agglomeration of wheat powder in couscous grain. J. Food Eng. 111, 234–240.

Barkouti, A., Turchiuli, C., Carcel, J.A., Dumoulin, E., 2013. Milk powder agglomerate growth and properties in fluidized bed agglomeration. Dairy Sci. Technol. 93, 523–535.

Bayram, M., 2005. Modelling of cooking of wheat to produce bulgur. J. Food Eng. 71, 179–186.

Bellocq, B., Ruiz, T., Delaplace, G., Duri, A., Cuq, B., 2017. Screening efficiency and rolling effects of a rotating screen drum used to process wet soft agglomerates. J. Food Eng. 195, 235–246.

Benali, M., Gerbaud, V., Hemati, M., 2009. Effect of operating conditions and physico-chemical properties on the wet granulation kinetics in high shear mixer. Powder Technol. 190, 160–169.

Biggs, C.A., Sanders, C., Scott, A.C., Willemse, A.W., Hoffman, A.C., Instone, T., Salman, A.D., Hounslow, M.J., 2003. Coupling granule properties and granulation rates in high-shear granulation. Powder Technol. 130, 162–168.

Bika, D.G., Gentzler, M., Michaels, J.N., 2001. Mechanical properties of agglomerates. Powder Technol. 117, 98–112.

Boerefijn, R., Hounslow, M.J., 2005. Studies of fluid bed granulation in an industrial R&D context. Chem. Eng. Sci. 60, 3879–3890.

Braumann, A., Kraft, M., Mort, P.R., 2010. Parameter estimation in a multidimensional granulation model. Powder Technol. 197, 196–210.

Bruneel, C., Pareyt, B., Brijs, K., Delcour, J.A., 2010. The impact of the protein network on the pasting and cooking properties of dry pasta products. Food Chem. 120, 371–378.

Cantor, S.L., Kothari, S., Koo, O.M.Y., 2009. Evaluation of the physical and mechanical properties of high drug load formulations: Wet granulation vs. novel foam granulation. Powder Technol. 195, 15–24.

Castel, B., 1995. Mise en forme des solides. 1. Aspects théoriques. Ed. Techniques Ingénieur.

Charonnat, Y., 1999. Fabrication du béton hydraulique. Ed. Techniques Ingénieur.

Chen, Y.-S., Hsiau, S.-S., Lee, H.-Y., Chyou, Y.-P., Hsu, C.-J., 2010. Size separation of particulates in a trommel screen system. Chem. Eng. Process. Process Intensif. 49, 1214–1221.

Chevalier, E., Viana, M., Pouget, C., Chulia, D., 2007. Influence of process parameters on pellets elaborated in a Mi-Pro high-shear granulator. Pharm. Dev. Technol. 12, 133–144.

Chouk, V., Reynolds, G., Hounslow, M., Salman, A., 2009. Single drop behaviour in a high shear granulator. Powder Technol. 189, 357–364.

Conway, S.L., Lekhal, A., Khinast, J.G., Glasser, B.J., 2005. Granular flow and segregation in a four-bladed mixer. Chem. Eng. Sci. 60, 7091–7107.

Cuq, B., Abecassis, J., Guilbert, S., 2003a. State diagrams to help describe wheat bread processing. Int. J. Food Sci. Technol. 38, 759–766.

Cuq, B., Abecassis, J., Morel, M.H., 2014. La physique et la chimie au service de l'élaboration des pâtes alimentaires, in: Sciences Culinaires, Matière, Procédés, Dégustation. pp. 28–51.

Cuq, B., Gonc, F., Franc, J., Vareille, L., 2003b. Effects of moisture content and temperature of spaghetti on their mechanical properties. J. Food Eng. 59, 51–60.
Cuq, B., Icard-Vernière, C., 2001. Characterisation of glass transition of durum wheat semolina using modulated differential scanning calorimetry. J. Cereal Sci. 33, 213–221.
Cuq, B., Mandato, S., Jeantet, R., Saleh, K., Ruiz, T., 2013. Agglomeration / granulation in food powder production, in: Handbook of Food Powders: Processes and Properties. Woodhead publishing, pp. 150–177.
Cuq, B., Rondet, E., Abecassis, J., 2011. Food powders engineering, between knowhow and science: Constraints, stakes and opportunities. Powder Technol. 208, 244–251.
Da Cruz, F., 2004. Ecoulement de grains secs: Frottement et blocage. Ecole nationale des ponts et chaussées (France).
Dacanal, G.C., Menegalli, F.C., 2010. Selection of operational parameters for the production of instant soy protein isolate by pulsed fluid bed agglomeration. Powder Technol. 203, 565–573.
Debbouz, A., Dick, J.W., Donnelly, B.J., 1994. Influence of raw material on couscous quality. Cereal foods world 39, 231–236.
Debbouz, A., Donnelly, B.J., 1996. Process effect on couscous quality. Cereal Chem.
Delaplace, G., Loubière, K., Ducept, F., Jeantet, R., 2014. Modélisation en génie des procédés par analyse dimensionnelle. Méthode et exemples résolus. Editions Lavoisier TEC et DOC.
Ding, J., Gidaspow, D., 1990. A bubbling fluidization model using kinetic theory of granular flow. AIChE J. 36, 523–538.
Ding, Y.L., Forster, R., Seville, J.P.K., Parker, D.J., 2002. Granular motion in rotating drums : bed turnover time and slumping – rolling transition 124, 18–27.
Ding, Y.L., Forster, R.N., Seville, J.P.K., Parker, D.J., 2001. Scaling relationships for rotating drums 56, 3737–3750.
Duran, J., 1996. Sables, poudres et grains. Introduction à la physique des milieux granulaires, Eyrolles s. ed.
Ennis, B.J., Tardos, G., Pfeffer, R., 1991. A microlevel-based characterization of granulation phenomena. Powder Technol. 65, 257–272.
Fabriani, G., Lintas, C., 1988. Durum wheat: chemistry and technology.
Feillet, P., 2000. Le grain de blé, composition et utilisation, INRA. ed. Paris.
Felix, G., 2002. Ecoulements de milieux granulaires en tambour tournant Étude de quelques transitions de régime. Thèse de doctorat. Institut National Polytechnique de Lorraine.
Fitzpatrick, J., 2013. Powder properties in food production systems, in: Handbook of Food Powders, Processes and Properties. Woodhead publishing.
Forterre, Y., Pouliquen, O., 2008. Flows of dense granular media. Annu. Rev. Fluid Mech. 40, 1–24.
Forterre, Y., Pouliquen, O., 2006. Granular flows. Séminaire poincaré IX 1–40.
Furuuchi, M., 1993. Shape separation of particulates by a rotating horizontal sieve drum 75, 113–118.
Gantt, J.A., Gatzke, E.P., 2006. A stochastic technique for multidimensional granulation modeling. AIChE J. 52, 3067–3077.
Gerstlauer, A., Gahn, C., Zhou, H., Rauls, M., Schreiber, M., 2006. Application of population balances in the chemical industry - Current status and future needs. Chem. Eng. Sci. 61, 205–217.
Gluba, T., 2003. The effect of wetting liquid droplet size on the growth of agglomerates during wet drum granulation. Powder Technol. 130, 219–224.
Gollin, D., Berzi, D., Bowman, E.T., 2017. Extended kinetic theory applied to inclined granular flows: role of boundaries. Granul. Matter 19, 56.
Gray, J.M.N.T., 2001. Granular flow in partially filled slowly rotating drums. J. Fluid Mech. 441, 1–29.
Guezlane, L., 1993. Mise au point de méthodes de caractérisation et étude des modifications physico-chimiques sous l'effet des traitements hydro thermiques en vue d'optimiser la qualité du couscous de blé dur. Thèse de dcotorat. INA d'El Harrach.
Guezlane, L., Abecassis, J., 1991. Méthodes d'appréciation de la qualité culinaire du couscous de blé dur. Ind. Aliment. Agric. 11, 966–971.
Guezlane, L., Colonna, P., Abecassis, J., 1998. Effet des traitements hydrothermiques du couscous de blé sur les modifications physiques de l'amidon. Annales de l'Institut National d'Agronomie. - El Harrach 19(1-2), 62–81.
Hafsa, I., 2014. Maîtrise de la texturation des poudres céréalières réactives : étude des mécanismes d'agglomération humide et de séchage. Application à la semoule de blé dur. Thèse de doctorat. Centres International d'Etudes Supérieures en Sciences Agronomiques Montpellier.
Hafsa, I., Mandato, S., Ruiz, T., Schuck, P., Jeantet, R., Mejean, S., Chevallier, S., Cuq, B., 2015. Impact of the agglomeration process on structure and functional properties of the agglomerates based on the durum wheat semolina. J. Food Eng. 145, 25–36.
Hapgood, K.P., Litster, J.D., Smith, R., 2003. Nucleation regime map for liquid bound granules. AIChE J. 49, 350–361.
Hapgood, K.P., Tan, M.X.L., Chow, D.W.Y., 2009. A method to predict nuclei size distributions for use in models of wet granulation. Adv. Powder Technol. 20, 293–297.
Hartmann, H., Thorsten, B., Peter, D.J., Michael, T., Fabienne, R., Michael, G., 2006. Methods for size classification of

wood chips. Biomass and Bioenergy 30, 944–953.
Hébrard, A., 2002. Granulation de semoules de blé dur. Thèse de doctorat. Ecole nationale supérieure d'agronomie de Montpellier.
Hemati, M., Cherif, R., Saleh, K., Pont, V., 2003. Fluidized bed coating and granulation: Influence of process-related variables and physicochemical properties on the growth kinetics. Powder Technol. 130, 18–34.
Ingram, G.D., Cameron, I.T., 2004. Challenges in multiscale modelling and its application to granulation systems. Dev. Chem. Eng. Miner. Process. 12, 293–308.
Iveson, S.M., 2001. Granule coalescence modelling: Including the effects of bond strengthening and distributed impact separation forces. Chem. Eng. Sci. 56, 2215–2220.
Iveson, S.M., Litster, J.D., 1998. Fundamental studies of granule consolidation. Part 2: Quantifying the effects of particle and binder properties. Powder Technol. 99, 243–250.
Iveson, S.M., Litster, J.D., 1998. Growth regime map for liquid-bound granules. AIChE J. 44, 1510.
Iveson, S.M., Litster, J.D., Hapgood, K.P., Ennis, B.J., 2001. Nucleation, growth and breakage phenomena in agitated wet granulation processes: a review. Powder Technol. 117, 3–39.
Iveson, S.M., Wauters, P.A.L., Forrest, S., Litster, J.D., Meesters, G.M.H., Scarlett, B., 2001. Growth regime map for liquid-bound granules: Further development and experimental validation. Powder Technol. 117, 83–97.
Jacob, M., 2007. Granulation Equipment, in: Handbook of Powder Technology vol.11. Elsevier, Amsterdam, pp. 417–476.
Jaeger, H.M., Nagel, S.R., Behringer, R.P., 1996. Granular solids, liquids, and gases. Rev. Mod. Phys. 68, 1259.
Jenike, A.W., 1964. Storage and flow of solids. Bull Univ. Utah 53, 123.
Ji, J., Fitzpatrick, J., Cronin, K., Fenelon, M.A., Miao, S., 2017. The effects of fluidised bed and high shear mixer granulation processes on water adsorption and flow properties of milk protein isolate powder. J. Food Eng. 192, 19–27.
Jop, P., Forterre, Y., Pouliquen, O., 2006. A constitutive law for dense granular flows. Nature.
Jullien, R., Botet, R., 1987. Aggregation and fractal aggregates. Ann. Telecomm. 41, 343--short.
Jullien, R., Meakin, P., Pavlovitch, A., 1992. Three-dimensional model for particle-size segregation by shaking. Phys. Rev. Lett. 69, 640.
Kaup, S.M., Walker, C.E., 1986. Couscous in North Africa. Cereal foods world.
Keary, C.M., Sheskey, P.J., 2004. Preliminary report of the discovery of a new pharmaceutical granulation process using foamed aqueous binders. Drug Dev. Ind. Pharm. 30, 831–845.
Knight, P., 2004. Challenges in granulation technology. Powder Technol. 140, 156–162.
Knight, P.C., 1993. An investigation of the kinetics of granulation using a high shear mixer. Powder Technol. 77, 159–169.
Knight, P.C., Instone, T., Pearson, J.M.K., Hounslow, M.J., 1998. An investigation into the kinetics of liquid distribution and growth in high shear mixer agglomeration. Powder Technol. 97, 246–257.
Knight, P.C., Johansen, A., Kristensen, H.G., Schæfer, T., Seville, J.P.K., 2000. An investigation of the effects on agglomeration of changing the speed of a mechanical mixer. Powder Technol. 110, 204–209.
Komossa, H., Wirtz, S., Scherer, V., Herz, F., Specht, E., 2014. Transversal bed motion in rotating drums using spherical particles : Comparison of experiments with DEM simulations. Powder Technol. 264, 96–104.
Kopral, W., Poćwiardowski, W., Domoradzki, M., Kaniewska, J., 2011. 60 years of the Faculty of Chemical Technology and Engineering UT & LS in Bydgoszcz Investigation of classifying tomato seeds in drum screen 362–364.
Koval, G., 2008. Comportement d'interface des matériaux granulaires. Thèse de doctorat. Ecole Nationale des Ponts et Chaussées.
Kumar, G.V.P., 2005. Effect of drum-grain-operating parameters on the flow rate through the orifices on the rotating drum. EPL Europhysics Lett. 71, 576.
Laurent, B.F.C., Bridgwater, J., 2002. Influence of agitator design on powder flow. Chem. Eng. Sci. 57, 3781–3793.
Le Moyne, L., 2010. Atomisation, pulvérisation et aérosols. Ed. Techniques Ingénieur.
Lefkir, S., Yahiaoui, K., Yesli, A., Ounane, G., 2017. Hydration rate influence on the couscous quality. J. Food, Agric. Environ. 15, 5–11.
Leuenberger, H., Puchkov, M., Krausbauer, E., Betz, G., 2009. Manufacturing pharmaceutical granules: Is the granulation end-point a myth? Powder Technol. 189, 141–148.
Licciardello, F., Rizzo, V., Grillo, O., Venora, G., Muratore, G., 2013. Bread-making performances of durum wheat semolina, as affected by ageing. J. Cereal Sci. 57, 372–376.
Litster, J.D., Hapgood, K.P., Michaels, J.N., Sims, A., Roberts, M., Kameneni, S.K., Hsu, T., 2001. Liquid distribution in wet granulation: Dimensionless spray flux. Powder Technol. 114, 32–39.
Liu, H., 1999. Science and Engineering of Droplets:: Fundamentals and Applications. William Andrew.
Liu, K., 2009. Some factors affecting sieving performance and efficiency. Powder Technol. 193, 208–213.
Liu, P.Y., Yang, R.Y., Yu, A.B., 2013. DEM study of the transverse mixing of wet particles in rotating drums 86, 99–107.
Lun, C.K.K., Savage, S.B., Jeffrey, D.J., Chepurniy, N., 1984. Kinetic theories for granular flow: inelastic particles in

Couette flow and slightly inelastic particles in a general flowfield. J. Fluid Mech. 140, 223–256.
MacKaplow, M.B., Rosen, L.A., Michaels, J.N., 2000. Effect of primary particle size on granule growth and endpoint determination in high-shear wet granulation. Powder Technol. 108, 32–45.
Magallanes-López, A.M., Ammar, K., Morales-Dorantes, A., Gonzalez-Santoyo, H., Crossa, J., Guzmán, C., 2017. Grain quality traits of commercial durum wheat varieties and their relationships with drought stress and glutenins composition. J. Cereal Sci.
Mandato, S., 2012. Génie des procédés d'agglomération de poudres alimentaires : éléments de phénoménologie des apports d'eau et d'énergie mécanique. Thèse de doctorat. Centre International d'Etudes Supérieures en Sciences Agronomiques de Montpellier.
Mandato, S., Rondet, E., Delaplace, G., Barkouti, A., Galet, L., Accart, P., Ruiz, T., Cuq, B., 2012. Liquids' atomization with two different nozzles: Modeling of the effects of some processing and formulation conditions by dimensional analysis. Powder Technol. 224, 323–330.
Mangwandi, C., Adams, M.J., Hounslow, M.J., Salman, A.D., 2012. An investigation of the influence of process and formulation variables on mechanical properties of high shear granules using design of experiment. Int. J. Pharm. 427, 328–336.
Mansouri, M., Delenne, J.-Y., El Youssoufi, M.S., Séridi, A., 2009. A 3D DEM-LBM approach for the assessment of the quick condition for sands. Comptes Rendus Mécanique 337, 675–681.
Melcion, J.-P., Ilari, J.-L., 2003. Technologie des pulvérulents dans les IAA. Editions Tec & Doc.
Mellmann, J., 2001. The transverse motion of solids in rotating cylinders-forms of motion and transition behavior. Powder Technol. 118, 251–270.
Méot, J.M., 2006. Couscous Technology, in: Congrés Scientifique International "Santé & Environnement" by the Groupe Clextral. pp. 61–77.
Morin, G., Briens, L., 2014. A comparison of granules produced by high-shear and fluidized-bed granulation methods. Pharm. Sci. Technol. 15, 1039–48.
Murrieta-Pazos, I., Gaiani, C., Galet, L., Calvet, R., Cuq, B., Scher, J., 2012. Food powders: Surface and form characterization revisited. J. Food Eng. 112, 1–21.
Nienow, A.W., 1995. Fluidised Bed Granulation and Coating: Applications To Materials, Agriculture and Biotechnology. Chem. Eng. Commun. 139, 233–253.
Nijdam, J.J., Langrish, T.A.G., 2006. The effect of surface composition on the functional properties of milk powders. J. Food Eng. 77, 919–925.
Njeng, A.S.B., 2015. Experimental study and modeling of hydrodynamic and heating characteristics of flighted rotary kilns. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux.
Ohno, I., Hasegawa, S., Yada, S., Kusai, A., Moribe, K., Yamamoto, K., 2007. Importance of evaluating the consolidation of granules manufactured by high shear mixer. Int. J. Pharm. 338, 79–86.
Oulahna, D., Cordier, F., Galet, L., Dodds, J.A., 2003. Wet granulation: the effect of shear on granule properties. Powder Technol. 130, 238–246.
Oulahna, D., Hebrard, A., Cuq, B., Abecassis, J., Fages, J., 2012. Agglomeration of durum wheat semolina: Thermodynamic approaches for hydration properties measurements. J. Food Eng. 109, 619–626.
Ounane, G., Cuq, B., Abecassis, J., Yesli, A., Ounane, S.M., 2006. Effects of physicochemical characteristics and lipid distribution in Algerian durum wheat semolinas on the technological quality of couscous. Cereal Chem. 83, 377–384.
Palzer, S., 2011. Agglomeration of pharmaceutical, detergent, chemical and food powders - Similarities and differences of materials and processes. Powder Technol. 206, 2–17.
Pashminehazar, R., Kharaghani, A., Tsotsas, E., 2016. Three dimensional characterization of morphology and internal structure of soft material agglomerates produced in spray fluidized bed by X-ray tomography. Powder Technol. 300, 46–60.
Pathare, P.B., Baş, N., Fitzpatrick, J.J., Cronin, K., Byrne, E.P., 2012. Production of granola breakfast cereal by fluidised bed granulation. Food Bioprod. Process. 90, 549–554.
Peleg, M., 1977. Flowability of food powders and methods for its evaluation—a review. J. Food Process Eng. 1, 303–328.
Philippsen, C.G., Vilela, A.C.F., Zen, L.D., 2015. Fluidized bed modeling applied to the analysis of processes: Review and state of the art. J. Mater. Res. Technol. 4, 208–216.
Pouliquen, O., 2004. Ecoulements granulaires secs. Habilitation à Diriger les Recherches.
Pouliquen, O., Andreotti, B., Forterre, Y., 2001. Les milieux granulaires: entre fluide et solide. Cours de l'ENSTA.
Pouliquen, O., Jop, P., Reddy, A., Guillard, F., 2012. Rheology of dense granular flows : Simple constitutive law and non-local effects granular material : continuum approach.
Rajchenbach, J., 2000. Granular flows. Adv. Phys. 49, 28.
Ramaker, J.S., Jelgersma, M.A., Vonk, P., Kossen, N.W.F., 1998. Scale-down of a high-shear pelletisation process: flow profile and growth kinetics. Int. J. Pharm. 166, 89–97.

Rambali, B., Baert, L., Massart, D.L., 2001. Using experimental design to optimize the process parameters in fluidized bed granulation on a semi-full scale. Int. J. Pharm. 220, 149–160.

Ranodolph, A.D., Larson, M.A., 1988. Theory of particulate processes: analysis and techniques of continuous crystallization. Elsevier.

Reynolds, G.K., Fu, J.S., Cheong, Y.S., Hounslow, M.J., Salman, A.D., 2005. Breakage in granulation: A review. Chem. Eng. Sci. 60, 3969–3992.

Rieck, C., Hoffmann, T., Bück, A., Peglow, M., Tsotsas, E., 2015. Influence of drying conditions on layer porosity in fluidized bed spray granulation. Powder Technol. 272, 120–131.

Rondet, E., 2008. Texturation capillaire de milieux granulaires humides. Thèse de doctorat. Université de Montpellier 2.

Rondet, E., Cuq, B., Cassan, D., Ruiz, T., 2016. Agglomeration of wheat powders by a novel reverse wet agglomeration process. J. Food Eng. 173, 92–105.

Rondet, E., Delalonde, M., Ruiz, T., Desfours, J.P., 2010. Fractal formation description of agglomeration in low shear mixer. Chem. Eng. J. 164, 376–382.

Rondet, E., Delalonde, M., Ruiz, T., Desfours, J.P., 2008. Hydro-textural and dimensional approach for characterising wet granular media agglomerated by kneading. Chem. Eng. Res. Des. 86, 560–568.

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

Rondet, E., Ruiz, T., Cuq, B., 2013. Rheological and mechanical characterization of wet agglomerates processed in low shear mixer. J. Food Eng. 117, 67–73.

Rondet, E., Rundgsiyopas, M., Ruiz, T., Delalonde, M., Desfours, J.P., 2009. Hydrotextural description of an unsaturated humid granular media: Application for kneading, packing and drying operations. KONA Powder Part. J. 27, 174–185.

Rosato, A., Strandburg, K.J., Prinz, F., Swendsen, R.H., 1987. Why the Brazil nuts are on top: Size segregation of particulate matter by shaking. Phys. Rev. Lett. 58, 1038.

Ruiz, T., 2012. Explorations d ' archétypes de mélanges grains , gouttes , bulles. Habilitation à diriger des recherches. Université de Montpellier 2.

Ruiz, T., Delalonde, M., Bataille, B., Baylac, G., De Crescenzo, C.D., 2005. Texturing unsaturated granular media submitted to compaction and kneading processes. Powder Technol. 154, 43–53.

Ruiz, T., Rondet, E., Cuq, B., 2014. La graine de couscous. De l'artisanat à la croissance fractale, in: Sciences Culinaires, Matière, Procédés, Dégustation. pp. 52–73.

Ruiz, T., Rondet, E., Delalonde, M., Desfours, J.P., 2011. Hydro-textural and consistency surface states of humid granular media. Powder Technol. 208, 409–416.

Ryan J., Singh M., Pala M., 2008. Long-term cereal-based rotation trials in the Mediterranean region: implications for cropping sustainability. Adv. Agron. 97, 273-319.

Rungsiyopas M., Ruiz T., 2017. Modelling of the shape effect on the drying shrinkage of wet granular materials. *Chem. Eng. Res. and Des*. (submitted).

Saad, M., 2011. Etude des mécanismes d'agglomération des poudres céréaliers: contribution des caractéristiques physiques et chimiques des particules sur leur réactivité. Application pour la fabrication de couscous. Thèse de doctorat. Centre International d'Etudes Supérieures en Sciences Agronomiques de Montpellier.

Saad, M., Sadoudi, A., Rondet, E., Cuq, B., 2011. Morphological characterization of wheat powders, how to characterize the shape of particles? J. Food Eng. 102, 293–301.

Saad, M., Barkouti, A., Rondet, E., Ruiz, T., Cuq, B., 2011. Study of agglomeration mechanisms of food powders: Application to durum wheat semolina. Powder Technol. 208, 399–408.

Saleh, K., Guigon, P., 2009a. Caractérisation et analyse des poudres. Propriétés physiques des solides divisés. Ed. Techniques Ingénieur.

Saleh, K., Guigon, P., 2009b. Mise en oeuvre des poudres. Techniques de granulation humide et liants. Ed. Techniques Ingénieur.

Saleh, K., Guigon, P., 2009c. Mise en œuvre des poudres Granulation humide : bases et théorie. Ed. Techniques Ingénieur.

Saleh, K., Vialatte, L., Guigon, P., 2005. Wet granulation in a batch high shear mixer. Chem. Eng. Sci. 60, 3763–3775.

Sanders, C.F.W., Hounslow, M.J., Doyle, F.J., 2009. Identification of models for control of wet granulation. Powder Technol. 188, 255–263.

Sapirstein, H.D., David, P., Preston, K.R., Dexter, J.E., 2007. Durum wheat breadmaking quality: Effects of gluten strength, protein composition, semolina particle size and fermentation time. J. Cereal Sci. 45, 150–161.

Schaafsma, S.H., Kossen, N.W.F., Mos, M.T., Blauw, L., Hoffmann, A.C., 1999. Effects and control of humidity and particle mixing in fluid-bed granulation. AIChE J. 45, 1202–1210.

Schaafsma, S.H., Vonk, P., Segers, P., Kossen, N.W.F., 1998. Description of agglomerate growth. Powder Technol. 97, 183–190.

Schæfer, T., Johnsen, D., Johansen, A., 2004. Effects of powder particle size and binder viscosity on intergranular and

intragranular particle size heterogeneity during high shear granulation. Eur. J. Pharm. Sci. 21, 525–531.
Scott, D.M., Davidson, J.F., Cheah, S.E., Chua, C., Gummow, J.G., Lam, B.P.M., Reder, I., 2009. Transient Granular Flows in an Inclined Rotating Cylinder : Filling and Emptying 159–165.
Smirani-Khayati, N., Falk, V., Bardin-Monnier, N., Marchal-Heussler, L., 2009. Binder liquid distribution during granulation process and its relationship to granule size distribution. Powder Technol. 195, 105–112.
Smith, P.G., Nienow, A.W., 1983. Particle growth mechanisms in fluidised bed granulation - the effect of process variables. Chem. Eng. Sci. 38.
Spurling, R.J., Davidson, J.F., Scott, D.M., 2001. The transient response of granular flows in an inclined rotating cylinder. Chem. Eng. Res. Des. 79, 51–61.
Tan, H.., Salman, A.D., Hounslow, M.J., 2006. Kinetics of fluidised bed melt granulation I: The effect of process variables. Chem. Eng. Sci. 61, 1585–1601.
Tan, H., Goldschmidt, M., Boerefijn, R., Hounslow, M., Salman, D., Kuipers, J., 2005. Population Balance Modelling of Fluidized Bed Melt Granulation An Overview. Chem. Eng. Res. Des. 83, 871–880.
Tan, M.X.L., Hapgood, K.P., 2011. Foam granulation: Liquid penetration or mechanical dispersion? Chem. Eng. Sci. 66, 5204–5211.
Tan, M.X.L., Wong, L.S., Lum, K.H., Hapgood, K.P., 2009. Foam and drop penetration kinetics into loosely packed powder beds. Chem. Eng. Sci. 64, 2826–2836.
Tavman, S., 1998. Measurement of Effective Thermal Conductivity of Wheat 25, 733–741.
Tufvesson F., Wahlgren M., Eliasson A-C., 2003. Formation of amylose-lipide complexes and effects of temperature treatment. Part 2. fatty acids. Starch/Starcke. 55, 138-149.
Turchiuli, C., Castillo-Castaneda, E., 2009. Agglomerates structure characterization using 3D-image reconstruction. Part. Part. Syst. Charact. 26, 25–33.
Turchiuli, C., Eloualia, Z., El Mansouri, N., Dumoulin, E., 2005a. Fluidised bed agglomeration: Agglomerates shape and end-use properties. Powder Technol. 157, 168–175.
Turchiuli, C., Fuchs, M., Bohin, M., Cuvelier, M.E., Ordonnaud, C., Peyrat-Maillard, M.N., Dumoulin, E., 2005b. Oil encapsulation by spray drying and fluidised bed agglomeration. Innov. Food Sci. Emerg. Technol. 6, 29–35.
Turchiuli, C., Smail, R., Dumoulin, E., 2013. Fluidized bed agglomeration of skim milk powder: Analysis of sampling for the follow-up of agglomerate growth. Powder Technol. 238, 161–168.
Van Den Dries, K., De Vegt, O.M., Girard, V., Vromans, H., 2003. Granule breakage phenomena in a high shear mixer; influence of process and formulation variables and consequences on granule homogeneity. Powder Technol. 133, 228–236.
Verkoeijen, D., Pouw, G.A., Meesters, G.M.H., Scarlett, B., 2002. Population balances for particulate processes—a volume approach. Chem. Eng. Sci. 57, 2287–2303.
Vicsek, T., 1983. Fractal models for diffusion controlled aggregation. J. Phys. A. Math. Gen. 16, L647.
Wade, J.B., Martin, G.P., Long, D.F., 2015. The evolution of granule fracture strength as a function of impeller tip speed and granule size for a novel reverse-phase wet granulation process. Int. J. Pharm. 488.
Wagner, G.L., 2013. Granular flow in a Rotating Drum 1–29.
Waldie, B., 1991. Growth mechanism and the dependence of granule size on drop size in fluidized-bed granulation. Chem. Eng. Sci. 46, 2781–2785.
Waldie, B., Wilkinson, D., Zachra, L., 1987. Kinetics and mechanisms of growth in batch and continuous fluidized bed granulation. Chem. Eng. Sci. 42, 653–665.
Walker, G.M., Andrews, G., Jones, D., 2006. Effect of process parameters on the melt granulation of pharmaceutical powders. Powder Technol. 165, 161–166.
Washino, K., Tan, H.S., Hounslow, M.J., Salman, A.D., 2013. Meso-scale coupling model of DEM and CIP for nucleation processes in wet granulation. Chem. Eng. Sci. 86, 25–37.
Watano, S., Sato, Y., Miyanami, K., Murakami, T., Ito, Y., Kamata, T., Oda, N., 1995. Scale-Up of Agitation Fluidized Bed Granulation. I. Preliminary Experimental Approach for Optimization of Process Variables. Chem. Pharm. Bull. 43, 1212–1216.
Whitelaw, J.H., 1997. Convective heat transfer. Int. Encycl. Heat Mass Transf.
Wildeboer, W.J., Koppendraaier, E., Litster, J.D., Howes, T., Meesters, G., 2007. A novel nucleation apparatus for regime separated granulation. Powder Technol. 171, 96–105.
Yan, X., Specht, E., 2010. Predicting the fraction of the mixing zone of a rolling bed in rotary kilns. Chem. Eng. Sci. 65, 3059–3063.
Yu, H., Fu, J., Dang, L., Cheong, Y., Tan, H., Wei, H., 2015. Prediction of the particle size distribution parameters in a high shear granulation process using a key parameter definition combined artificial neural network model. Ind. Eng. Chem. Res.
Zhai, H., Li, S., Andrews, G., Jones, D., Bell, S., Walker, G., 2009. Nucleation and growth in fluidised hot melt granulation. Powder Technol. 189, 230–237.

Approche multi-échelles pour la maîtrise technologique de la transformation de la semoule de blé dur en couscous

La production de grains de couscous a fait l'objet de peu de recherches techniques et scientifiques. Le design, l'innovation et la production de grains à l'échelle industrielle s'appuient encore sur un « relatif empirisme ». Le travail de thèse porte sur l'ensemble des quatre opérations unitaires pour la transformation de la semoule de blé dur en grains de couscous : l'agglomération, le roulage, la cuisson et le séchage. L'approche expérimentale a été menée avec des équipements pilotes en laboratoire. L'approche multi-échelles « produit-procédé-processus » repose sur l'étude des contributions couplées de la réactivité des particules de semoule avec l'ajout d'eau et des facteurs thermo-hydro-mécaniques des procédés. L'approche intègre les sciences fondamentales (physique des milieux granulaires), le génie des procédés et les sciences des aliments. Les agglomérats de couscous sont caractérisés par des critères relevant de propriétés morpho-granulométriques (taille et circularité), compacité et teneur en eau. Les mécanismes de structuration de la semoule de blé dur en agglomérats de couscous sont étudiés *via* l'approche hydro-texturale. Une étude de l'opération d'agglomération permet d'appréhender l'effet du procédé et de la formulation (contribution des caractéristiques physiques et physico-chimiques de la semoule de blé dur) sur les mécanismes de structuration des agglomérats humides de couscous. Une étude sur l'opération de roulage est réalisée par suivi des caractéristiques des agglomérats (avant et après roulage) et par une analyse matricielle afin d'appréhender la fonction d'agglomération et de classification de l'appareil. Les études cinétiques à la cuisson et au séchage sont décrites par des mesures rhéologiques, de transferts d'eau et de réactions chimiques au sein des agglomérats de couscous. Les travaux ont permis d'étudier la faisabilité de l'agglomération de grains de couscous par un procédé « innovant » pour la filière, le lit fluidisé.

Multi-scales approach for the technological knowledge of durum wheat semolina transformation in couscous

Few technical and scientifical researches have been done on couscous grains production. Design, innovation and production of grains at an industrial scale, are made through a "relative empiricism". This thesis deals with the four unit operations for the production of couscous grains based on durum wheat semolina: agglomeration, rolling, cooking and drying. The experimental approach has been conducted with pilot and laboratory equipment's. The multi-scales approach «product-process-processus» rely on contributions studies coupled with semolina particles reactivity with the addition of water and thermo-hydro-mechanical process factors. The approach includes fundamental sciences (physic of granular matter), process engineering and food sciences. Couscous agglomerates are characterized by their morpho-granulometric properties (size and circularity), compactness and water content. Mechanisms of structuration of the couscous grains are studied *via* the hydro-textural approach. A study of the agglomeration operation allows understanding process and formulation effects (contribution of the physical and physico-chemical characteristics of durum wheat semolina) on structuration mechanisms of wet agglomerates of couscous. A study on rolling operation is realized by a monitoring of agglomerates characteristics (before and after rolling) and by a matrix analysis in order to understand the role of the apparatus in the function of agglomeration and classification. Kinetic studies during cooking and drying are described by rheological measurements, water transfers and chemical reactions in the couscous grains. This work have also allowed studying the agglomeration feasibility of the couscous grains by an « innovative » process for the area, in a fluidized bed equipment.