

Étude expérimentale et modélisation de mélangeurs convectifs : agitation de poudres de différentes coulabilités

Léonard Legoix

► To cite this version:

Léonard Legoix. Étude expérimentale et modélisation de mélangeurs convectifs : agitation de poudres de différentes coulabilités. Génie des procédés. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2016. Français. NNT : 2016EMAC0020 . tel-01673832

HAL Id: tel-01673832 https://theses.hal.science/tel-01673832

Submitted on 1 Jan 2018

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.





en vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

délivré par l'École nationale supérieure des Mines d'Albi-Carmaux

présentée et soutenue par Léonard LEGOIX

le 25 Novembre 2016

Étude expérimentale et modélisation de mélangeurs convectifs : agitation de poudres de différentes coulabilités

Experimental study and modeling of convective mixers : agitation of powders of different flowabilities

École doctorale et discipline ou spécialité : ED MEGEP : École Doctoral Mécanique, Énergétique, Génie civil & Procédés

> Unité de recherche : Centre RAPSODEE, CNRS - UMR 5302, Mines Albi

Directeur(s) de Thèse : M. Henri Berthiaux, Professeur, Mines Albi, Albi *(Directeur)* M^{me} Cendrine Gatumel, Maître-Assistante, Mines Albi, Albi *(Co-Directrice)*

Autres membres du jury :

M^{me} Véronique Falk, Professeur, Université de Lorraine, Nancy (*Présidente*)
M. Thierry Ruiz, Maître de conférences, Université de Montpellier 2, Montpellier (*Examinateur*)
M. Guillaume Delaplace, Directeur de recherche, INRA, Villeneuve d'Ascq (*Rapporteur*)
M. Khashayar Saleh, Professeur, Université Technologique de Compiègne, Compiègne (*Rapporteur*)
M. Mathieu Milhé, Maître-Assitant, Mines Albi, Albi (*Co-Encadrant*)

Remerciements

Je souhaite tout d'abord remercier les deux rapporteurs de ce travail, Guillaume Delaplace et Khashayar Saleh, qui ont accepté d'évaluer ce manuscrit de thèse. Merci aussi à Véronique Falk pour avoir présidé le jury, et à Thierry Ruiz pour avoir examiné et pour avoir partagé son avis à propos de mon travail.

Je tiens à remercier mes trois encadrants Henri Berthiaux, Cendrine Gatumel et Mathieu Milhé pour m'avoir guidé pendant cette thèse. Merci de m'avoir transmis vos connaissances scientifiques, mais aussi de m'avoir appris à effectuer une démarche de recherche scientifique, avec les aspects expérimentaux et rédactionnels qui vont avec. Les résultats de ce manuscrit, sous la forme de cinq articles, a nécessité un important travail et je suis conscient que vous y avez aussi consacré beaucoup de votre énergie. Merci à Mathieu d'avoir rejoint ma thèse et d'avoir apporté son point de vue novateur sur le travail en cours.

Je souhaite remercier Vadim Mizonov pour son aide sur la création du modèle d'agitation des poudres. Ses conseils m'ont permis de créer ce modèle stochastique adapté au dispositif expérimental. Un grand merci à Laurent Devriendt et Pierre Bertorelle, pour votre contribution à la réalisation des expériences de rhéologie. Merci aussi à tous les autres membres du pôle technique du laboratoire qui ont participé à cette thèse (Philippe Accart, Christine Rolland, Denis Marty, Céline Boachon, Sylvie Delconfetto et Séverine Patry). Merci aux trois stagiaires qui ont participé activement à la réalisation des expériences de rhéologie et de traçage des poudres : Manon Bru, Luana Grillet et Asma Toualoua.

D'un point de vue plus général, je remercie tous les techniciens, ingénieurs, enseignants chercheurs et secrétaires du laboratoire pour leur compagnie et leur soutien pendant ces trois ans de thèse. Je remercie aussi tous les doctorants (Damien, Haithem, Lucia, Margot, Hugo, Graciella, Jacqueline, Romeu... la liste est trop longue !) avec qui j'ai passé de bons moments, aussi bien dans le laboratoire qu'à l'extérieur. Merci aux enseignants que j'ai croisé en salle de cours pendant mon cursus d'ingénieur aux Mines d'Albi. Merci à Laurène Haurie pour m'avoir invitée chez elle et pour les moments qu'on a passé ensemble avec Fanny.

Un grand merci à ma famille et belle famille pour m'avoir soutenu, et à ceux qui ont pu venir de loin pour assister à ma soutenance. Merci à Gérard Vuibert pour son soutien pendant ces dernières années. Merci à mes parents, Olivier et Goretti pour m'avoir fait persévérer dans les études depuis le début, et à mon frère Ludovic pour son aide, aussi bien du point de vue moral que scientifique.

Enfin, merci à Fanny Cavaillès de m'avoir soutenu pendant les moments difficiles et pour l'amour que tu m'as donnée pendant cette thèse, et que tu me donnes encore chaque jour !

Je dédicace ce travail de thèse à mon grand frère Nicolas, que je n'ai pas eu le bonheur de connaître.

Introduction générale

Chapitre I : Bibliographie	5
1. Les caractéristiques des poudres	6
1.1. Propriétés générales	6
1.2. Phénomènes remarquables	11
1.3. Etude des empilements granulaires	14
2. Rhéologie des poudres	17
2.1. Généralités sur la rhéologie des poudres	17
2.2. Ecoulement des poudres autour de pales	24
3. Mélange des poudres	27
3.1. Les états de mélange	27
3.2. Critères d'acceptation d'un mélange	28
3.3. L'échantillonnage	32
3.4. L'analyse des échantillons	34
3.5. La cinétique de mélange	35
4. Les mélangeurs discontinus	37
4.1. Les mélangeurs simples	37
4.2. Les mélangeurs à mouvements complexe	40
5. Modélisation par chaînes de Markov du mélange des poudres	42
5.1. Application des chaînes de Markov au mélange des poudres	43
5.2. Modélisation et simulations de mélangeurs	45
Chapitre II : Matériels et Méthodes	57
1. Les poudres utilisées	58
2. Les techniques de caractérisation	63
2.1. Le voluménomètre Erweka	63
2.2. Le rhéomètre Freeman FT4	64
3. Le mélangeur Triaxe [®]	66
3.1. Description	66
3.2. Protocole de rhéométrie	68
4. Le mélangeur prototype polyvalent	70
4.1. Description	70
4.2. Protocole de mesures rhéologiques	72
4.3. Préparation d'un traceur de la semoule et du lactose fin	73

1

4.4. Protocole de mélange des poudres	74
4.5. Echantillonnage et analyse des mélanges semoule-semoule iodée	77
4.6. Echantillonnage et analyse des mélanges lactose fin-talc	80
Structure des chapitres III et IV	85
Chapitre III : Etude expérimentale de la rhéologie des poudres en mélangeur convectif	87
planétaire Triaxe [®]	
III.1 : Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender	89
1. Introduction	89
2. Materials and methods	92
2.1. Powder characterization	92
2.2. Experimental set up and procedure	97
3. Results and discussion	101
3.1. Power consumption during Triaxe experiments	101
3.2. Correlation between dimensionless coefficients and cohesion	106
3.3. Influence of the filling ratio	110
4. Conclusion	112
III.2 : How to characterize powders in order to predict their macroscopic flow	119
behavior during agitation ?	
1. Introduction	120
2. Materials and methods	122
2.1. Powders	122
2.2. Characterization of powders	124
2.3. Rheological measurements	130
3. Results of characterizations	132
3.1. Flowability of single powders	132
3.2. Flowability of mixtures	133
3.3. Microscopic structure of the mixtures	135
4. Results of rheological measurements	137
4.1. Single powders	137
4.2. Mixtures M1 and M2	140
5. Conclusions	143
Chapitre IV : Etude expérimentale et modélisation d'un mélangeur convectif prototype	153
IV.1 : Analysis of powder flow and in-system rheology in a horizontal	155
convective mixer with reclining blades	
1. Introduction	155
2. Materials and methods	157

2.1. Powders considered	157
2.2. Convective blender prototype	158
2.3. Experimental procedure	161
2.4. Attrition and temperature	163
3. Identification of powder flow regimes	163
3.1. Free-flowing material flow	163
3.2. Cohesive powder flow	166
4. In-mixer rheology	168
4.1. Influence of blade inclination	168
4.2. Influence of filling ratio	170
5. Dimensionless representation	171
5.1. Establishment of a general correlation	172
5.2. Comparison with a planetary blender	173
6. Concluding remarks	175
IV.2 : Powder flow dynamics in a horizontal convective blender:	181
tracer experiments	
1. Introduction	181
2. Materials and methods	184
2.1. Powders used	184
2.2. Prototypal convective blender	185
2.3. Tracking experiments	186
3. Results and discussion	190
3.1. Low speed stirring of free-flowing powders	190
3.2. Low speed stirring of cohesive powders	195
3.3. High speed stirring of free-flowing powders	200
3.4. High speed stirring of cohesive powders	202
4. Concluding remarks	204
IV.3 : Powder flow dynamics in a horizontal convective blender:	213
Markov chain modelling	
1. Introduction	213
2. Markov chain model of powder flow in a convective blender	215
2.1. Blender studied	215
2.2. Model description	216
3. Determination of model parameters for free-flowing and cohesive	219
powders	
3.1. Fitting method	219
3.2. Model parameters for free-flowing powder	220
3.3. Model parameters for cohesive powder	223

Conclusion générale	235
5. Concluding remarks	229
4.2. Cohesive powder model	228
4.1. Free-flowing powder model	228
4. Model sensitivity analysis	227

Les poudres sont utilisées dans la plupart des industries, comme l'industrie agro-alimentaire et du BTP, qui en font parties des plus grandes consommatrices. Elles sont aussi employées en industrie pharmaceutique, chimique et nucléaire, où les quantités sont moindres mais la valeur ajoutée du produit final est plus importante. Les poudres sont des milieux de nature discrète, constitués d'une multitude de particules, ayant des propriétés de taille ou de forme plus ou moins proches les unes des autres. De part cette nature, les trois états classiques de la matière qui sont l'état solide, liquide et gazeux, ne peuvent pas être associés à de tels milieux. En effet, une poudre peut être considérée comme un solide lorsqu'elle est confinée dans un paquet sous vide ou lors de déformations quasi-statiques, comme un liquide quand elle s'écoule de façon dense et comme un gaz lors d'écoulements rapides où elle est dispersée. En industrie, l'état de la poudre désiré dépendra principalement de l'opération effectuée. Par exemple, lors d'une opération de fluidisation, une poudre avec un comportement de type gaz, où les particules sont individualisées, est souhaité, alors que pour la vidange d'un silo, un écoulement similaire à celui des liquides est préférable. C'est ce bon écoulement d'une poudre qui est souvent recherché dans l'industrie, car une poudre qui s'écoule mal est difficile à manipuler entre et pendant chaque opération de transformation.

Deux types de poudres peuvent être distingués : les poudres à écoulement libre, pratiques à manipuler car elles s'écoulent facilement mais elles sont donc sensibles à la ségrégation, et les poudres cohésives, qui nécessitent plus d'effort pour être mises en mouvement. Les poudres sèches, constituées de particules solides dans un environnement gazeux, sont plus cohésives lorsque la taille des particules diminue. Cette diminution de taille est parfois voulue car elle permet d'améliorer certaines propriétés d'usage du produit final, comme une biodisponibilité pour les médicaments, ou une cinétique de réaction en chimie. Aujourd'hui, ces poudres de faible taille sont d'un grand intérêt pour l'industrie.

Les opérations de mélange des poudres permettent d'homogénéiser plusieurs poudres entre elles dans le but d'obtenir un mélange avec des propriétés d'usage améliorées. Mais si cette opération est mal effectuée, la propriété d'usage n'est pas celle attendue et n'est pas uniforme dans le produit fini. L'homogénéisation dépend d'une part des propriétés de chaque poudre, et d'autre part, du procédé de mélange employé. Diverses technologies de mélange existent, mais les procédés convectifs, constitués d'une cuve fixe et d'un mobile d'agitation, semblent être les plus aptes à mélanger aussi bien les poudres à écoulement libre que les poudres cohésives. En effet, contrairement aux mélangeurs à cuve tournante, le mouvement du mobile des mélangeurs convectifs semble plus apte à casser les éventuels agglomérats formés pendant l'agitation, mais aussi à induire des forces s'opposant au poids des particules, qui est la seule force à l'origine du mouvement des poudres à écoulement libre.

La rhéologie des poudres permet d'évaluer les forces nécessaires à un équipement pour mettre une poudre en mouvement. Elle peut être effectuée directement à l'échelle du procédé de mélange, ou au laboratoire, dans des conditions opératoires plus éloignées des conditions industrielles, mais dont l'échelle plus petite permet d'économiser du temps opératoire, de la matière et de l'énergie. Il est actuellement difficile de mettre en lien ces mesures rhéologiques avec l'efficacité d'une opération de mélange.

Cette thèse s'intéresse principalement à l'agitation des poudres. Cette opération est une opération de mélange où quel que soit le nombre de constituants, l'ensemble du mélange est considéré comme un seul milieu avec ses propres caractéristiques. L'objectif de ce travail est d'apporter des réponses permettant de mieux appréhender la rhéologie et l'agitation de poudres en fonction de leurs propriétés d'écoulements, en mélangeur convectif discontinu. Il s'agit d'une étape clef pour l'établissement futur d'un modèle de mélange des poudres permettant de prédire la qualité d'un mélange, et ce à partir des données rhéologiques de chaque constituant, ou du comportement rhéologique global du mélange pendant l'opération. Ce mémoire, rédigé sous la forme d'un manuscrit sur publications, est constitué de quatre chapitres :

- Le chapitre I est un état de l'art regroupant des connaissances issues de la littérature sur les propriétés des poudres, leurs caractérisations, leurs mélanges et la modélisation de leurs écoulements. Il servira de socle aux expériences et aux calculs réalisés dans ce travail.
- Dans le chapitre II, les poudres ainsi que les deux mélangeurs convectifs employés au cours de cette thèse seront présentés. Les protocoles opératoires de mesures rhéologiques et les techniques d'analyse de poudres-traceurs seront aussi expliqués.
- Le chapitre III constitue le premier chapitre de résultats. Il est essentiellement basé sur l'étude rhéologique d'un mélangeur planétaire pilote : le Triaxe[®], et sa mise en lien avec la caractérisation des poudres à différentes échelles.
- Le second chapitre de résultats, le chapitre IV, présente un mélangeur convectif prototype mis en place au cours de cette thèse. Ce mélangeur est utilisé pour effectuer des observations d'écoulements de poudres et des mesures rhéologiques. De plus, des

expériences de traçage d'une poudre à écoulement libre et d'une poudre cohésive permettront de développer un modèle d'écoulement, basé sur les chaînes de Markov.

Il est important de noter que les numérotations des tableaux, des figures et des équations sont propres à chaque chapitre I, II, III.1, III.2, IV.1, IV.2 et IV.3. Il en est de même pour les références.

La bibliographie présentée regroupe les notions nécessaires pour la compréhension du travail effectué au cours de cette thèse. Des informations générales sur l'agitation et l'écoulement des poudres permettent de comprendre l'importance du travail de caractérisation des poudres et la portée des hypothèses qui seront effectuées sur les modèles. Une deuxième partie de cette bibliographie regroupe des méthodes expérimentales et calculatoires utilisées en rhéologie des poudres. Puis les outils expérimentaux et statistiques pour analyser les mélanges de poudres sont décrits, ainsi que les technologies de mélanges en discontinu. Enfin les différents modèles de mélange des poudres par chaînes de Markov, déjà établis dans la littérature, sont répertoriés.

1. Les caractéristiques des poudres

D'après Richards et Brown (Richards et Brown, 1970), les matériaux granulaires peuvent être classifiés en trois classes principales selon la taille des particules qui les constituent : les poudres, les solides granulaires et les solides divisés (Figure 1).



Figure 1 : Dénomination des matériaux granulaires.

Souvent la dénomination "solides granulaires" est englobée avec la classe des "poudres". Ces matériaux granulaires se retrouvent dans plusieurs états de suspension constitués de particules entourées d'un fluide: les matériaux granulaires secs où le fluide interstitiel est un gaz, saturé lorsque c'est du liquide et partiellement saturé lorsqu'il y a du liquide et du gaz. Dans le cadre de cette thèse, nous étudierons des « poudres granulaires » et des « solides granulaires » secs. Le terme « poudre » sera employé pour désigner ces deux classes de matériaux granulaires.

Cette première partie de la bibliographie permet d'appréhender les bases à connaître avant d'effectuer une étude sur les poudres, car il ne faut pas mener des expériences sur ces matériaux comme avec les fluides ou les solides : plusieurs propriétés et phénomènes spécifiques aux poudres sont à prendre en compte.

1.1. Propriétés générales

La première propriété à laquelle on pense lors de l'étude d'une poudre est la taille des grains qui la compose. Au sein d'une poudre avec un usage donné, il peut y avoir des grains de tailles plus ou moins proches, c'est pour cela qu'une poudre doit être plutôt caractérisée par une distribution granulométrique, listant l'ensemble des tailles des particules. Elle est généralement représentée sous forme de pourcentage de particules en nombre ou en volume présent dans chacune des classes de tailles de l'ensemble. Pour une poudre dont tous les grains ont une taille très proche, on utilisera le terme « distribution granulométrique monodisperse », se représentant sous la forme d'un unique pic sur la courbe de distribution granulométrique. Si au contraire, les grains ont des tailles éloignées les unes des autres, la distribution est alors qualifiée de polydisperse et le pic de la courbe de distribution

est sous une forme étalée. Il existe des distributions multimodales, où la courbe de distribution est constituée de plusieurs pics, par exemple c'est le cas lorsque des constituants de tailles différentes sont mélangés.

Le type de taille considéré d'une particule dépend de sa forme. Par exemple, si ce sont des cubes, la longueur des côtés peut être utilisée ou si c'est une sphère, ce sera plutôt le diamètre. Mais la plupart des grains rencontrés n'ont pas une forme parfaitement définie et ils doivent être assimilés à une forme géométrique. En général, les particules sont assimilées à des sphères, il faut donc déterminer un diamètre équivalent, pouvant être mesuré et calculé à partir des particules.

Les diamètres en volume d_v sont les plus utilisés et permettent d'estimer un diamètre à partir du volume V des particules (eq. 1).

$$d_v = \left(\frac{6.V}{\pi}\right)^{1/3} \qquad \text{eq. 1}$$

Des diamètres permettent de représenter la proportion de particules d'un échantillon dont la taille, ou une autre grandeur, est inférieure à ceux-ci. Typiquement, pour une distribution en nombre, le diamètre équivalent d_x avec x compris entre 0 et 100, représente le diamètre équivalent tel que x pourcent des particules possèdent un diamètre inférieur. Par exemple, un diamètre d_{10} signifie que 10% des particules de l'échantillon ont un diamètre inférieur à d_{10} . Ces diamètres permettent de quantifier la dispersion granulométrique d'un échantillon de poudre, en exprimant une comparaison entre plusieurs diamètres, comme le SPAN par exemple qui compare l'écart entre le d_{90} et le d_{10} par rapport au d_{50} (eq. 2).

$$SPAN = \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} \qquad eq. 2$$

Différentes techniques de caractérisation permettent de mesurer les tailles et les distributions granulométriques. Les plus répandues sont le tamisage et la granulométrie LASER. La première technique consiste à faire passer un lit de particules étudié à travers des mailles de tailles déterminées alors que la seconde disperse les particules sous air ou dans un liquide afin de mesurer la diffraction d'un LASER par les particules. La granulométrie LASER est une méthode de mesure indirecte, la distribution de tailles des particules est déduite de la figure de diffraction obtenue.

Dans le cas des poudres, la masse volumique est aussi une propriété simple à mesurer mais dépendant plus ou moins de la façon dont la poudre est manipulée. Souvent on parle de deux masses volumiques pour identifier une poudre: la masse volumique vraie des particules ρ_p et la masse volumique apparente ρ_a .

La première correspond à la masse volumique des grains seuls. Cette grandeur peut être différente pour un matériau donné selon la technique d'analyse utilisée et l'intensité de la porosité intra-granulaire. Le terme masse volumique brute est préféré pour parler de la masse volumique du matériau, avec aucun pore.

La seconde masse volumique correspond à la masse volumique d'un tas poudre et celle-ci peut se décliner de plusieurs façons, selon le conditionnement de la poudre. On parle de masse volumique aérée si les particules sont individualisées par le passage au travers d'un tamis ou en insérant de l'air avec un lit fluidisé. Par contre on parlera plutôt de masse volumique vrac ou versée si la poudre est simplement déversée dans un contenant, avec un entonnoir par exemple. La masse volumique tassée est la masse volumique obtenue après avoir fait subir des secousses à l'échantillon de poudre. Selon la fréquence le nombre et l'amplitude des secousses, cette masse volumique aura plusieurs valeurs. En général la valeur retenue est la valeur maximale atteignable par le dispositif employé. Concernant les poudres cohésives, la masse volumique vrac et tassée diminue lorsque la taille des particules décroit, ceci est dû aux forces d'interactions inter-particulaires qui s'opposent au réarrangement des grains les uns par rapports aux autres (Yen and Chaki, 1992). Une cinétique de tassement peut être effectuée pour évaluer la sensibilité de la poudre au tassement, cela se fait en relevant la masse volumique tassée en fonction du nombre de chocs imposés.

Les indices de Hausner (IH) (Hausner, 1967) et de Carr (IC) (Carr, 1965) calculés à partir des mesures de masses volumiques vrac ρ_b et tassée ρ_t , permettent respectivement de qualifier l'aptitude à l'écoulement ou à la compression de la poudre (eq. 3 et eq. 4).

$$IH = \frac{\rho_t}{\rho_b} \qquad \qquad \text{eq. 3}$$

$$IC = \frac{\rho_t - \rho_b}{\rho_t} \qquad \qquad eq. \ 4$$

Ces indices peuvent être mesurés avec un voluménomètre, communément surnommé « taptap », et avec une éprouvette dans laquelle la poudre est versée d'une façon bien définie. Selon la masse de poudre et le volume mesuré, une masse volumique versée peut être calculée. Puis après un nombre de tassements déterminé, la masse volumique tassée peut être calculée.

A partir de toutes ces masses volumiques, des porosités inter ou intra-granulaires peuvent être calculées. L'équation 5 permet de déterminer la porosité inter-granulaire selon les valeurs des deux masses volumiques apparente et vraie, ρ_a et ρ_p .

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_a}{\rho_p}$$
 eq. 5

La forme des particules dépend du matériau constituant les grains et des opérations unitaires effectuées pour fabriquer la poudre, notamment les étapes de cristallisation, de broyage et de granulation. Pour la quantifier, la sphéricité est souvent utilisée. Il s'agit du rapport entre l'aire d'une sphère et l'aire développée à la surface d'une particule, les deux ayant le même volume. La forme peut être observée au microscope optique ou électronique, ou avec des granulomorphomètres équipés d'une caméra haute résolution et d'un système de dispersion des particules.

La friabilité des particules est une propriété importante à connaître lors des opérations de broyage, mais aussi pour les opérations de mélange ou de transport si la forme et la taille doivent être préservées.

La composition chimique influe sur beaucoup de propriétés des particules comme les charges électrostatiques, l'aptitude à absorber l'humidité, la friabilité, la réactivité avec d'autres composants chimiques... Cette composition peut être simple et constituée d'une seule molécule principale, sans compter les impuretés, comme du lactose en poudre. Mais elle peut être plus complexe, comme la semoule, contenant plusieurs molécules comme des protéines, de l'amidon et des fibres. Par ailleurs cette composition est toujours liée aux propriétés d'usage de la poudre. Les autres propriétés comme la taille ou la forme sont les propriétés qui intéressent les industriels dans un second plan. Par exemple lors de l'élaboration d'un médicament, la composition chimique sera choisie selon la maladie à traiter. Ensuite la taille et la forme des particules sont élaborées par les galénistes pour optimiser l'action des molécules actives, comme la biodisponibilité, mais aussi la coulabilité et la compressibilité des poudres.

En mécanique du solide, les frottements sont des interactions entre deux surfaces rugueuses dont les aspérités s'imbriquent. Les frottements se déclinent en deux sortes, les frottements statiques ou quasi-statiques, et les frottements dynamiques. Par exemple, un frottement statique correspond à la force qui maintient immobile un palet solide sur un plan incliné alors que le frottement dynamique correspond à la force qui ralentit ce même palet lorsqu'il est en mouvement sur le plan incliné. La valeur des forces de frottements va dépendre d'une part de la composition chimique du palet et du plan, et d'autre part de la rugosité des surfaces. En général, la force de friction statique est plus importante que celle de friction dynamique, car lorsque les surfaces de contact sont en mouvement les unes par rapport aux autres, les aspérités ne sont plus autant ancrées entre elles. Par analogie à la mécanique du solide, un frottement granulaire peut être défini pour caractériser le frottement entre les surfaces des grains en contact. Il peut être évalué en mesurant la pente d'un tas de poudre pour les poudres non cohésives.

La cohésion, présente dans les poudres dites cohésives, est une propriété due à des forces d'attraction entre les particules. Il s'agit d'une grandeur physique homogène à une contrainte, exprimée en $N.m^{-2}$ dans le système international d'unités. Elle ne doit pas être confondue avec l'adhésion qui est l'interaction entre la surface des particules et une surface externe au lit de poudre, comme la paroi d'un appareil. Une poudre dépourvue de cohésion est généralement qualifiée de poudre à écoulement libre. Plusieurs forces sont à l'origine de la cohésion. Les forces de Van der Waals sont des forces attractives entre les particules et qui dépendent de leur taille et de la distance qui les sépare. Pour deux particules sphériques de diamètre *d* et espacées d'une distance *a*, on observe une force F_{VdW} décrite par l'équation 6.

Avec *A* la constante de Hamaker, valant entre 10^{-19} et 10^{-20} J pour la plupart des matériaux. Pour déterminer si une poudre a un comportement cohésif dû à ces forces, il faut qu'elles soient grandes par rapport au poids des particules de masse *m*, pouvant être calculé à partir de l'accélération de pesanteur *g* (eq. 7), ce qui est souvent le cas pour des particules de diamètre inférieures à 100 µm (Bridgewater, 1976).

$$F_{VdW} \gg m.g$$
 eq. 7

La cohésion d'une poudre est influencée par la présence de liquide interstitiel (Fraysse, 2000). La proportion en liquide ne doit pas être trop élevée pour qu'il y ait formation de ponts liquides entre les particules. La composante axiale de la tension superficielle de l'interface solide-liquide-gaz et la force résultante de la pression hydrostatique du ménisque sont les deux forces principales à l'origine de la force capillaire F_{cap} . Elle peut être calculée selon l'équation 8, en connaissant la distance entre la surface du ménisque et l'axe reliant le centre des particules *r*, la tension superficielle du liquide γ et le terme dû à la pression capillaire négative dans le ménisque ΔP (Seville et al., 1997). Pour un liquide entièrement mouillant, *r* est le diamètre des particules et ΔP est nulle.

$$F_{cap} = 2.\pi . r . \gamma + \pi . r^2 . \Delta P \qquad eq. 8$$

Les ponts solides et les forces électrostatiques sont parfois aussi considérés comme des sources de cohésion. Les ponts solides peuvent apparaître avec une opération de frittage par exemple, lorsque la surface des particules diffuse ou fond partiellement sous l'effet de la chaleur. Les forces électrostatiques apparaissent lorsque des électrons sont retirés ou ajoutés à la surface des particules, ce qui peut arriver par frottement avec un transfert de charges entre elles ou avec une paroi. Cela peut conduire à la formation d'arcs électriques, redoutés en industrie à cause d'un risque d'inflammation ou d'explosion en présence de carburant et de comburant dans le milieu environnant. Cela est aussi observable dans la nature depuis des décennies, avec le cas des orages volcaniques par exemple (Anderson et al., 1965), qui sont causés par des charges de particules fines, lors de leur éjection dans l'atmosphère pendant une éruption volcanique (Cimarelli et al., 2013).

1.2. Phénomènes remarquables

L'angle de talus est l'angle formé entre un tas de poudre et son support et dépend des propriétés de frottements entre les grains. Cet angle peut avoir différentes valeurs pour une poudre donnée : une valeur maximale lors de la formation du tas par déversement, c'est l'angle de mouvement, au-delà de cet angle le tas est instable et un éboulement se produit jusqu'à ce que l'angle atteigne une valeur minimale, l'angle de repos. Entre ces deux angles, la surface du tas est dans un état métastable où un éboulement est possible selon le passé des grains. Ces deux valeurs extrêmes d'angles donnent lieu à des successions d'accumulation et d'avalanches de grains à la surface du talus. En général, l'angle de repos est utilisé pour caractériser une poudre, et il est très proche de l'angle de mouvement. La Figure 2 représente différentes façons de mesurer les angles de talus.



angle de repos rebord angle de repos cratère angle de glissement

Figure 2 : Mesures de différents angles de talus ("FEM 2582," 1991).

La notion de frottement granulaire ne suffit pas à comprendre la stabilité d'un tas de poudre. Il faut prendre en compte l'empilement des grains, leur morphologie, leur taille et leur mode de versement.

Concernant les poudres cohésives, l'angle de talus n'est pas uniforme. Ainsi un tas déversé peut être caractérisé par plusieurs angles. Deux angles peuvent être identifiés, un angle formé par les particules cohésives au-dessus du tas, et un autre plus faible à la base du talus formé par l'éboulement de la partie supérieure. Ainsi pour déterminer un angle unique de talus, il faut effectuer un mélange de cette poudre avec une autre à écoulement libre. En augmentant la proportion en poudre cohésive dans le mélange, l'angle de talus augmente. Lorsque le mélange est trop cohésif pour pouvoir déterminer un unique angle, l'expérience est finie et il suffit d'extrapoler la valeur de l'angle en fonction de la proportion en poudre cohésive (Aulton, 2007).

Cet angle dépend de la poudre, mais aussi du milieu environnant. Par exemple lorsque la teneur en eau d'un tas de sable augmente, des angles de talus droits peuvent être formés grâce à la présence de forces capillaires entre les grains, d'où la possibilité de construire des châteaux de sable. Mais si le sable est entièrement immergé dans l'eau, l'angle de repos se rapproche de celui formé en milieu sec, alors que l'angle de mouvement diminue (Allen, 1970 ; Carrigy, 1970).

Le mottage, ou l'agglomération de plusieurs particules pour former des amas, est une caractéristique des poudres souvent non souhaitée en industrie. Cela se produit lorsqu'une poudre fine et cohésive est stockée sous une humidité ambiante trop élevée.

La ségrégation des particules est un processus de démélange des poudres, principalement dû à une différence de propriétés des particules : taille, masse volumique vraie et forme. Cela peut se produire lors de l'homogénéisation de plusieurs poudres ou au sein d'une même poudre polydisperse en taille ou en forme. La ségrégation des particules, plus marquée pour les poudres à écoulement libre, peut être utile pour les opérations de classification des poudres, mais est très gênante pour les opérations de mélange. Trois mécanismes de ségrégation sont identifiés : par trajectoire, par percolation et par élutriation (Williams, 1976). Afin de conserver un mélange de poudres sensible à la ségrégation, il peut être traité avec des additifs pour augmenter sa cohésion et limiter la mobilité individuelle des particules, les opérations unitaires de transformation du mélange ainsi que les opérations de transport devant être minimisées. Le moyen le plus sûr est l'utilisation de poudres constituantes du mélange ayant des propriétés de taille et de forme les plus proches possibles, en les broyant ou en les agglomérant.

La formation de voûtes à l'intérieur d'un milieu granulaire est à l'origine de "l'effet Janssen". Janssen était un ingénieur qui, à la fin du 19^e siècle, a mis en évidence expérimentalement que la contrainte verticale dans un lit de grains stocké dans un silo, contrairement aux liquides, n'est pas proportionnelle à la hauteur de remplissage (Janssen, 1895). En effet, à partir d'une certaine hauteur de poudre, la pression mesurée au fond du silo devient constante, car au-dessus de cette hauteur, le poids de la poudre versée est supporté par les parois. Ce phénomène met en évidence l'importance à attacher au dimensionnement et à la conception d'un silo de stockage, car cette contrainte supportée par les parois est une des causes des distorsions, voir même des explosions des silos.

La formation de voûtes est étroitement liée aux chaînes de forces présentes dans le milieu granulaire. Dans un empilement de grains, un réseau de forces se propage aux contacts des particules, créant une hétérogénéité de la répartition des forces. Ces chaînes dépendent de plusieurs paramètres, comme la température et la compacité (Bonamy, 2002).

Les contraintes à la base d'un tas de poudre dépendent de la façon dont il a été formé. Lorsque le versement est effectué avec un entonnoir fixe, la contrainte au niveau de la base du talus est reportée vers les bords et elle est minimale au milieu. Ce phénomène appelé « trou du tas » se dissipe lorsque le tas de poudre a été formé par pluiviation (Vanel et al., 1999). Il a été mis en évidence par un dispositif à pale permettant de cartographier l'état de contrainte en 2 dimensions dans un tas de poudre confiné (Mandato, 2012). Un « effet de mémoire » permet d'expliquer cela : l'état de contrainte du tas initialement formé au centre de la base du tas est figé par son recouvrement.

1.3. Etude des empilements granulaires

A l'intérieur d'un lit de poudre, les grains se structurent et forment un empilement avec un milieu interstitiel, qu'il soit gazeux, liquide, ou même vide. Dans le cas des milieux granulaires secs, le gaz interstitiel est souvent négligé car sa masse volumique est très faible par rapport à celle des grains. Pour caractériser un empilement de plusieurs particules, on s'intéresse à la compacité qui correspond à la proportion de volume occupée par les grains dans un échantillon. Ce concept est aussi utilisé en cristallographie pour définir la structure des cristaux à l'échelle atomique. Selon la façon employée pour former le paquet de poudre, l'empilement peut changer, avec une porosité intergranulaire plus ou moins importante (Allen, 1970). La distribution de taille des particules et leur forme ont aussi un impact sur la compacité (Van Burkalow, 1945).

Les premières études d'empilements granulaires ont concerné des cas modèles de particules, non cohésives et sphériques. La porosité des mélanges binaires a été étudiée dès les années 1930 par Westmann et Hugill, de façon expérimentale avec un appareil permettant de compresser des particules (Westman et Hugill, 1930). Trois milieux granulaires de différentes tailles de particules ont été préparés : du sable fin (90 μ m), du sable moyen (700 μ m) et du gros sable (4470 μ m). A partir de ces poudres, des mélanges binaires ont été élaborés et la porosité des particules compressées a été exprimée en fonction de la proportion en particules fines (Figure 3).



Figure 3 : Appareil de compaction des particules (gauche). Evolutions du volume apparent occupé par unité de volume vrai de particules, selon les proportions en grosses-fines (milieu) et grosses-moyennes (droite) particules (Westman et Hugill, 1930).

L'étude a pu être étendue à des mélanges ternaires de poudre (Figure 4), et une expression analytique a été proposée pour les mélanges de plus de trois constituants.



Figure 4 : Diagrammes d'empilement de mélanges ternaires de particules (Westman et Hugill, 1930).

Une étude s'est intéressée à l'évolution de la porosité dans les mélanges binaires selon la composition (Ben Aïm et Le Goff, 1968). Les résultats expérimentaux concordent avec les constatations des autres travaux dans ce domaine, avec l'observation d'un minimum de porosité lorsque les petites particules ont rempli les pores formés par l'empilement des grosses particules (Figure 5).



Figure 5 : Porosité de mélanges binaires de sphères (Ben Aïm et Le Goff, 1968).

Le modèle choisi fait une analogie avec la thermodynamique des solutions non idéales, dont le volume apparent n'évolue pas linéairement selon la composition à cause de la contraction du volume, en utilisant un volume granulaire à la place d'un volume molaire.

Ainsi à partir des empilements des grosses ou des petites particules seules, il est possible de déduire l'évolution de la porosité dans le milieu pour n'importe quel mélange des deux constituants.

Deux cas sont analysés : l'ajout progressif de petites particules dans un empilement de grosses particules, et l'ajout de grosses particules dans un empilement de petites.

Dans le premier cas, les petits grains s'insèrent dans les porosités de l'empilement de gros grains et ne modifient pas le volume total de l'empilement, ce qui est traduit par l'équation 9, avec V le volume apparent, V_2 le volume apparent des gros grains et x_1 la proportion en petits grains (eq. 9).

$$\bar{V} = (1 - x_1)\bar{V_2} \qquad \qquad \text{eq. 9}$$

Dans le second cas, les gros grains sont inclus dans un empilement de petits grains et le volume total de l'empilement est alors augmenté par le seul volume des gros grains selon l'équation 10, avec V_I le volume apparent des petits grains et $\varepsilon_0=0,36$ la porosité d'un empilement désordonné compact de sphères de même taille.

$$\bar{V} = \bar{V_1}x_1 + \bar{V_2}(1 - \varepsilon_0)(1 - x_1)$$
 eq. 10

J.A.Dodds s'est intéressé dans les années 1970 à des empilements aléatoires de particules de différentes tailles, et a proposé des expériences et des modèles pour déterminer la porosité et les points de contacts dans l'empilement. En commençant par le cas simple de l'empilement en deux dimensions de disques en aciers de différentes tailles (Dodds, 1975; Dodds et Kuno, 1977) et en poursuivant l'étude à des empilements en trois dimensions de sphères (Dodds, 1980). Les empilements en deux dimensions considérés sont constitués de particules en contact entre elles, et il est possible de former un maillage de triangles reliant les centres des particules voisines entre eux (Figure 6). Les modèles font l'hypothèse qu'il n'y a pas d'espace issu de la formation d'arches comme le montrent les pointillés de cette figure.



Figure 6 : Empilement en deux dimensions de particules de différentes tailles (Dodds, 1980).

Dans le cas de sphères, il ne s'agit plus de triangles mais de tétraèdres. Le modèle proposé permet de calculer la porosité de mélanges binaires et ternaires aléatoires de sphères en fonction de la proportion en petites sphères et en fonction du ratio de taille (Figure 7).



Figure 7 : Porosité de mélanges binaires (à gauche) et ternaires (à droite) de sphères (Dodds, 1980).

D'autres travaux se sont intéressés au changement de porosité de mélanges de poudres selon la composition du mélange pour des poudres sphériques (McGeary, 1961), non sphériques (Prior et al., 2013; Tsirel, 1997; Yu et al., 1993, 1996) et pour des poudres fines cohésives (Kojima et Elliott, 2014; Yu et al., 1997).

2. Rhéologie des poudres

2.1. Généralités sur la rhéologie des poudres

D'après le Trésor de la Langue Française informatisé, la rhéologie peut être définie comme l'étude des phénomènes qui conditionnent l'écoulement et la déformation de la matière. Concernant les poudres, on s'intéresse au couple de résistance qu'un lit de particules oppose au déplacement d'un mobile comme des pales ou une cellule de cisaillement, ainsi qu'aux profils de vitesses des particules en mouvement.

La rhéologie est utilisée en granulation ou pour la production de pâtes, dans lesquelles des solides sont mis en contact avec des liquides. Par l'interprétation de la courbe de la puissance consommée au cours du temps, il est possible de comprendre ce qui se passe dans le mélange à l'échelle de plusieurs grains, ce qui est utilisé par certains industriels pour déterminer la quantité en

liquide à fournir pour obtenir un granulé adéquat. Cinq régimes de puissance peuvent être distingués: la nucléation, le régime pendulaire, le régime funiculaire, le régime capillaire et la suspension (Figure 8). Lors de la nucléation le liquide est adsorbé, il n'y a pas encore de ponts liquides et la puissance consommée par le granulateur est identique à celle de la poudre sèche. Pour le régime pendulaire, la puissance augmente avec l'apparition des forces capillaires jusqu'à atteindre le régime funiculaire, où elle devient constante car les consolidations entre les particules et les ruptures de ponts se compensent. En régime capillaire, la puissance oscille au cours du temps car la répartition du liquide n'est pas uniforme dans le milieu, jusqu'à la chute brutale de la puissance quand le fluide interstitiel se sature en liquide (Leuenberger et al., 1979).



Figure 8 : Courbe de puissance lors d'une opération de granulation (Leuenberger et al., 1979).

Par exemple, concernant les pâtes de ciment, il est possible d'obtenir d'autres renseignements qu'un régime de fonctionnement. En exprimant la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement (gradient de vitesse dans le milieu), on obtient une hystérésis, dont la pente est la viscosité. L'aire de cette hystérésis permet d'obtenir des informations sur la structure du mélange et elle dépend de la façon dont le prémélange a été effectué (Williams et al., 1999).

L'usage de la rhéologie pour les poudres sèches est en revanche moins systématique. On peut déjà distinguer deux types de poudres qui risquent d'avoir un comportement différent lorsqu'elles sont soumises à une contrainte : les poudres cohésives et non-cohésives. Tout comme en granulation, l'étude de la rhéologie d'une poudre sèche permet de quantifier les interactions présentes dans l'appareil. Deux types d'interactions entre les grains peuvent être identifiés : la cohésion, qui est normale à la particule et la friction, tangentielle à l'interface (Rao et Nott, 2008). L'étude du stockage

des poudres dans les silos est à l'origine de la plupart des travaux de mesure des contraintes dans les milieux granulaires.

L'outil de mesure rhéologique le plus répandu est la cellule de cisaillement, permettant de mesurer l'évolution de la contrainte tangentielle au cours du temps, en imposant une contrainte normale et un taux de cisaillement. La cellule de Jenike et la cellule annulaire de Schultze sont deux exemples de cellules de cisaillement répandues dans le domaine de la rhéologie des milieux granulaires. Le rhéomètre Freeman FT4, utilisé dans le cadre de cette thèse, permet aussi d'effectuer des mesures de cisaillement, de façon quasi-automatique (Figure 9).





A : base fixe, B : anneau, C : couvercle, N : contrainte normale, S : contrainte de cisaillement





Figure 9 : Cellules de cisaillement de Schulze (en haut à gauche) (Collet, 2010), de Jenike (en haut à droite) (ASTM Committee, 1998) et rhéomètre FT4 Freeman (en bas à gauche) et son module de cisaillement (en bas à droite).

Les expériences de cisaillement se décomposent en deux principales étapes successives : une préparation du lit de poudre sous une contrainte normale élevée, et un cisaillement avec une contrainte normale inférieure. Cette préparation consiste en une étape préliminaire de cisaillement de la poudre avec une contrainte normale définie σ_C (Figure 10), communément appelée pré-

consolidation. Pendant les mesures de cisaillement, lorsque la pré-consolidation est assez forte, la contrainte tangentielle augmente jusqu'à atteindre une valeur maximale puis décroît rapidement vers une valeur limite. Ce pic est caractéristique des poudres cohésives, qui nécessitent un effort relativement important pour vaincre les forces attractives entre les particules et mettre en mouvement le lit de poudre. Cette valeur maximale τ_S augmente avec la contrainte normale imposée car la poudre est maintenue plus compacte lors du cisaillement. En l'exprimant en fonction de la contrainte normale, une régression linéaire permet de calculer la valeur de la contrainte de cisaillement pour une contrainte normale nulle. Cette valeur représente donc la cohésion *c* et est proche de zéro pour les poudres à écoulement libres (Johanson et al., 2003). La pente de cette même droite de régression permet de déterminer un coefficient de friction granulaire μ_S . Il est possible de mesurer les contraintes de cisaillement en dynamique, lorsque la contrainte de cisaillement atteint son régime permanent, permettant de déterminer le coefficient de friction dynamique μ_D .



Figure 10 : Essais de cisaillements et lieux cinématiques (Collet, 2010).

Ainsi la contrainte de cisaillement τ peut être exprimée en fonction de la contrainte normale σ selon la relation de Coulomb (eq. 11). Dépendant de la technique de cisaillement employée, μ peut être μ_S ou μ_D et *c* représente seulement la cohésion statique c_S , la cohésion dynamique c_D étant souvent proche de zéro car dans ce cas la cohésion a peu d'influence.

$$\tau = \mu.\sigma + c$$
 eq. 11

La résistance à la traction et l'angle de friction interne représentent respectivement le rapport du coefficient de friction avec la cohésion et la réciproque de la fonction tangente appliquée au coefficient de friction. Cet angle de friction interne permet de déterminer la stabilité d'un talus de poudre. La relation de Coulomb (eq. 11) n'est pas parfaitement applicable à tous les milieux granulaires: la loi n'est pas toujours linéaire et dépend du type de cellule de cisaillement. Malgré l'utilisation de contraintes prenant en compte la surface de cisaillement, comme la taille de la machine, cette dernière peut avoir tout de même une influence sur le coefficient de friction et sur la cohésion.

La représentation des valeurs se fait généralement par analogie avec la mécanique du solide, en utilisant des cercles de Mohr. Un cercle de Mohr représente l'état de contrainte dans un milieu solide selon plusieurs plans de coupe. Sur la Figure 11, l'angle α représente l'angle entre la surface du lit de poudre et le plan de coupe considéré.



Figure 11 : Bilan des forces sur un bloc de poudre (à gauche) et cercle de Mohr (à droite) (Schulze, 2008).

Puis selon cet angle, l'état des contraintes est représenté en fonction de la contrainte tangentielle τ et de la contrainte normale σ par rapport au plan selon les équations 12 et 13.

$$\sigma_{\alpha} = \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{2} + \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{2} \cos(2\alpha) \qquad \qquad \text{eq. 12}$$

$$\tau_{\alpha} = \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{2} \sin(2\alpha) \qquad \qquad \text{eq. 13}$$

Le centre du cercle étant placé sur l'axe des contraintes normales σ , il coupe cet axe en deux points σ_1 et σ_2 , correspondant respectivement à la contrainte principale forte et à la contrainte principale faible. Ainsi dans le cas simple d'une compression uniaxiale en milieu confiné, la contrainte σ_1 correspond à la contrainte normale imposée au dessus du tas de poudre et la contrainte σ_2 représente la contrainte latérale subie par la poudre, due à la présence de parois. Il est possible de lier la courbe de la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale décrite précédemment (Figure 10) aux cercles de Mohr pour définir l'état du lit de poudre à partir des mesures de cisaillement (eq. 12). La courbe est décrite par les couples (σ , τ) mesurés, où σ est la force normale imposée par la cellule de cisaillement au lit de poudre, et τ est la contrainte tangentielle de rupture, lorsque la poudre commence à se mettre en mouvement. Un cercle de Mohr tangent à un point appartenant à la courbe des lieux de ruptures décrit l'état de contrainte dans le lit de poudre lors du cisaillement. Ainsi le cercle de Mohr tangent au dernier point de cisaillement, sous la contrainte de pré-consolidation, permet de déterminer σ_1 et σ_2 décrits précédemment. Quand au cercle tangent à la courbe, passant par l'origine et dont le centre est sur l'axe des contraintes normales, il permet de déterminer σ_c , la contrainte de rupture du lit de poudre lorsqu'il n'est pas confiné. Si ceci est impossible à mesurer avec une cellule de cisaillement, les cercles de Mohr permettent ici de calculer cette contrainte σ_c .



Figure 12 : Analogie entre les lieux de rupture et un test de compression uniaxiale (Schulze, 2008).

A partir de la contrainte principale forte σ_I et de la contrainte de rupture non confinée σ_c , il est possible de calculer un indice lié à la coulabilité de la poudre : le *ffc* ou "flow function coefficient" (eq. 14). Ce *ffc* est généralement déterminée en calculant l'inverse de la pente du graphe exprimant σ_c en fonction de σ_I , ce qui permet d'avoir une mesure représentative du système pour différentes préconsolidations.

$$ffc = \frac{\sigma_1}{\sigma_c}$$
 eq. 14

Le *ffc* exprimé dans le plan (σ_1 , σ_c) permet de classifier les poudres selon leur habileté à s'écouler (Figure 13). Plus le *ffc* est élevé, meilleure sera la coulabilité car la contrainte de rupture en

milieu non confiné est très faible devant la contrainte principale normale en milieu confiné : il faut moins de pression pour casser un tas de poudre compacté sous une contrainte normale σ_I .

Comme le montre la courbe A, la contrainte σ_c n'est pas forcément une fonction affine de la contrainte σ_I , il est donc possible que le *ffc* dépende de la consolidation de la poudre. Ainsi la coulabilité d'une même poudre peut ne pas être caractérisée simplement par une valeur unique de *ffc*. Lorsqu'un seul critère standard doit être choisi, il est préférable d'effectuer une régression linéaire forcée, passant par l'origine, dont le coefficient de corrélation indique la fiabilité de cette régression.



Figure 13 : Classification de l'écoulement des poudres selon la Flow Function (Schulze, 2008).

Des mesures de rhéologie plus moderne, à des niveaux de consolidations moins élevées et des vitesses de mobile plus importantes peuvent être effectuées avec des appareils comme le rhéomètre FT4 Freeman décrit précédemment (Freeman, 2007). Pour ce faire, un mobile avec des pales, et non la cellule de cisaillement, doit être utilisée. Le résultat expérimental est une énergie à fournir pour mettre en écoulement le système particulaire étudié avec les pales, ce qui permet d'effectuer des caractérisations plus proche des phénomènes présents dans des procédés tels que les mélangeurs. Cette énergie est calculée à partir du couple mesuré par le couplemètre relié aux pales, et de la force normale mesurée par pesée. L'ajout d'un module d'aération permet d'effectuer des mesures rhéométriques avec un niveau de consolidation bien plus faible qu'en cellule de cisaillement.

Outre la mesure des contraintes exercées sur un mobile d'agitation, l'écoulement lui même peut être étudié. C'est l'exemple de la mesure standard de l'écoulement à travers une ouverture, notamment pour avoir une idée sur la capacité d'une poudre à être vidangée d'un silo. La mesure de l'écoulement à travers un orifice circulaire, comme dans l'appareil Flodex® par exemple, est une technique qui permet d'évaluer l'aptitude d'une poudre à s'écouler à travers différentes tailles de sections, de déterminer si l'écoulement est continu ou saccadé et de calculer son débit. Ce débit

massique W [g.min⁻¹] a été évalué (eq. 15), en connaissant la masse volumique vrac de la poudre ρ_b , le diamètre d'ouverture D_0 , et le diamètre des grains d_p (Beverloo et al., 1961).

$$W = 35. \rho_b. \sqrt{g}. (D_0 - 1.4. d_p)^{5/2}$$
 eq. 15

2.2. Ecoulement des poudres autour de pales

De nombreux travaux se sont intéressés à l'écoulement de milieux granulaires généré par des pales. Dès 1967, des chercheurs se sont intéressés à l'écoulement d'un milieu granulaire à écoulement libre autour d'une pale simple rectangulaire (Bagster et Brigwater, 1967). La pale est immobile à l'intérieur d'un compartiment à base rectangulaire transparent mobile. Cette boîte contient le lit de grains et peut être déplacée le long du plan normal au plan formé par la pale, selon une vitesse donnée. Une zone de recirculation a été observée en face de la pale, au niveau de la surface du lit de poudre (Figure 14).



Figure 14 : Profils d'écoulements de grains autour d'une pale à moitié immergée (à gauche) et totalement immergée (à droite) (Bagster et Brigdgwater, 1967).

La force horizontale exercée sur la pale a été mesurée et exprimée selon la vitesse de déplacement de la poudre. Cet écoulement a été étudié visuellement et par photographie en faisant varier plusieurs paramètres dont l'inclinaison de la pale, dans une deuxième publication des mêmes auteurs (Bagster et Bridgwater, 1969).

A la même époque, un autre travail a utilisé une corrélation adimensionnelle pour étudier le comportement rhéologique des poudres dans un mélangeur bipale à cuve cylindrique verticale (Makishima et Shirai, 1968). Les milieux étudiés sont secs et à écoulement libre, dont les tailles de particules sont supérieures à 100 μ m. La force sur les pales mesurée par un couplemètre a été mise sous la forme d'un nombre de puissance N_p exprimé en fonction du « nombre M » N_M , correspondant à la contribution des forces de friction interne normée par les forces d'inertie (eq. 16).

$$N_p = K_1 N_M^{-1} + K_2 \qquad \text{eq. 16}$$

La Figure 15 illustre le dispositif utilisé ainsi que la courbe caractéristique de la corrélation adimensionnelle choisie. Les auteurs ont proposé une comparaison avec les corrélations pour les fluides, basés sur un nombre de Reynolds à la place d'un nombre M. Les tendances sont comparables, avec une décroissance vers une valeur asymptotique du nombre de puissance en fonction du nombre M et du nombre de Reynolds.



Figure 15 : Dispositif expérimental d'agitation (à gauche) et corrélation adimensionnelle (à droite) (Makishima et Shirai, 1968).

La corrélation établie dans cette étude est valable uniquement pour les poudres à écoulement libre, car l'angle de friction interne a été mesuré avec un angle de repos et un test d'écoulement à travers une fente. Or la notion même d'angle de repos est difficile à définir pour les poudres cohésives, et l'écoulement à travers un orifice s'effectue en cheminée.

A la fin des années 1980, Malhotra et al. se sont intéressés à l'agitation de milieux granulaires dans un mélangeur cylindrique horizontal à pales (Malhotra et al., 1990a, 1990b). L'étude se déroule dans le cadre d'une opération unitaire de séchage, où l'agitation est vue comme un facteur permettant de favoriser les transferts de chaleur. Plusieurs mécanismes sont observés dans le lit de grains : une zone de mélange en surface, de la diffusion de grains au centre et du transport par convection près des parois (Figure 16).

Le couple nécessaire à l'agitation du lit de grains a été mesuré avec différentes particules et pour différentes dispositions de pales. Globalement, le transfert de chaleur est moins bon pour les poudres non sphériques et cohésives, car le mouvement individuel des particules est limité.



Figure 16 : Mécanismes de mélanges dans un lit de poudre agité par des pales tournantes(Malhotra et al., 1990b).

Plusieurs autres travaux se sont depuis intéressés à l'écoulement de poudres autour d'une pale, en utilisant des techniques expérimentales ou de modélisation. C'est le cas de Radl et al. qui ont étudié l'écoulement des grains dans un dispositif similaire à celui de Bagster et Bridgewater (Bagster et Bridgwater, 1967), mais en mesurant les champs de vitesses dans le lit de grains directement avec la méthode « Particle Image Velocimetry » (PIV) et une caméra rapide (Radl et al., 2012). Les auteurs ont confirmé la présence d'une zone de recirculation en face de la pale près de la surface du lit de grains. La vitesse des grains est plus importante en surface au-dessus de la pale et ce en fonction de différentes vitesses de pales, et pour différents angles d'inclinaison (Figure 17).



Figure 17 : Profils d'écoulements et champs de vitesses autour d'une pale droite (à gauche) et autour d'une pale inclinée (à droite) (Radl et al., 2012)

Des simulations DEM (Discrete Element Method) ont permis d'étudier différents paramètres lors du mélange ou de l'agitation de milieux granulaires par des pales comme la vitesse et l'angle de la pale (Chandratilleke et al., 2012) ou encore la forme de la pale (Siraj, 2014).

3. Mélange des poudres

3.1. Les états de mélange

L'état d'un mélange est déterminé par la répartition d'un composant clé par rapport aux autres composants. Dans l'exemple du mélange de deux poudres, l'état peut être considéré complètement ségrégé lorsqu'elles sont disposées séparément dans un procédé avant l'étape de mélange (Figure 18). Le cas opposé au mélange complètement ségrégé est le mélange parfait, ou chaque type de grains est uniformément réparti dans le milieu. Mais une telle qualité de mélange est pratiquement impossible à atteindre surtout pour une production industrielle, où l'on se contente d'un mélange aléatoire, pour lequel la probabilité de trouver une particule est la même en tout point du mélange.



Figure 18 : Différents types de mélanges de particules.

Un autre type de mélange est de plus en plus souhaité pour la fabrication de particules à propriétés contrôlées : le mélange ordonné. Dans ce type de mélange les grains du constituant clé sont organisés et se structurent avec les autres constituants, c'est le mélange obtenu lors des opérations d'enrobage à sec, par exemple. L'enrobage à sec peut constituer le meilleur moyen d'avoir un bon mélange, par contre le rapport de taille entre les particules hôtes et les particules invitées doit être typiquement supérieur à 10 et la proportion en particules invitées dans le mélange doit être faible. De plus, le procédé de fabrication doit être adapté, pour fournir un cisaillement assez fort et permettre l'adhésion des particules fines sur les plus grosses, tout en veillant à éviter les phénomènes d'attrition.

La qualité d'un mélange va se juger en fonction de l'échelle d'étude : il est plus simple d'avoir un bon mélange à l'échelle de milliers de grains qu'à l'échelle de quelques grains. Cette échelle est appelée l'échelle d'observation et est directement liée à la propriété d'usage du produit fabriqué. Si le
produit final est constitué de comprimés, l'échelle d'observation sera celle d'un comprimé, et non celle de tout le mélange de poudre préparé en amont.

3.2. Critères d'acceptation d'un mélange

En connaissant l'échelle d'observation pour laquelle il est nécessaire d'avoir un bon mélange, une méthode statistique peut être employée pour définir de façon quantitative la qualité du mélange. Elle s'appuie sur un prélèvement d'une série d'échantillons dont la teneur x_i de chaque échantillon idoit être analysée (Figure 19).



Figure 19 : Illustration d'un prélèvement de n échantillons.

Le Tableau 1 représente les expressions mathématiques de base nécessaires à l'étude de la qualité d'un mélange.

Nom	Description	Expression
Teneur moyenne vraie	Fraction en composant clé	μ
	dans le mélange.	
Teneur d'un échantillon	Fraction massique en	Xi
	composant clé dans	
	l'échantillon n°i.	
Teneur moyenne	Estimation de la	$x - \sum^{n} \frac{x_i}{x_i}$
échantillonnée	composition avec les n	$\lambda_m - \sum_{i=1} n$
	échantillons.	
Variance vraie	Variance de la teneur des	$\sum_{i=1}^{Z} \sum_{i=1}^{Z} (x_i - x_m)^2$
	échantillons avec un	$\sigma^{-} \equiv \frac{1}{Z}$
	échantillonnage complet du	
	mélange, de Z échantillons.	
Variance observée	Variance estimée avec un	$\sum_{n=2}^{\infty} \sum_{i=1}^{n} (x_i - x_m)^2$
	échantillonnage partiel de n	$S^{-} = \frac{n-1}{n-1}$
	échantillons.	
Coefficient de variation	Variance relative à la	$CV = \frac{s}{s}$
	moyenne	

Tableau 1 : Notions	permettant de	caractériser ur	n mélange.

La variance pour un mélange totalement ségrégé σ_0^2 et la variance pour un mélange parfaitement aléatoire σ_R^2 peuvent être calculées à partir de la concentration en composant clé dans le lit de poudre μ et du nombre de particules n_p dans le mélange, selon les équations 17 et 18 (Poux et al., 1991).

$$\sigma_0^2 = \mu(1-\mu)$$
 eq. 17

$$\sigma_R^2 = \frac{\mu(1-\mu)}{n_p} \qquad \qquad eq. \ 18$$

A partir de la variance mesurée dans un mélange s^2 et de ces variances théoriques extrêmes σ_0^2 et σ_R^2 , il est possible de définir des indices de mélanges plus descriptifs qu'une variance mesurée seule (Tableau 2). Ces indices sont nombreux dans la littérature et une attention doit leur être portée avant de comparer différentes expériences de mélanges entre elles.

Indice de mélange	Référence
σ_0	(Smith, 1955)
S	
σ_R	(Lacey, 1943), (Weidenbaum and Bonilla,
S	1955)
$\frac{\sigma_0^2 - s^2}{2}$	(Lacey, 1954)
$\sigma_0^2 - \sigma_R^2$	
$\frac{\log(\sigma_0^2) - \log(s^2)}{\log(\sigma^2) - \log(\sigma^2)}$	(Ashton and Valentin, 1966)
$\sqrt{\log(\sigma_0) - \log(\sigma_R)}$	

Tableau 2 : Quelques indices de mélanges.

Dans le cadre de l'industrie pharmaceutique par exemple, si le produit est un comprimé, il faut s'assurer que le principe actif est en quantité suffisante à l'échelle de chaque comprimé pour que le patient puisse être soigné, mais cette quantité ne doit pas être trop forte pour ne pas sortir de la fenêtre thérapeutique et devenir dangereux pour la santé.

Dans le lot de comprimés, la moyenne des teneurs des échantillons x_m doit être proche de la composition en constituant clé μ dans le batch (eq. 19). Cela permet de valider la méthode d'échantillonnage effectuée. En général, la marge toléré *l* est égal à 7,5 % de la valeur de μ .

$$x_m \approx \mu \pm l$$
 eq. 19

La teneur de chaque comprimé est validée si elle est comprise entre la valeur haute et basse de la limite L encadrant la teneur moyenne (eq. 20). Typiquement la limite L peut représenter 15% de la valeur de la teneur moyenne.

$$x_i \approx x_m \pm L$$
 eq. 20

Certains comprimés peuvent être pris sur une longue durée, et la concentration prise sur plusieurs jours consécutifs peut avoir un impact sur la santé. Ainsi dans l'exemple de la Figure 20, le cas 1 est préférable au cas 2, car les 3 premiers jours la quantité en principe actif peut être trop importante, alors que les deux plaquettes peuvent avoir la même qualité de mélange au sens de la variance.



Figure 20 : Comprimés bien répartis sur la plaquette (à gauche) et mal répartis (à droite).

L'outil mathématique permettant de quantifier ce phénomène est l'autocorrélogramme suggéré par Dankwerts (Danckwerts, 1952) prenant en compte la distance *r* entre deux échantillons (eq. 21). Cette distance peut représenter l'espace ou le temps.

$$R(r) = \frac{\sum_{i=1}^{n-r} (x_i - x_m) \cdot (x_{i+r} - x_m)}{\sum_{i=1}^{n} (x_i - x_m)^2}$$
 eq. 21

La fonction R renvoie des valeurs comprises entre -1 et 1, avec R(0) valant 1. Plus R(r) est proche de 1, plus les échantillons séparés d'une distance r sont dépendants entre eux. Lorsque R(r)tend vers 0, le procédé est stationnaire et les échantillons sont indépendants. Le correlogramme permet de déterminer r_0 tel que $R(r_0)$ est nul (Figure 21).



Figure 21 : Corrélogramme d'un mélange (Mayer-Laigle et al., 2015).

La limite ε correspond à la valeur en dessous de laquelle la fonction R(r) peut être considéré comme nul avec un niveau *k* de confiance (eq. 22). Ainsi, l'échelle linéaire de ségrégation est définie par l'équation 23.

$$\varepsilon = \frac{1}{n} \pm \frac{k}{\sqrt{n}} \qquad \qquad \text{eq. 22}$$

$$S = \int_0^{r_0} R(r) dr \qquad \qquad \text{eq. 23}$$

Cela s'illustre avec l'exemple des 6 comprimés de faibles et fortes concentrations répartis différemment sur la plaquette, en admettant que les comprimés noirs ont une teneur de 1 en principe actif et les blancs une teneur nulle (Figure 20). Les corrélogrammes montrent bien qu'une prise de deux comprimés consécutifs dans le cas 1 permet d'avoir une dose moyenne en principe actif, alors que dans le cas 2, il faut prendre les 6 comprimés pour avoir une dose moyenne (Figure 22).



Figure 22 : Exemples de corrélogramme sur 6 comprimés : cas 2 (3 fortes concentrations plus 3 faibles) et cas 1 (fortes et faibles concentrations alternées).

3.3. L'échantillonnage

Le bon choix de la méthode d'échantillonnage est essentiel pour l'analyse d'un mélange de poudres. On peut distinguer deux grands types d'échantillonnage : l'échantillonnage statique et l'échantillonnage dynamique. L'échantillonnage statique s'effectue dans un lit de poudre fixe et c'est la sonde de prélèvement qui se déplace à l'intérieur. Plusieurs sondes sont utilisées : à prélèvement latéral ou à prélèvement en tête. Dans les deux cas, l'introduction de la sonde perturbe le milieu et induit une erreur de mesure. L'échantillonnage dynamique permet de prélever directement dans un flux de poudre en écoulement. Il peut s'agir d'un prélèvement en sortie de procédé pendant la vidange de l'appareil, ou par déviation d'un courant de particules au cœur du procédé. Cet échantillonnage est préférable car il induit moins d'erreurs. Le prélèvement d'un échantillon s'effectue en trois étapes : l'intégration, la découpe et la prise.

L'intégration consiste à choisir les lieux à prélever sous la forme de points. Effectuée au hasard, chaque point du lit de poudre a une probabilité égale d'être prélevée. Un prélèvement systématique avec implantation au hasard correspond à un premier prélèvement effectué au hasard et les prochains seront effectués de façon régulière. Concernant une intégration stratifiée au hasard, le mélange est défini en plusieurs sous volumes égaux et un prélèvement au hasard est effectué dans chacun de ces volumes.

La découpe est la réalisation de la forme et du volume de l'échantillon autour des points choisis précédemment, c'est elle qui détermine la taille d'un échantillon et dépendra de l'outil de prélèvement utilisé. La découpe génère une incertitude I_d en fonction du nombre N_{part} de particules prélevées (eq. 24).

$$I_d = \frac{1}{\sqrt{N_{part}}} \qquad eq. 24$$

La prise correspond à l'isolement de ces échantillons du mélange de poudres. Elle peut introduire une modification de l'état de mélange, car la poudre autour de l'échantillon prélevé prendra sa place et modifiera la structure du lit de poudre et la disposition spatiale des composants.

La dimension spatiale du lot à échantillonner est un paramètre important, les dimensions peuvent aller de 0 à 3. Un lot à trois dimensions correspond à un prélèvement direct dans le lit de poudre. Un lot à deux dimensions est possible lorsque le mélange est étalé avec une épaisseur uniforme, en supposant que l'étalement de la poudre a un impact négligeable sur la qualité du mélange. Un lot à une dimension, nécessitant plus de manipulations, est possible à partir de mélanges étalés avec une épaisseur et une largeur uniforme. Le lot de dimension zéro peut être réalisé sur un produit final déjà transformé, comme par exemple des comprimés qui forment à eux seul un échantillon.

Dès que possible, un échantillonnage de poudre doit être dynamique (Muzzio et al., 1997) avec une implantation au hasard et une prise simultanée de tous les échantillons dans un lot à trois dimensions. Un échantillonnage complet du lit de poudre est idéal, et peut être effectué surtout si la méthode d'analyse permet d'évaluer la concentration de tous les échantillons. Sur une échelle industrielle, cela est compliqué et le nombre d'échantillons à analyser sera d'autant plus grand que leurs tailles sont faibles.

Pour une loi statistique donnée, avec une taille d'échantillon déterminée, on peut relier l'erreur commise sur la variance observée par rapport à la variance vraie, avec le nombre d'échantillons. Plus le nombre d'échantillons sera grand, plus l'erreur sera faible. En général, il est difficile d'avoir un nombre d'échantillon exhaustif qui décrit tout le mélange, pour des questions de temps, d'argent ou de main d'œuvre nécessaires pour analyser tous ces échantillons. C'est pourquoi en se fixant une marge d'erreur raisonnable, il est possible de diminuer considérablement le nombre d'échantillons. L'important est que cette marge soit mentionnée et prise en compte lors de l'interprétation des expériences. Une loi de type χ^2 peut être utilisée pour déterminer l'intervalle de confiance l'écart type $IC_{1-\alpha}(\sigma)$ (eq. 25) (Lamboley, 1970). Il suffit de connaitre le nombre d'échantillons et d'utiliser une table de cette fonction de distribution (Massol-Chaudeur et al., 2000).

$$IC_{1-\alpha}(\sigma) = \left[s \sqrt{\frac{n-1}{\chi_{\frac{\alpha}{2}}^{2}(n-1)}}; s \sqrt{\frac{n-1}{\chi_{1-\frac{\alpha}{2}}^{2}(n-1)}} \right]$$
eq. 25

Ainsi lors d'une étude de mélange, ce calcul permet d'associer une erreur sur chaque écart type mesuré au cours du mélange. Lors de ses expériences de mélange, S. Massol-Chaudeur a mise en évidence l'impact d'un tel calcul sur une cinétique de mélange, et l'influence du nombre d'échantillons (Figure 23).



Figure 23 : Cinétiques de mélange de lactose-saccharinate de sodium : avec un intervalle de confiance de 95% avec 80 échantillons (à gauche) et avec différents nombres d'échantillons (à droite) (Massol-Chaudeur et al., 2002).

3.4. L'analyse des échantillons

Dans l'objectif d'étudier l'homogénéité d'un mélange, de nombreuses techniques d'analyse sont disponibles pour déterminer les proportions de matières des échantillons. Toutes les techniques d'analyses chimiques sont possibles, à condition d'avoir soit un traceur caractéristique qui imprègne les particules où un mélange de poudres de compositions chimiques différentes.

Il peut aussi s'agir d'analyses basées sur la séparation physique des constituants clés du reste de l'échantillon, comme le tamisage ou la centrifugation. Dans ces cas, le constituant clé doit avoir un taille ou une masse volumique brute différente. Il peut aussi s'agir d'une séparation par dégradation thermique d'un des constituants dans un four, c'est ce qu'a réalisée C. Mayer-Laigle lors de ses travaux de thèse avec un mélange entre une matrice à base de résine et du graphite (Mayer-Laigle, 2012). La matrice se dégradant complètement à 550°C et le graphite restant intact, il est possible de connaître après chauffage la proportion de graphite dans l'échantillon par simple rapport entre la masse de résidu après chauffe et la masse de poudre avant la mise au four. Une autre possibilité est d'utiliser un constituant clé soluble dans un solvant, dans lequel ne sont pas solubles les autres, mais cela nécessite une étape ultérieure de séchage.

La technique la plus simple et la plus efficace est l'analyse d'images. En effet, elle ne nécessite que l'utilisation d'un appareil photo ou d'une caméra numérique, d'un logiciel de traitement d'image et d'un bon éclairage, ce qui est de plus en plus accessible de nos jours. Par ailleurs, pour les poudres dont les grains sont suffisamment grands par rapport à la résolution des images obtenues, il est possible d'obtenir un échantillonnage exhaustif du mélange. Plusieurs exemples de travaux au sein de notre laboratoire ont utilisé l'analyse d'image, avec un tapis roulant et une caméra linéaire. Avec une calibration adaptée, il est possible d'obtenir une image complète de la surface du lit de poudre réparti sur le tapis (Ammarcha, 2010; Demeyre, 2007; Marikh, 2003; Mayer-Laigle, 2012; Zhao, 2013). L'analyse d'image peut être aussi effectuée directement en surface du lit de poudre dans le mélangeur (Daumann et al., 2009). La Figure 24 illustre un exemple d'utilisation d'un colorimètre pour déterminer différentes répartitions en pigments, comme de l'oxyde de fer (Barling et al., 2015).



Figure 24 : Analyse de pigments par colorimétrie (Barling et al., 2015).

L'utilisation d'un traceur avec une conductivité électrique différente, comme un sel peut être effectuée. Il est aussi possible de déterminer la teneur d'un constituant clé par mesure de capacitance directement en ligne sur le flux de poudre sortant d'une opération de mélange (Ehrhardt et al., 2005). L'analyse thermique est aussi une voie qui a été utilisée, par exemple pour l'évaluation de la qualité d'un mélange de produits pharmaceutiques avec une mesure d'enthalpie par calorimétrie différentielle (DSC) (Bharvada et al., 2015).

Pour tous les types d'analyses cités, il est important d'avoir un contraste suffisant entre le constituant clé et les autres constituants du mélange. De plus, la précision de la technique employée influencera le résultat.

3.5. La cinétique de mélange

Afin de comprendre et d'optimiser une opération de mélange, il est nécessaire d'effectuer une étude de la cinétique de mélange. Cela consiste à déterminer la qualité du mélange à différents temps de mélange passé dans le procédé. En général, la qualité du mélange est meilleure lorsque le temps de mélange augmente. Dans le cas où la qualité de mélange est représentée par un coefficient de variation (CV), cela correspond à une courbe décroissante au cours du temps. Si le procédé permet un mélange correct des composants par rapport à l'échelle d'observation, cette décroissance tendra vers une valeur de CV nulle, c'est-à-dire vers une qualité de mélange parfaite, où la proportion dans chaque échantillon est la même, toujours en supposant que l'échantillonnage et l'analyse sont corrects. Dans le cas où le procédé ne permet pas de mélanger suffisamment les particules à l'échelle d'observation choisie, la qualité de mélange va tendre vers une valeur non nulle, ce qui peut être le

cas si des agglomérats de particules cohésives se forment et que le procédé n'est pas capable de les briser. La Figure 25 montre un exemple de cinétique de mélange sans ségrégation dans un mélangeur conique simple et dans un mélangeur conique amélioré, avec un temps de mélange réduit (Brone and Muzzio, 2000).



Figure 25 : Cinétiques de mélange en mélangeur conique simple (triangles) et en mélangeur conique amélioré (cercles) (Brone et Muzzio, 2000).

Les mécanismes de mélanges, comme la convection et la diffusion (Bridgwater, 1976), ont une influence visible sur la cinétique (Figure 26). La convection est le phénomène qui permet un mélange rapide à grande échelle, alors que la diffusion permet un mélange plus intime entre les particules, à une échelle plus petite.



Figure 26 : Courbe typique de cinétique de mélange de poudre, influencée par les mécanismes (Rose, 1959).

La situation non désirée est la présence de ségrégation qui démélange les constituants au bout d'un certain temps, cela se voit sur la cinétique de mélange par la diminution du CV lorsque le temps de mélange augmente, suivie d'une augmentation puis éventuellement d'oscillations autour d'une valeur non nulle. Dans ce cas, il faut soit éviter la ségrégation en amont de l'opération unitaire de mélange, soit arrêter le mélange avant l'augmentation du CV pour avoir une meilleure qualité de mélange, mais aussi pour gagner du temps de production au lieu d'attendre inutilement que le degré d'homogénéité augmente.

4. Les mélangeurs discontinus

Les mélangeurs peuvent être divisés en quatre grandes classes : les mélangeurs à cuve tournante, les mélangeurs convectifs, les mélangeurs à lits fluidisés et les mélangeurs statiques. Tous ces types de mélangeurs peuvent être répertoriés selon la complexité de leur mouvement.

4.1. Les mélangeurs simples

Les mélangeurs à cuve tournante permettent de brasser la poudre grâce au mouvement de la cuve qui la contient. Les mélangeurs cubiques, les mélangeurs cylindriques, les mélangeurs en V et les mélangeurs à double cônes sont quelques exemples connus de ce type de mélangeur (Figure 27).









Figure 27 : Mélangeurs à cuve tournante, mélangeur en cube, à tambour tournant, en V et à double cône (de gauche à droite et de haut en bas).

Usuellement, le taux de remplissage optimal est de l'ordre de 50 %, ce qui permet d'avoir un remplissage suffisamment rentable en terme de quantité de matière traitée et efficace car ces mélangeurs nécessitent un volume libre permettant l'écoulement des poudres.

Ces mélangeurs mettent en œuvre deux phases distinctes dans le lit de poudre : une phase avec un comportement solide, caractérisé par un mouvement lent comparable à du fluage avec un profil des vitesses exponentiel (Komatsu, 2001), et une phase au niveau de la couche en écoulement, avec un comportement fluide où le profil des vitesses est linéaire (Bonamy, 2002). Les mélangeurs à cuve tournante sont appréciés pour leur simplicité d'utilisation et pour le brassage doux de la poudre par avalanches, idéal pour les produits fragiles, mais pas adapté pour les produits sensibles à la ségrégation.

Une cartographie des régimes d'écoulement permet de connaître l'écoulement de la poudre selon la vitesse de rotation de la cuve et le taux de remplissage (Figure 28). Ce type de cartographie a été effectué notamment pour les mélangeurs cylindriques (Mellmann, 2001) : le glissement, l'avalanche et la cataracte, déjà identifiés depuis longtemps dans diverses études des fours tournants (Henein et al., 1983).

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

Figure 28 : Régimes d'écoulements en mélangeur à tambour tournant (Mellmann, 2001).

Le premier régime de glissement n'est pas propice au mélange car le lit de poudre se déplace comme un seul paquet, le régime de cascade est plus adapté car les particules se déplacent sur la couche superficielle du lit et le troisième régime, à vitesse plus élevée, est aussi adapté car le mouvement des particules est plus chaotique et ne se localise pas uniquement sur la couche superficielle du lit. Mais si la vitesse est trop importante, la poudre est plaquée aux parois et les particules n'ont plus de mouvement relatif entre elles. Le régime d'écoulement associé est le régime de centrifugation, le mélange est alors inefficace et gourmand en énergie. Les mélangeurs convectifs sont constitués d'une cuve fixe et d'un mobile tournant à l'intérieur. L'avantage de ce concept par rapport aux mélangeurs à cuve tournante est d'introduire plus de cisaillement dans le lit de poudre lorsque le mobile pénètre à l'intérieur. Ces mélangeurs sont donc préférés lorsque les poudres sont ségrégeantes et surtout pour les poudres cohésives, dont les agglomérats doivent être cassés afin d'obtenir une bonne dispersion des particules.

Les mélangeurs à socs permettent de brasser la poudre près des parois avec un ou plusieurs socs qui pénètrent dans le lit et poussent la poudre sur les côtés (Figure 29). Le mouvement des particules dans les mélangeurs de ce type a été étudié par la technique d'émission de positons (PEPT) et avec la modélisation DEM, en utilisant des particules sphériques, (Laurent, 2006; Laurent et Cleary, 2012) ou non sphériques (Cleary, 2013; Jones et al., 2007).



Figure 29 : Mélangeur à soc et son mobile d'agitation (Jones et al., 2007).

Quant aux mélangeurs à haut cisaillement, ils agitent la poudre avec une vitesse de mobile relativement élevée. Ce sont des mélangeurs constitués d'une cuve cylindrique à la verticale avec plusieurs pales à l'horizontale disposées au fond de la cuve. A de telles vitesses de rotation, pouvant dépasser 1000 tr.min⁻¹, la poudre est projetée près des parois et une recirculation de la poudre permet de la brasser (Figure 30). Ils ont déjà fait l'objet de plusieurs travaux sur les poudres sèches et humides, comme les travaux de Knight et al. qui se sont intéressés à la rhéologie et aux couples d'agitation du sable (Knight et al., 2001). Les auteurs ont montré dans cet article qu'un couple adimensionnel peut être exprimé en fonction d'un nombre de Froude. Il est donc possible d'effectuer un changement d'échelle avec cette technologie de mélange pour les poudres sèches, grâce à des mesures de rhéologie à l'échelle du procédé.



Figure 30 : Mélangeur à haut cisaillement (Knight et al., 2001).

4.2. Les mélangeurs à mouvements complexe

Le mélangeur Turbula, commercialisé par la société WAB (Figure 31), est un mélangeur à cuve tournante avec cette fois-ci un mouvement plus complexe que ceux précédemment évoqués, car il est provoqué par deux bras de rotations. Le déplacement de la cuve décrit des mouvements de rotation, de translation et d'inversion.



Modèle T2F (2 L)



Modèle T10B (10 L)

Figure 31 : Mélangeurs Turbula[®] à l'échelle laboratoire (à gauche) et à l'échelle pilote (à droite).

La dynamique du mouvement a été décrite dans la thèse de C. Mayer-Laigle (Mayer-Laigle, 2012), notamment en s'intéressant aux vitesses et aux accélérations en un point au sommet de la cuve en fonction de la vitesse moteur imposée, grâce à la représentation du mélangeur sur un logiciel de conception assistée par ordinateur. A partir de ces vitesses et de ces accélérations, il a été possible d'effectuer des similitudes cinématique et dynamique entre plusieurs échelles, et de calculer des nombres de Froude pour estimer le régime d'écoulement dans le mélangeur en fonction de la vitesse imposée. La vitesse en bout de cuve n'est pas constante pendant une opération de mélange, ce qui provoque un mouvement irrégulier de la poudre. Cela est plus efficace que les mélangeurs classiques à cuve tournante, pour lesquels la vitesse de la cuve est constante, et donc le mouvement de la poudre est régulier.

Les mélangeurs planétaires sont une classe de mélangeurs convectifs dont le mouvement du mobile est régit par deux mouvements : une rotation qui permet de brasser la poudre près du mobile, et une giration qui déplace le mobile dans la cuve, pour distribuer la dispersion introduite par le premier mouvement.

Un des plus connus est le mélangeur Nautamix, donc le mobile est une vis. Ce mélangeur est commercialisé par Hozokawa et existe sous plusieurs formats. Le mélangeur Nautamix a été décrit dès les années 1970 par Entrop (Entrop, 1978) avec des relations adimensionnelles entre la puissance P, les vitesses de rotation de la vis N_v et de giration de l'arbre N_a , le diamètre de la vis D, la longueur immergée de la vis L et la masse volumique vrac de la poudre ρ , avec k, α et γ des coefficients dépendant de la poudre (eq. 26).

$$\frac{P}{\rho. g. N_{v}. D^{4}} = k. \left(\frac{N_{v}}{N_{a}}\right)^{\alpha} \cdot \left(\frac{L}{D}\right)^{\gamma}$$
 eq. 26

Il existe une autre corrélation reliant le temps de mélange adimensionnel $N_v.t_m$ avec t_m le temps de mélange, la hauteur du mélangeur L et le diamètre de la cuve D (eq. 27). Cette équation est très utile pour déterminer les temps de mélanges à l'échelle industrielle à partir d'expériences en laboratoires. Néanmoins les coefficients obtenus ici sont valables pour un rapport entre la vitesse de rotation et la vitesse de giration compris entre 20 et 70.

$$N_{\nu}t_{m} = 13\left(\frac{L}{D}\right)^{1,93} \qquad eq. 27$$

Il existe d'autres design de mélangeurs planétaires, mais ils sont généralement utilisés dans le cadre de l'agglomération de poudres humides. Les robots pâtissiers avec une cuve en forme de bol et différents types de batteurs, comme des fouets pour les liquides peu visqueux, des batteurs en K pour les produits plus visqueux et des crochets pour les pâtes à pétrir. Différents constructeurs, comme Kenwood, Moulinex ou Bosh proposent ce type de mélangeur planétaire, commercialisé au grand public pour faciliter les travaux de cuisine et de pâtisserie. Mais ces mélangeurs intéressent aussi les professionnels, aussi bien les artisans que les industriels, et ont fait l'objet de plusieurs publications récentes (Auger et al., 2013; Cazacliu and Legrand, 2008; Chesterton et al., 2013; Delaplace et al., 2012). Concernant les poudres sèches, il existe un article décrivant la trajectoire complexe du mobile d'agitation dans un tel mélangeur et observant le flux et les champs de vitesse avec un traceur radioactif (Figure 32) (Hiseman et al., 2002).



Figure 32 : Mélangeur planétaire avec mobile d'agitation en K (gauche) et trajectoires du mobile (droite) (Hiseman et al., 2002).

Les vitesses de particules sont en moyenne plus faibles au fond de la cuve et les champs de vitesse remontent le long de l'axe de rotation de l'arbre de l'agitateur (Figure 33).



Figure 33 : Champs de vitesse dans un mélangeur planétaire avec 1 kg de lactose, coupe horizontale (gauche) et coupe verticale (droite) (Hiseman et al., 2002).

Le mélangeur Triaxe est un mélangeur convectif planétaire sortant de l'ordinaire, avec sa cuve sphérique et son mobile d'agitation constitué de quatre pales rectangulaires. Il a déjà fait l'objet de quelques publications sur le mélange des liquides et des poudres humides (Delaplace et al., 2007; Forny et al., 2007), mais aussi sur des poudres sèches (André et al., 2014; C. André et al., 2012; Demeyre, 2007). Il est présenté plus en détail, à travers le modèle présent dans notre laboratoire, dans la partie "Matériels et méthodes" de cette thèse.

5. Modélisation par chaînes de Markov du mélange des poudres

De nombreuses façons existent de nos jours pour modéliser la déformation des milieux. Si le milieu peut être considéré continu, comme la plupart des fluides ou des solides, la modélisation par

éléments finis (FEM) peut être réalisée pour effectuer une résolution numérique des équations aux dérivées partielles caractéristiques du milieu considéré, avec un maillage plus ou moins précis. Cette technique peut être appliquée aux poudres, notamment lorsque le mouvement est suffisamment lent ou rapide pour se rapprocher de la déformation d'un solide ou de l'écoulement d'un fluide. Mais la modélisation par éléments discrets (DEM) est devenue populaire avec l'augmentation de la puissance de calcul des ordinateurs. Elle permet d'appliquer un bilan des forces à toutes les particules considérées. La taille des grains est généralement grande, de l'ordre du millimètre, et la forme est sphérique, mais des études s'intéressent à des distributions de tailles et à des formes de plus en plus complexes. Une autre philosophie de modélisation moins connue est la modélisation par chaines de Markov, permettant de modéliser les mouvements de poudres même à l'échelle de procédés pour des temps de calculs beaucoup plus courts que pour la FEM ou la DEM, ce qui est plus pratique en industrie où le nombre de particules employées et le nombre de paramètres étudiés sont grands. Cette dernière partie bibliographique s'attache à la description de ce type de modélisation, notamment pour décrire le mélange des poudres.

5.1. Application des chaines de Markov au mélange des poudres

Les chaînes de Markov sont des processus stochastiques qui permettent de modéliser des procédés industriels. C'est une notion proposée par Andrei Markov en 1902, pour résoudre des problèmes de cryptage et d'épistémologie (Lacroix, 2008). Ce type de modèle peut être utilisé dans des sujets aussi variés que l'électrochimie (Georgiev et al., 2005), les déplacements de touristes (Xia et al., 2009) ou encore le développement des forêts (Strigul et al., 2012). Dans le domaine des procédés, les chaînes de Markov sont capables de modéliser aussi bien des réacteurs chimiques que des systèmes d'absorption, voir même des combinaisons de procédés avec des réactions chimiques et des transferts de chaleur (Tamir 1998). Les chaînes de Markov ont fait aussi leurs preuves pour modéliser des procédés de transformation de poudres. Il peut s'agir de la modélisation des opérations de fluidisation, de mélange, de la classification et du broyage des poudres (Berthiaux and Mizonov, 2004).

Dans le cadre d'une opération de mélange de poudres, les chaines de Markov peuvent permettre de modéliser et simuler le déplacement d'un composant clé. Pour cela, plusieurs zones du mélangeur doivent être définies. Généralement il s'agit de zones avec un sens physique, délimitant les éléments nécessaires au mélange des poudres, comme des pales sur un mobile d'agitation dans un mélangeur convectif. Ces zones sont nommées « états » qui sont regroupés dans un « espace d'états ». Entre chacun de ces états, des flux de matière ont lieux et peuvent être représentés sous forme de proportion massique en composant clé. Ce composant est le « système » de la chaîne de Markov, et il peut être distribué parmi les états. Chaque déplacement du système s'effectue simultanément entre tous les états lors d'une étape appelée « transition ». Chaque transition peut correspondre à une durée de mélange ou à un phénomène physique lié au déplacement de la poudre, comme un tour de mobile d'agitation dans le cas d'un mélangeur convectif. Dans l'exemple d'un mélangeur convectif batch muni de trois éléments de mélange, les états correspondrait à une zone contenant un élément (Figure 34). Chaque état est agité par l'élément de mélange et échange de la matière avec les états voisins pendant un tour de mobile d'agitation, constituant une transition. Il est supposé ici que le système, un des composants clés du mélange étudié, ne peut pas être échangé entre les états 1 et 3 pendant une transition. Chaque échange de matière est quantifié par la proportion de constituant clé présent dans l'état *j* passant dans l'état *i* et est noté p_{ij} . Les coefficients p_{ii} représentent la proportion restante dans l'état *i* après une transition.



Figure 34 : Exemple de chaîne de Markov d'un mélangeur convectif.

Les probabilités de transition p_{ij} peuvent être placées à la i^{ème} ligne et à la j^{ème} colonne d'une matrice de probabilité de transitions P (eq. 28).

$$P = \begin{pmatrix} p_{11} & p_{12} & 0\\ p_{21} & p_{22} & p_{23}\\ 0 & p_{32} & p_{33} \end{pmatrix}$$
 eq. 28

La quantité de constituant clé présente dans chaque état peut être transcrite sous forme matricielle. Cette matrice est notée *S* et chaque coefficient $S_n(i)$ correspond à la proportion en traceur présente dans l'état *i* après *n* transitions. Avec *S* sous la forme d'un vecteur colonne, il est possible de déterminer le vecteur d'état S_{n+1} à la transition n+1 à partir du vecteur d'état à la transition précédente, S_n (eq. 29). Cette quantité est typiquement représentée sous forme de proportion massique normalisée, et dans ce cas la somme des éléments de *S* doit être égale à 1 pour respecter la conservation de la matière.

$$S_{n+1} = P.S_n \qquad \qquad \text{eq. 29}$$

Il est important de noter que si les coefficients de la matrice P ne dépend pas de n, la chaîne est qualifiée d'homogène. Dans ce cas, la relation précédente peut être simplifiée par récurrence et chaque espace d'états est lié directement à l'espace d'état initial S_0 (eq. 30).

$$S_n = P^n . S_0 \qquad \qquad \text{eq. 30}$$

La matrice de transition P peut dépendre du vecteur d'état présent, la chaîne est alors non linéaire (eq. 31). L'expression de l'équation reliant les espaces d'états consécutifs est moins évidente, ce type de chaîne est rarement utilisé pour modéliser expérimentalement des procédés car elle nécessite beaucoup d'expériences pour déterminer les probabilités de transitions, selon les différentes répartitions de matières possibles dans chaque vecteur d'états.

$$S_{n+1} = P(S_n).S_n \qquad \text{eq. 31}$$

Afin de respecter le bilan de matière, il est important de noter que la somme des coefficients de chaque colonne de la matrice P doit être égale à 1.

5.2. Modélisation et simulations de mélangeurs

Les chaînes de Markov ont déjà été employées pour comprendre et prédire le mélange de poudres à écoulement libre dans un procédé continu. K. Marikh a développé un modèle 1D ainsi qu'un modèle 2D sur un mélangeur continu à l'échelle pilote Gericke GCM 500 (Marikh, 2003). La dimension du modèle représente ici la dimension spatiale de l'espace d'état, où chaque état correspond à une zone précise du mélangeur. Le premier modèle est constitué d'une série d'états en cascades avec échanges où chaque état représente une zone du mélangeur équipée d'une pale (Figure 35).



Figure 35 : Modélisation par chaînes de Markov d'un mélangeur continu de poudres (Marikh, 2003).

Dans un tel procédé continu, un vecteur d'état d'alimentation S_{fn} doit être ajouté avec son premier élément $S_{fn}(1)$ non nul et tous les autres éléments du vecteur sont nuls, dans le cas où l'alimentation s'effectue dans le premier état de la chaîne. Un état absorbant est aussi ajouté en fin de chaîne. Cet état n'échange pas de poudre avec les autres, toute matière qui y rentre reste dedans.

Les probabilités de transitions d'une cellule vers elle-même ont été définies à partir du pas de temps d'une étape de transition Δt et du temps de séjour géométrique dans chaque cellule t_{fj} (Fan, 1985). Cette approche, non justifiée dans les travaux de Fan, a été remise en question par des travaux plus récents de modélisation (Milhé et al., 2016).

$$p_{jj} = e^{-\Delta t/t_{fj}} \qquad eq. 32$$

Sachant que la somme entre les coefficients de chaque colonne doit être égale à 1, il est possible d'en déduire les autres coefficients de la matrice de transition. La validation du modèle a été effectuée en confrontant les données expérimentales de mesure des temps de séjour avec les données calculées par le modèle.

Le modèle 2D, plus proche de la géométrie du procédé permet d'avoir une description plus précise des phénomènes d'écoulements dans le mélangeur (Figure 36). Dans ce cas, la chaîne 1D précédente a été conservée pour modéliser la partie inférieure de la cuve, où la poudre est en contact avec les pales, et une autre cascade d'états a été ajoutée, sans recirculation entre les états, pour modéliser le transport généré au niveau de la vis centrale. Un coefficient d'échange r représente le transfert de matière entre les deux cascades.



Figure 36 : Modèle par chaînes de Markov en 2D (à droite) d'un mélangeur continu de poudres (à gauche) (Marikh, 2003).

Ce mélangeur a aussi été étudié par Ammarcha lors de sa thèse (Ammarcha, 2010), en régime d'écoulement transitoire, avec l'utilisation d'une chaîne 1D homogène. Une chaîne non-linéaire a été établie en supposant que les probabilités de transitions p_{ij} dépendent de la masse retenue dans l'état *i* (eq. 33). Cela permet de modéliser l'agitation en régime de fonctionnement transitoire, en fonction du débit associé à l'état *i Qout_i*, du pas de temps Δt et de la masse retenue dans l'état *i M_{ci}*.

$$p_{i+1,i} = \frac{Qout_i.\,\Delta t}{M_{ci}} \qquad \qquad eq. \,33$$

Les modèles markoviens ont aussi été employés pour modéliser des mélangeurs batch comme les mélangeurs statiques à retournement. Un modèle a concerné un mélangeur fabriqué en laboratoire avec une chaîne en 1D (Ponomarev et al., 2009a) et un autre modèle s'est intéressé au comportement des poudres dans un mélangeur Sysmix® avec une chaîne en 2D (Ponomarev et al., 2009b).

Les états correspondent donc à des éléments de mélange et chaque étape de transition est associée à un retournement à 180° du mélangeur (Figure 37).

Pour les deux poudres A et B mélangées, une matrice de probabilité de transition, respectivement P_A et P_B est associée à chaque vecteur d'état S_A et S_B . Pour ces deux variétés de mélangeurs statiques, les probabilités de transition ont été déterminées en minimisant l'écart entre les concentrations expérimentales et calculées par le modèle dans les différentes zones du mélangeur.



12 columns in the model proposed (6 columns of elements)

Figure 37 : Modèle markovien 2D d'un mélangeur Sysmix[®] (Ponomarev, 2009b).

Un autre type de mélangeur batch a aussi fait l'objet d'une modélisation par les chaînes de Markov : ce sont les mélangeurs à tambour tournant, comme le mélangeur cylindrique à cerceau Erweka® (Aoun-Habbache, 2002). Aoun-Habbache a mesuré la dispersion axiale et radiale de particules à écoulement libre dans le mélangeur cylindrique avec une méthode d'analyse d'images, permettant de suivre l'évolution d'un traceur dans plusieurs zones du mélangeur au cours du mélange. Seul le déplacement axial de matière a été modélisé, et les probabilités de transitions du modèle ont été corrélées à partir des fractions massiques en traceur, relevées expérimentalement dans chaque zone. Dans ce mélangeur, un mouvement de renversement s'ajoute à la rotation de la cuve. Cela se traduit par un mouvement des particules d'un état vers le prochain état dans un sens donné pendant une demi-rotation. Et pendant la prochaine demi-rotation, les particules se déplacent dans l'autre sens. Ainsi à chaque demi-rotation est associée une matrice de probabilité de transition spécifique dont l'une est la permutation à 180° de l'autre. On parle donc d'état « réfléchissant », où chaque état en début ou en fin de chaîne renvoie la poudre vers son état voisin après chaque demi-rotation (Figure 38).



Figure 38 : Modèle du mélangeur cylindrique à cerceau Erweka® (Aoun-Habbache, 2002).

Conclusion

Dans de ce premier chapitre, divers aspects des poudres, de leur agitation, de leur écoulement, de leur mélange et de leur modélisation ont été abordés. La première partie s'intéressant aux propriétés des poudres permet de répertorier les moyens dont on dispose pour décrire les différentes sortes de poudres. Dans le cadre de ces travaux, nous porterons une attention particulière à la cohésion des poudres, correspondant à des forces d'attractions entre les particules. La deuxième partie présentait l'analogie effectuée entre l'étude des milieux granulaires et la mécanique des sols, avec l'application de cisaillements pour caractériser le comportement rhéologique d'une poudre. Ces approches sont effectuées en régime quasi-statique, ainsi d'autres méthodes doivent être utilisées pour étudier les écoulements plus rapides. Le rhéomètre FT4 Freeman, muni de pales et de dispositifs d'aération, permet de faire cela. L'usage de pales mobiles dans un lit de poudre a été aussi évoquée et est plus représentative des écoulements présents dans les mélangeurs convectifs. La troisième partie permettait de situer le procédé principal de cette thèse (Triaxe[®]) par rapport aux autres technologies de mélanges batch existantes. La dernière partie s'attachait à monter la possibilité de modéliser des opérations de mélange des poudres avec des chaînes de Markov, plus compétitives en termes de temps de calculs par rapport aux modélisations plus conventionnelles comme la FEM ou la DEM. Celles-ci n'ont pas encore été appliquées aux mélangeurs convectifs discontinus et ce sera l'objet d'une partie de cette thèse.

Références

- Allen, J., 1970. The avalanching of granular solids on dune and similar slopes. Journal of Geology.
- Ammarcha, C., 2010. Mélange des poudres en continu: modèles dynamiques et caractérisation des mélanges en ligne. Thèse de doctorat, Institut national polytechnique, Toulouse, France.
- Anderson, R., Gathman, S., Hughes, J., Björnsson, S., Jónasson, S., Blanchard, D.C., Moore, C.B., Survilas, H.J., Vonnegut, B., 1965. Electricity in Volcanic Clouds. Science 148, 1179–1189.
- André, C., Demeyre, J.F., Gatumel, C., Berthiaux, H., Delaplace, G., 2012. Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders: Mixing time and power consumption. Chemical Engineering Journal, 198–199, 371–378.
- 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 Technology, 256, 33–38.
- Aoun-Habbache, M., Aoun, M., Berthiaux, H., Mizonov, V., 2002. An experimental method and a Markov chain model to describe axial and radial mixing in a hoop mixer. Powder Technology, Vol. 128, Issues 2-3, 159-167.
- Ashton, M., Valentin, F.H., 1966. Transactions of the Institution of Chemical Engineers 44.
- ASTM American Society for Testing and Materials Committee, "Standard Shear Testing Method for Bulk Solids Using the Jenike Shear Cell", Designation D 6128 – 97, 1998, 18p.
- Auger, F., Delaplace, G., Bouvier, L., Redl, A., André, C., Morel, M.-H., 2013. Hydrodynamics of a planetary mixer used for dough process: Influence of impeller speeds ratio on the power dissipated for Newtonian fluids. Journal of Food Engineering, 118, 350-357.
- Aulton, M., 2007. The design and manufacture of medicines (third edition), Churchill livingstone, Elsevier.
- Bagster, D.F., Bridgwater, J., 1967. The Measurement of the Force Needed to Move Blades Through a Bed of Cohesionless Granules. Powder Technology, 1, 189–198.
- Bagster, D.F., Bridgwater, J., 1969. The flow of granular material over a moving blade. Powder Technology 3, 323–338.
- Barling, D., Morton, D.A.V., Hapgood, K., 2015. Pharmaceutical dry powder blending and scale-up: Maintaining equivalent mixing conditions using a coloured tracer powder. Powder Technology, 6th International Workshop on Granulation: Granulation across the length scales 270, Part B, 461–469.
- Ben Aïm, R., Le Goff, P., 1968. Effet de paroi dans les empilements désordonnés de sphères et application à la porosité de mélanges binaires. Powder Technology, 1, 281-290.
- Berthiaux, H., Mizonov, V., 2004. Applications of Markov Chains in Particulate Process Engineering: A Review. The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 82, Issue 6, 1143–1168.
- Beverloo, W.A., Leniger, H.A., Van de Velde, J., 1961. The flow of granular solids through orifices. Chemical Engineering Science, Vol. 15, 260-269.

- Bharvada, E., Shah, V., Misra, M., 2015. Exploring mixing uniformity of a pharmaceutical blend in a high shear mixture granulator using enthalpy values obtained from DSC. Powder Technology, 276, 103-111.
- Bonamy, D., 2002. Phénomènes collectifs dans les matériaux granulaires Ecoulements de surface et réarrangements internes dans les empilements modèles. Thèse de doctorat, Université Paris XI.
- Bridgwater, J., 1976. Fundamental Powder Mixing Mechanisms. Powder Technology, 15, 215–236.
- Brone, D., Muzzio, F.J., 2000. Enhanced mixing in double-cone blenders. Powder Technology, 110, 179-189.
- Carr, R.L., 1965 (January 18). Evaluating flow properties of solids. Chemical Engineering, 163-168.
- Carrigy, M.A., 1970. Experiments on the angles of repose of granular materials. Sedimentology, Vol. 14, Issue 3-4, 147-158.
- Cazacliu, B., Legrand, J., 2008. Characterization of the granular-to-fluid state process during mixing by power evolution in a planetary concrete mixer. Chemical Engineering Science, 63, 4617-4630.
- Chandratilleke, G.R., Yu, A.B., Bridgwater, J., 2012. A DEM study of the mixing of particles induced by a flat blade. Chemical Engineering Science, 79, 54–74.
- Chesterton, A.K.S., Perreira de Abreu, D.A., Moggridge, G.D., Sadd, P.A., Wilson, D.I., 2013. Evolution of cake batter bubble structure and rheology during planetary mixing. Food Bioproducts Processing, 91, 192–206.
- Cimarelli, C., Alatorre-Ibargüengoitia, M.A., Kueppers, U., Scheu, B., Dingwell, D.B., 2013. Experimental generation of volcanic lightning. The Geological Society of America, Geology G34802.1.
- Cleary, P.W., 2013. Particulate mixing in a plough share mixer using DEM with realistic shaped particles. Powder Technology, 248, 103–120.
- Collet, R., 2010. Critères de malaxabilité des mélanges granulaires humides. Thèse de doctorat, INPT, Toulouse, France.
- Danckwerts, P.V., 1952. The definition and measurement of some characteristics of mixtures. Applied Scientific Research, Sect. A, Vol. 3, Issue 4, 279-296.
- Daumann, B., Fath, A., Anlauf, H., Nirschl, H., 2009. Determination of the mixing time in a discontinuous powder mixer by using image analysis. Chemical Engineering Science, 64, 2320-2331.
- Delaplace, G., Coppenolle, P., Cheio, J., Ducept, F., 2012. Influence of whip speed ratios on the inclusion of air into a bakery foam produced with a planetary mixer device. Journal of Food Engineering, 108, 532–540.
- Delaplace, G., Thakur, R.K., Bouvier, L., André, C., Torrez, C., 2007. Dimensional analysis for planetary mixer: Mixing time and Reynolds numbers. Chemical Engineering Science, 62, 1442-1447.

- Demeyre, J-F., 2007. Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe®. Thèse de doctorat, INPT, Toulouse, France.
- Dodds, J.A., 1975. Simplest statistical geometric model of the simplest version of the multicomponent random packing problem. Nature 256, 187-189.
- Dodds, J.A., Kuno, H., 1977. Computer simulation and statistical geometric model for contacts in binary random two-dimensional disk packings. Nature 266, 614-615.
- Dodds, J.A., 1980. The porosity and contact points in multicomponent random sphere packings calculated by a simple statistical geometric model. Journal of colloid and interface science, Vol. 77, No 2.
- Ehrhardt, N., Montagne, M., Berthiaux, H., Dalloz-Dubrujeaud, B., Gatumel, C., 2005. Assessing the homogeneity of powder mixtures by on-line electrical capacitance. Chemical Engineering and Processing Process Intensification, Pneumatic Conveying and Handling of Particulate Solids, 44, 303-313.
- Entrop, W., 1978. Scaling up solid-solid mixers. International Symposium on Mixing, Faculté polytechnique de Mons, D1 1-14.
- Fan, L.T., Too, J.R., Nassar, R., 1985. Stochastic simulation of residence time distribution curves. Chemical Engineering Science, 40, 1743-1749.
- FEM 2582, 1991. Fédération Eur. Manut. Section II, manutention continue, Caractéristique générales des produits en vrac et leur symbolisation.
- Fraysse, N., 2000. Des châteaux de sable...à la physique des milieux granulaires humides. Bulletin S.F.P
- Forny, L., Pezron, I., Saleh, K., Guigon, P., Komunjer, L., 2007. Storing water in powder form by selfassembling hydrophobic silica nanoparticles. Powder Technology, 171, 15-24.
- Fraysse, N., 2000. Des châteaux de sable...à la physique des milieux granulaires humides. Bulletin S.F.P
- Freeman, R., 2007. Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders — A comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell. Powder Technology, 174, 25-33.
- Georgiev, G.S., Georgieva, V.T., Plieth, W., 2005. Markov chain model of electrochemical alloy deposition. Electrochimica Acta, Vol. 51, Issue 5, 870-876.
- Hausner, H.H., 1967. Frictions conditions in a mass of metal powder. International Journal of Powder Metallurgy, 3, 7-13.
- Henein, H., Brimacombe, J., Watkinson, A., 1983. Experimental study of transverse bed motion in rotary kilns. Metallurgical Transactions B, Vol. 14, Issue 2, 191–205.
- Hiseman, M.J.P., Laurent, B.F.C., Bridgwater, J., Wilson, D.I., Parker, D.J., North, N., Merrifield, D.R., 2002. Granular Flow in a Planetary Mixer. Chemical Engineering Research and Design, Materials Processing, 80, 432–440.

- Janssen, H.A., 1895. Versuche über getreidedruck in silozellen. Vereines Deutscher Ingenieure, Vol. 39, No 35, 1045-1049.
- Johanson, K., Rabinovich, Y., Moudgil, B., Breece, K., Taylor, H., 2003. Relationship between particle scale capillary forces and bulk unconfined yield strength. Powder Technology, World Congress of Particle Technology, 138, 13-17.
- Jones, J.R., Parker, D.J., Bridgwater, J., 2007. Axial mixing in a ploughshare mixer. Powder Technology, 178, 73-86.
- Knight, P.C., Seville, J.P.K., Wellm, A.B., Instone, T., 2001. Prediction of impeller torque in high shear powder mixers. Chemical Engineering Science, 56, 4457-4471.
- Kojima, T., Elliott, J.A., 2014. A semi-empirical model relating flow properties to particle contacts in fine binary powder mixtures. Powder Technology, 268, 191-202.
- Komatsu, T., Inagaki, S., Nakagawa, N., Nasuno, S., 2001. Creep motion in a granular pile exhibiting steady surface flow. Physical Review Letters 86, 1757.
- Lacey, P.M.C., 1954. Developments in the theory of particle mixing. Journal of Applied Chemistry, 4, 257-268.
- Lacey, P.M.C., 1943. The mixing of solid particles. Transactions of the Institution of Chemical Engineers, 21, 53.
- Lacroix, J., 2008. Chaînes de Markov. Techniques de l'Ingénieur, Ref. AF612 V1.
- Lamboley, A., 1970. Statistiques. Techniques de l'Ingénieur, Ref. A166 V1.
- Laurent, B.F.C., 2006. Scaling factors in granular flow—analysis of experimental and simulations results. Chemical Engineering Science, "Shaping the Future of Chemical Engineering", The John Bridgwater Symposium, 61, 4138-4146.
- Laurent, B.F.C., Cleary, P.W., 2012. Comparative study by PEPT and DEM for flow and mixing in a ploughshare mixer. Powder Technology, 228, 171–186.
- Leuenberger, H., Bier, H.P., Sucker, H., 1979. Theory of the granulating-liquid requirement in the conventionnal granulation process, Pharmaceutical Technology International, 2, 35-42.
- Makishima, S.I., Shirai, T., 1968. Experimental Study on the Power Requirements for Agitating Beds of Solid Particles, and Proposal of a New Model. Journal of Chemical Engineering of Japan, 1, 168-174.
- Malhotra, K., Mujumdar, A.S., Miyahara, M., 1990a. Estimation of particle renewal rates along the wall in a mechanically stirred granular bed. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 27, 121-130.
- Malhotra, K., Mujumdar, A.S., Okazaki, M., 1990b. Particle flow patterns in a mechanically stirred two-dimensional cylindrical vessel. Powder Technology, 60, 179-189.
- 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, Montpellier SupAgro, France.

- Marikh, K., 2003. Mélange des poudres en continu : dynamique et modélisation. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.
- Massol-Chaudeur, S., Berthiaux, H., Dodds, J.A., 2002. Experimental study of the mixing kinetics of binary pharmaceutical powder mixtures in a laboratory hoop mixer. Chemical Engineering Science, 57, 4053-4065.
- Massol-Chaudeur, S., Dodds, J., Berthiaux, H., 2000. Caractérisation de l'état de mélange de poudres: cas de mélanges faiblement dosés. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.
- Mayer-Laigle, C., 2012. Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes particulaires en mélangeur Turbula®: application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites. Thèse de doctorat, INPT, Toulouse, France.
- Mayer-Laigle, C., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2015. Mixing dynamics for easy flowing powders in a lab scale Turbula® mixer. Chemical Engineering Research and Design, 95, 248-261.
- McGeary, R.K., 1961. Mechanical Packing of Spherical Particles. Journal of the American Ceramic Society, 44, 513-522.
- Mellmann, J., 2001. The transverse motion of solids in rotating cylinders—forms of motion and transition behavior. Powder Technology, 118, 251–270.
- Milhé, M., Sauceau, M., Arlabosse, P., 2016. Modeling of a continuous sewage sludge paddle dryer by coupling Markov chains with penetration theory. Applied Mathematical Modelling, 40, 8201-8216.
- Muzzio, F., Robinson, P., Wightman, C., Brone, D., 1997. Sampling practices in powder blending. International journal of pharmaceutics, 155, 153-178.
- Ponomarev, D., Mizonov, V., Gatumel, C., Berthiaux, H., Barantseva, E., 2009a. Markov-chain modelling and experimental investigation of powder-mixing kinetics in static revolving mixers. Chemical Engineering Research and Design, Vol. 48, Issue 11, 1059-1074.
- Ponomarev, D., Mizonov, V., Berthiaux, H., Gatumel, C., Gyenis, J., Barantseva, E., 2009b. A 2D Markov chain modelling powder mixing in alternately revolving static mixer Sysmix® type. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, Vol. 48, Issues 11-12, 1495-1505.
- Poux, M., Fayolle, P., Bertrand, J., Bridoux, D., Bousquet, J., 1991. Powder mixing: Some practical rules applied to agitated systems. Powder Technology, 68, 213-234.
- Prior, J.M.V., Almeida, I., Loureiro, J.M., 2013. Prediction of the packing porosity of mixtures of spherical and non-spherical particles with a geometric model. Powder Technology, 249, 482-496.
- Radl, S., Brandl, D., Heimburg, H., Glasser, B.J., Khinast, J.G., 2012. Flow and mixing of granular material over a single blade. Powder Technology, 226, 199–212.
- Rao, K.K., Nott, P.R., 2008. An introduction to granular flow. Cambridge Series in Chemical Engineering (ISBN: 9780521571661).
- Richards, J.C., Brown, R.L, 1970. Principles of powder mechanics. Pergamon Press, Oxford.

- Rose, H.E., 1959. A suggested equation relating to the mixing of powders and its application to the study of the performance of certain types of machines. Trans. AIChE 37, 47.
- Schulze, D., 2008. Powders and Bulk Solids, Springer-Verlag, Berlin Heidenberg.
- Seville, J., Tüzün, U., Clift, R., 1997. Processing of Particulate Solids, Blackie Academic & Professional, 384, London.
- Siraj, M.S., 2014. Single-blade convective powder mixing: The effect of the blade shape and angle. Powder Technology, 267, 289-301.
- Smith, J.C., 1955. Mixing Chemicals with Soil. Industrial and Engineering Chemistry, 47, 2240-2244.
- Strigul, N., Florescu, I., Welden, A.R., Michalczewski, F., 2012. Modelling of forest stand dynamics using Markov chains. Environmental Modelling and Software, 31, 64-75.
- Tamir, A., 1998. Applications of Markov Chains in Chemical Engineering. Elsevier. (ISBN: 978-0-444-82356-4).
- Tsirel, S., 1997. Methods of Granular and Fragmented Material Packing Density Calculation. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 34, 263-273.
- Van Burkalow, A., 1945. Angle of repose and angle of sliding friction : an experimental study. Bulletin of the Geological Society of America.
- Vanel, L., Howell, D., Clarck, D., Behringer, R.P., Clément, E., 1999. Memories in sand: experimental test of construction history on stress distribution under sandpiles. Physical Review E, statistical physics, plasmas, fluids, and related interdisciplinary topics 60, R5040-3.
- Weidenbaum, S.S., Bonilla, C.F., 1955. Chemical Engineering Progress, 51, 27J.
- Westman, A.E.R., Hugill, H.R., 1930. The packing of particles. Journal of the American Ceramic Society, 13, 767.
- Williams, D.A., Saak, A.W., Jennings, H.M., 1999. The influence of mixing on the rheology of fresh cement paste. Cement and Concrete Research, Vol. 29, Issue 9, 1491-1496.
- Williams, J.C., 1976. The segregation of particulate materials, a review. Powder Technology, Vol. 15, Issue 2, 245-251.
- Xia, J. (Cecilia), Zeephongsekul, P., Arrowsmith, C., 2009. Modelling spatio-temporal movement of tourists using finite Markov chains. Mathematics and Computers Simulation, 79, 1544-1553.
- Yen, K.Z.Y., Chaki, T.K., 1992. A dynamic simulation of particle rearrangement in powder packings with realistic interactions. Journal of Applied Physics, Vol. 71, Issue 7, 3164–3173.
- Yu, A.B., Bridgwater, J., Burbidge, A., 1997. On the modelling of the packing of fine particles. Powder Technology, 92, 185-194.
- Yu, A.B., Standish, N., McLean, A., 1993. Porosity Calculation of Binary Mixtures of Nonspherical Particles. Journal of the American Ceramic Society, 76, 2813-2816.
- Yu, A.B., Zou, R.P., Standish, N., 1996. Modifying the Linear Packing Model for Predicting the Porosity of Nonspherical Particle Mixtures. Industrial and Engineering Chemistry Research, 35, 3730-3741.

Zhao, X., 2013. Contribution to the implementation of a process control system for continuous powder mixing. Thèse de doctorat, INPT / Mines d'Albi, France.

L'ensemble des machines, des produits et des méthodologies expérimentales sont décrits dans cette partie. Pour pouvoir comprendre comment les poudres s'écoulent dans les procédés de mélange convectifs, il est nécessaire d'utiliser d'autres appareils à différentes échelles, qu'ils soient fournis par des fabricants comme le rhéomètre FT4 Freeman et le voluménomètre Erweka, ou construit au laboratoire comme le mélangeur polyvalent élaboré au cours de cette thèse. L'écoulement de diverses poudres est étudié par le biais de trois types d'expériences : les mesures de puissance mécanique d'agitation avec des couplemètres, des observations d'images de régimes d'écoulements et des analyses de mélange de poudre avec un traceur.

1. Les poudres utilisées

Dans le cadre de ce travail, cinq poudres ont été employées: de la semoule fine, de la marque "Le renard", deux types de lactoses, du "Granulac 140" et du "Granulac 230", du talc de Luzenac "Luz00" et du sable broyé finement de la "Société Nouvelle du Littoral". La figure 1 montre respectivement de gauche à droite des tas de ces cinq poudres, déposées à la spatule. Dans la suite de la thèse, le Granulac 140 sera appelé "lactose" et le Granulac 230 sera appelé "lactose fin", car il a une taille moyenne des grains plus faible (Tableau 1). Ces poudres ont été choisies car elles ont des propriétés d'écoulement diverses, notamment la semoule qui est à écoulement libre, et les quatre autres poudres qui sont plutôt cohésives, avec des tailles, formes et densités variées. Des mélanges entre la semoule et le lactose, et entre la semoule et le lactose fin seront utilisés en rhéologie dans le mélangeur Triaxe[®] et en laboratoire avec le rhéomètre FT4 et le voluménomètre. Les mélanges à base de semoule et de lactose seront nommés *M1* et les mélanges à base de semoule et de lactose fin seront nommés *M2*.



Figure 1: Poudres utilisées, de gauche à droite : semoule, lactose, lactose fin, talc et sable.

Les semoules sont des particules d'amande de blé dur, la partie interne du grain, pouvant contenir un peu d'enveloppe et riche en amidon (Siret, 2014). Elles contiennent aussi des fibres et des protéines. Leurs usages concernent principalement l'industrie alimentaire, où elles peuvent être commercialisées directement, ou après transformation pour la fabrication d'autres produits comme les pâtes. La taille des semoules varie de 250 à 1000 μ m (Bourson, 2009). La semoule fine "Le Renard" dont nous disposons est constituée de particules de diamètre moyen en volume de l'ordre de 300 μ m, elle contient aussi une faible fraction en masse de fines particules inférieures à 100 μ m. La morphologie des grains, polygonale, a été observée au microscope électronique à balayage (MEB) environnemental ESEM XL20 (Phillips[®], Pays-Bas) et au microscope optique numérique à réflexion de type VHX-700F (Keyence, Japon) équipé d'un dispositif d'acquisition d'images numériques (Figure 2).





Figure 2 : Images par microscopie électronique (à gauche) et optique (à droite) des grains de semoule.

Cette poudre peut être qualifiée de poudre à écoulement libre car elle s'écoule sans difficulté lorsqu'elle est manipulée à la spatule ou avec un entonnoir. Les valeurs de mesures de FRI effectuées au rhéomètre FT4 Freeman sont proches de 1, ce qui est le signe d'une bonne coulabilité (Tableau 3).

Le lactose est le glucide le plus présent dans le lait et la molécule est constituée de β -Dgalactose et de β -D-glucose (Boutonnier, 2014). Il est extrait du lactosérum et est le coproduit de la fabrication du fromage. Il est utilisé en industrie alimentaire avec une pureté de 98%, et dans l'industrie pharmaceutique en tant qu'excipient dans les formulations solides comme les poudres, granulés et comprimés, avec une pureté de 99% (Boutonnier, 2016).

Sa solubilité est peu élevée et il peut exister sous plusieurs formes allotropiques. Le lactose utilisé dans ce travail est du lactose α -monohydraté, c'est à dire que pour une molécule de lactose est associée une molécule d'eau. Ceci signifie qu'une proportion massique de l'ordre de 5% de la poudre est constituée d'eau liée. Deux formes commercialisées par "Meggle" sont utilisées ici: le Granulac 140 et le Granulac 230. La différence entre ces deux poudres est leur taille, celle du Granulac 230 étant environ deux fois plus petite. Les images aux microscopes montrent bien cette différence. En revanche la forme polygonale des particules est proche (Figure 3).

Le talc, extrait de gisements de roche de stéatite broyée, est constitué principalement de silicium et de magnésium. La structure des particules du talc "Luz00" utilisé ici est clairement constituée de feuillets empilés les uns sur les autres (Figure 4).



Figure 3 : Images par microscopie électronique du lactose (a) et du lactose fin (c) et image par microscopie optique du lactose (b) et du lactose fin (d).



Figure 4 : Images par microscopie électronique (à gauche) et optique (à droite) du talc.

C'est un produit utilisé dans de nombreux domaines, allant de l'industrie cosmétique et pharmaceutique, à l'industrie aéronautique et automobile (Martin, 2008). Il permet de faciliter des opérations unitaires de transformation de poudres comme la compression (Ribet et al., 2003).

Le sable est une poudre constituée de nombreux minéraux comme le quartz ou les feldspaths. C'est un matériau utilisé en grandes quantités dans le génie civil et en construction de bâtiments notamment, car il est l'un des ingrédients principal du béton. Le sable utilisé ici n'est pas celui communément vu dans la nature, souvent à écoulement libre quand il est sec. En effet, celui dont nous disposons a été broyé et constitue la poudre avec les masses volumiques apparentes les plus élevées (Tableau 1). La forme des particules est polygonale et la taille est polydisperse (Figure 5). C'est une poudre abrasive qui ne sera pas utilisée dans le mélangeur polyvalent, décrit dans une autre partie de ce chapitre, afin d'éviter les rayures sur sa cuve transparente. Son utilisation dans le mélangeur Triaxe[®] doit être limitée, car avec une masse trop importante il risque d'abîmer l'équipement.





Figure 5 : Images du sable par microscopie MEB (à gauche) et optique (à droite).

Le tableau 1 résume les principales propriétés des poudres présentées. La taille a été mesurée avec un granulomètre LASER Mastersizer 3000 (Malvern Instrument, Royaume-Uni) et est exprimée en diamètre moyen caractéristique en volume avec le d_{50} . Le SPAN est calculée à partir des mesures effectuées avec ce granulomètre. La masse volumique brute des particules ρ_p a été mesurée avec un pycnomètre à hélium Accupyc (Micromeritics, USA). Les masses volumiques apparentes vrac et tassées, ρ_b et ρ_t respectivement ont été mesurées avec unvoluménomètre SVM22 (Erweka, Allemagne).

Poudre	<i>d</i> ₅₀ (µm)	SPAN	$ ho_b (\mathrm{kg.m}^{-3})$	$\rho_t (\mathrm{kg.m}^{-3})$	$\rho_p (\mathrm{kg.m}^{-3})$
Semoule	312	0,87	679	720	1463
Lactose	61	2,10	661	795	1533
Lactose fin	26	2,36	495	638	1539
Talc	16	2,69	501	848	2772
Sable	33	2,64	887	1222	2643

Tableau 1 :	Proprié	tés des	poudres.
-------------	---------	---------	----------

La teneur en eau des poudres, pouvant impacter fortement la rhéologie si elle est élevée, a été mesurée par pesée avec un dessiccateur halogène MB 35 (Ohaus, USA) (Figure 6). La température est imposée à 105°C et l'appareil chauffe pendant une durée automatique, avec un arrêt lorsque la masse du produit ne varie plus. La masse de poudre évaluée à chaque essai est de l'ordre de 3 g et est effectuée sur deux échantillons. Le tableau 2 regroupe les valeurs d'humidité, pour les poudres issues directement de leur sac de conditionnement.



Figure 6 : Balance dessiccateur Ohaus MB 35.

On peut remarquer que toutes les poudres ont une teneur en eau faible, sauf la semoule qui est hygroscopique et a tendance à absorber l'humidité de l'air. Il ne s'agit pas uniquement d'eau adsorbée en surface des grains car la semoule aurait eu un comportement très cohésif à l'œil nu.

Tableau 2 : Teneur en eau libre	e des poudres.
---------------------------------	----------------

Semoule	Lactose	Lactose fin	Talc	Sable
11,56 %	0,31 %	0,49 %	0,24 %	0,17 %

Des caractérisations ont été effectuées au rhéomètre FT4 Freeman et les indices de Carr ont été calculés à partir des masses volumiques apparentes mesurées avec le voluménomètre Erweka (Tableau 3).

Poudre	Semoule	Lactose	Lactose fin	Talc	Sable
Indice de Carr (%)	5,8	16,9	22,5	40,9	27,4
Cohésion à 4kPa (kPa)	0,24	0,75	1,12	0,54	0,59
FRI	0,89	1,25	2,09	2,09	2,34
ffc à 4kPa (kPa)	1,13	2,87	3,73	1,82	2,36

Tableau 3 : Caractéristiques rhéologiques des poudres.

2. Les techniques de caractérisation

2.1. Le voluménomètre Erweka

Le voluménomètre Erweka utilisé est un dispositif permettant de mesurer les masses volumiques apparentes vrac et tassée d'une poudre donnée, donc de calculer un indice de Carr ou de Hausner (Figure 7). Il est constitué de deux socles oscillant avec une fréquence et une amplitude stable. Les socles fournissent ainsi plusieurs chocs réguliers à la poudre placée au préalable dans une éprouvette graduée en verre d'une capacité de 250 mL. Le nombre de chocs consécutifs à fournir à la poudre peut être programmé, et l'appareil mis en pause à tout moment de l'opération pour pouvoir effectuer des cinétiques de tassement.



Figure 7 : Voluménomètre Erweka.

Afin de mesurer les masses volumiques apparentes, une masse de 110 g de poudre est introduite dans l'éprouvette, saupoudrée spatule après spatule avec l'aide d'un entonnoir. Ensuite le volume de poudre correspondant est noté avant de fixer l'éprouvette contenant la poudre sur le socle. Puis une série de 1000 coups est infligée à la poudre et le volume tassé est lu. Ce nombre de coups suffit amplement à atteindre le tassement maximal disponible par l'appareil, les poudres utilisées ici l'atteignent à partir de 300 coups environ. Lorsque la surface du lit de poudre ne forme pas un plan horizontal, il est choisi de basculer légèrement l'éprouvette pour effondrer la pente et le cas échéant, le volume de poudre conservé est celui se situant visuellement au milieu de la pente.

Tout le protocole décrit précédemment est effectué deux ou trois fois pour chaque poudre étudiée afin de s'assurer de la reproductibilité des mesures. Pour mesurer les masses volumiques apparentes des mélanges de poudres, les mélanges sont effectués à la spatule jusqu'à atteindre une homogénéité satisfaisante à l'œil nu, l'opération est répétée pour s'assurer que les mesures sont
fiables et que cette étape de mélange est suffisamment correcte pour ne pas impacter les valeurs mesurées des masses volumiques.

2.2. Le rhéomètre Freeman FT4

Le rhéomètre FT4 de Freeman Technology est un appareil de mesure à l'échelle laboratoire, permettant d'effectuer diverses caractérisations rhéologiques des poudres. La poudre est versée dans une cellule cylindrique en verre de taille variable, dans cette thèse nous avons choisi de travailler avec celle de 50 mm de diamètre. Différents mobiles sont disponibles et nous utiliserons principalement celui de cisaillement et celui de mesure d'écoulement, avec des pales profilées (Figure 8).





Figure 8 : Rheomètre à poudres FT4 Freeman, avec cellule de cisaillement (à gauche) et pales profilées (à droite).

Sur le bas de la cuve, un peson permet de mesurer la force normale appliquée par le mobile d'agitation ou de cisaillement à la poudre, et un couplemètre permet de mesurer le couple de cisaillement subi par ce mobile.

Concernant le mobile équipé de pales, une énergie d'écoulement est calculée à partir de la force normale F_{base} , du couple T, du rayon des pales R et de leur angle α et de la profondeur de pénétration H selon l'équation 1 (Hare et al., 2015).

$$E_{flow} = \int_0^H \left(\frac{T}{R.\tan(\alpha)} + F_{base}\right) dH$$
 éq. 1

Cette énergie peut être mesurée pour différentes vitesses de pale et il est possible de calculer le Flow Rate Index (FRI), en divisant l'énergie mesurée pour une vitesse faible avec l'énergie mesurée pour une vitesse plus forte. Plus le FRI est grand, plus la poudre sera qualifiée de cohésive car l'air entrainé par les pales a le temps de s'échapper, laissant un milieu plus compact et plus difficile à s'écouler (Freeman, 2007). Il est possible d'effectuer des mesures d'écoulement avec une impulsion d'air entrant par le bas de la cuve grâce à une pièce frittée et un dispositif d'injection d'air (Figure 9).



Figure 9 : Rhéomètre FT4 équipé du module d'aération et du mobile à pales.

Avant toute série d'expérience, il est nécessaire de déterminer les gammes de vitesses d'air utilisables pour chaque poudre. Par exemple, pour la semoule il est possible d'atteindre 40 mm.s⁻¹, la limite de l'appareil, alors que les autres poudres utilisées comme le lactose, le lactose fin et le sable ne dépassent pas 10 mm.s⁻¹. La vitesse du flux d'air appliquée au talc ne peut pas dépasser 6 mm.s⁻¹ car au-delà la poudre est éjectée en dehors du récipient. Pour pouvoir les comparer, toutes les mesures utilisant de l'air ont été effectuées avec une vitesse d'air de 6 mm.s⁻¹. L'énergie nécessaire à la pale pour descendre dans le lit de poudre avec une vitesse de 100 mm.s⁻¹sous une vitesse d'air de 6 mm.s⁻¹

Avec la cellule de cisaillement, à partir des dimensions de la cuve utilisée, les contraintes de cisaillement et normales peuvent être déterminées, et sont exprimées l'une en fonction de l'autre pour calculer différentes valeurs comme la friction ou la cohésion selon la loi de Coulomb. A l'aide des cercles de Mohr, il est possible de mesurer la fonction d'écoulement *ffc* décrite au chapitre bibliographique de ce manuscrit. Les mesures de cohésion et de *ffc* ont été effectuées avec des contraintes normales de préconsolidations de 2, 4, 8 et 16 kPa.

3. Le mélangeur Triaxe[®]

3.1. Description

Le mélangeur Triaxe[®] est un mélangeur convectif planétaire, doté de 4 pales inclinables et d'une cuve sphérique en acier inoxydable (Figure 10). L'entrefer entre les pales et la cuve est inférieur à 1 mm afin d'éviter des zones mortes et de brasser toute la poudre contenue dans la cuve. Un faible entrefer permet aussi de limiter la formation d'une croûte sur les parois internes de la cuve, ce phénomène intervenant notamment pour les poudres fines et cohésives qui ont une bonne compressibilité. Mais un minimum de jeu doit être respecté pour ce type de poudre car des phénomènes de *stick slip* (frottements saccadés de poudre entre le mobile et la paroi) peuvent apparaître, créant un bruit intense lorsque la vitesse d'agitation est relativement faible. La forme des pales est rectangulaire mais biseautée sur les côtés afin de permettre leur inclinaison jusqu'à 45° sans racler la paroi.





Figure 10 : Mélangeur convectif planétaire Triaxe[®], vue extérieure (à gauche) et vue intérieure de la cuve (à droite).

Les pales suivent un mouvement de rotation autour d'un axe passant par le centre du réducteur sphérique et le centre du socle des pales, et autour d'un axe de giration vertical. L'inclinaison des pales (définie par la façon dont elles sont vissées et serrées dans leur support) a été choisie à 45° et l'angle de l'axe de rotation avec l'horizontale est de 15° . Le volume de la cuve est de 48 L, la distance entre deux extrémités de pales opposées *D* est de 0,448m et le diamètre du réducteur sphérique d_s , est de 0,112 m (Figure 11). En se plaçant en face des pales, la rotation s'effectue dans le sens antihoraire et vue du dessus de la cuve, le sens de giration est horaire: il s'agit d'une configuration de corotation où les pales poussent la matière vers le bas puis la ramènent vers le haut lorsqu'elles progressent dans le lit de poudre.



Figure 11 : Schéma et dimensions du mélangeur Triaxe[®].

D'autres variantes de paramètres sont possibles, mais n'ont pas été étudiées lors de cette thèse: le sens de giration peut être modifié, un jeu de pales creuse peut être placé à la place des pales pleines pour introduire plus de cisaillement, ce qui pourrait être intéressant pour mélanger des poudres cohésives. Une vanne au-dessus de la cuve permet d'effectuer des expériences sous vide, avec un gaz autre que l'air, ou de la granulation en injectant un liquide.

La giration et la rotation sont actionnées par deux moteurs électriques tournant jusqu'à 3000 tr.min⁻¹, et d'après les coefficients de réduction mécanique, il est possible de déduire la vitesse des axes de giration ω_{ga} [rad.s⁻¹]et de rotation ω_{ra} [rad.s⁻¹] à partir des vitesses du moteur de giration ω_{ge} [rad.s⁻¹] et de rotation ω_{re} [rad.s⁻¹] (éq. 2 et 3). Ainsi au niveau des axes, la vitesse de giration maximale est proche de 20 tr.min⁻¹ et la vitesse de rotation maximale est d'environ 100 tr.min⁻¹. Ces vitesses sont suffisamment faibles pour ne pas altérer les poudres étudiées, cela a été vérifié par des tests d'attrition lors de la thèse de J.F.Demeyre, avec une agitation soutenue de semoule et de lactose (Demeyre, 2007).

$$\omega_{ra} = \frac{\omega_{re}}{34} + 0,59.\,\omega_{ga} \tag{eq. 3}$$

Chaque moteur est équipé d'un couplemètre permettant de mesurer l'effort à fournir pour agiter les poudres. Une interface Labview® développée dans notre laboratoire permet de contrôler les vitesses de giration et de rotation et d'effectuer l'acquisition des couples au cours du temps (Figure 12). De plus il est possible de choisir un jeu de vitesses de giration et de rotation qui sera imposé aux moteurs, tout en choisissant le temps d'application de chaque combinaison giration-rotation. Le couple fluctue au cours du temps dû au changement de la position des pales par rapport à la gravité, et peut être moyenné pour faciliter l'exploitation des données. La durée pendant laquelle peut être effectuée cette moyenne est aussi un paramètre ajustable. Dans le cadre de cette étude, le couple sera moyenné durant 30 secondes, après une minute d'agitation permettant d'atteindre la stabilité des couples.



Figure 12 : Acquisition des couples de giration et de rotation par l'interface Labview[®], exemple d'évolution des signaux des couples de rotation et de giration lors d'une opération de mélange de semoule et de lactose.

3.2. Protocole de rhéométrie

Dans le cadre des études rhéologiques dans le mélangeur, les vitesses moteur de giration et de rotation sont de 0, 75, 150, 300, 600, 900, 1500, 2100 et 3000 tr.min⁻¹, afin d'avoir un panel suffisamment précis dans toute la plage des vitesses atteignables par les moteurs. Il y a donc 81 combinaisons de vitesses de giration-rotation.

A partir des couples à vide de giration T_{g0} [N.m] et de rotation T_{r0} [N.m], des couples en charge de giration T_{gf} [N.m] et de rotation T_{rf} [N.m] ainsi mesurés et des vitesses des moteurs, il est possible de calculer la puissance mécanique totale nécessaire pour agiter la poudre (éq. 4).

$$P = \omega_{ge} (T_{gf} - T_{g0}) + \omega_{re} (T_{rf} - T_{r0})$$
 éq. 4

Selon le couple de vitesses de giration-rotation, plusieurs trajectoires peuvent être décrites par un point situé en bout de pale. On remarque que la vitesse de bout de pale, dont le calcul est décrit par J.F.Demeyre dans sa thèse (Demeyre, 2007) n'est pas constante (Figure 13). Quant à la trajectoire d'un bout de pale, elle dépend du rapport entre la vitesse de giration de l'axe et la vitesse de rotation de l'axe.



Figure 13 : Vitesses et trajectoires dans l'espace d'un bout de pale du mélangeur Triaxe[®].

La vitesse en bout de pale a été calculée en fonction des dimensions du mélangeur et des vitesses de rotation et de giration. Il est possible de calculer une vitesse maximale caractéristique de bout de pale u_{ch} [m.s⁻¹] selon les équations 5 et 6 (Delaplace et al., 2005), correspondant à la vitesse maximale de bout de pale divisée par π . Ces deux équations sont issues de la dérivation des équations de trajectoire par rapport au temps et permettent de représenter la giration et la rotation en une seule

valeur, ce qui simplifiera grandement les calculs et les interprétations par la suite. Pour effectuer ces calculs, les dimensions du mélangeur restent en mètre et les vitesses angulaires doivent être converties en tr.s⁻¹.

$$\frac{\omega_{ra} \cdot d_s}{\omega_{ga} \cdot D} < 1 \quad \rightarrow u_{ch} = \sqrt{\left(\omega_{ga}^2 + \omega_{ra}^2\right) \cdot \left(d_s^2 + D^2\right)}$$
éq. 5

$$\frac{\omega_{ra.}d_s}{\omega_{ga.}D} > 1 \rightarrow u_{ch} = \omega_{ra.}D + \omega_{ga.}d_s$$
éq. 6

A partir d'un nombre de Froude modifié Fr_M (éq. 7) et d'un nombre de puissance modifié N_{pM} (éq. 8) une corrélation adimensionnelle (éq. 9) permet de lier la puissance, la vitesse d'agitation et les dimensions du mélangeur (André et al., 2012), *a* et *b* étant deux coefficients dépendant de la poudre utilisée.

$$Fr_{M} = \frac{u_{ch}^{2}}{g.d_{s}}$$
éq. 7

$$N_{pM} = \frac{P}{\rho_{b}.u_{ch}^{3}.d_{s}^{2}}$$
éq. 8

$$N_{pM} = a.Fr_{M}^{b}$$
éq. 9

Ainsi contrairement aux nombres de Froude et de puissance traditionnels, utilisant une vitesse de rotation angulaire, Fr_M et N_{pM} permettent de réduire la configuration du système décrivant les phénomènes en passant d'un espace (N_p , Fr, ω_{ga}/ω_{ra}) à (N_{pM} , Fr_M). Cela est utile lorsque l'on souhaite effectuer une comparaison de mélangeurs dont la composition de mouvement est différente, comme un système classique avec une seule rotation et un mélangeur planétaire.

4. Le mélangeur prototype polyvalent

4.1. Description

Afin de visualiser les écoulements à l'intérieur du mélangeur Triaxe[®], un mélangeur prototype à pales a été conçu dans le cadre de cette thèse. Il est constitué d'une cuve transparente en polyméthacrylate de méthyle (PMMA ou Plexiglass®) d'une épaisseur de 9 mm permettant une bonne solidité tout en conservant une transparence suffisante pour l'observation des écoulements. Les pales sont rectangulaires et en acier inoxydable, soutenues par un pas de vis ancré dans un arbre également en acier inoxydable relié au moteur (Figure 14). Le moteur, équipé d'un réducteur, peut assurer une gamme de vitesses comprises entre 19 et 191 tr.min⁻¹. Un couplemètre relié à l'arbre en sortie du moteur permet de connaitre le couple mécanique déployé pour agiter la poudre. La valeur maximale tolérée est de 20 N.m et la précision est de l'ordre de 0,1 N.m. Deux bagues à roulements permettent un meilleur maintien de l'arbre qui est relativement lourd.







Figure 14 : Mélangeur prototype avec sa cuve et ses pales (a) et son moteur équipé d'un couplemètre (b), et plan du mélangeur en vue de face (c).

La cuve est délimitée latéralement par deux flasques, avec un roulement étanche en leur centre pouvant glisser le long de l'arbre. Ces roulements permettent aux flasques de ne pas être entrainées par l'arbre en rotation. Un joint torique est disposé autour de chacune des flasques pour assurer l'étanchéité de l'appareil. L'étanchéité est vérifiée aussi bien pour les poudres fines utilisées comme le lactose, que pour les liquides peu visqueux comme de l'eau. L'étanchéité à l'eau permet d'effectuer des expériences avec les fluides, ce qui n'est pas l'objectif de cette thèse, mais aussi de nettoyer la cuve lorsque des poudres cohésives adhérentes aux parois ont été employées. Pour déplacer les flasques le long de l'arbre à la main, de la graisse doit être appliquée au niveau des joints toriques et de la paroi car les frottements joint-cuve sont importants.

La table où repose le prototype est basculante et peut être inclinée. Cela permet d'effectuer des études de mélange dans différentes configurations de cuves, dans le cadre de ces travaux, nous nous limiterons aux études de l'agitation à l'horizontale. Un perçage dans la flasque droite a été nécessaire pour faciliter sa sortie car l'étanchéité va créer un effet de dépression lorsque la flasque doit être tirée vers l'extérieur de la cuve. Une amélioration a été ajoutée pour permettre d'effectuer des prélèvements de poudre lors des expériences avec du traceur: une trappe découpée directement au milieu de la cuve, de 20 cm de long, munie de joints pour préserver une bonne étanchéité.

Une interface Labview[®] permet de contrôler la vitesse du moteur et d'effectuer l'acquisition du couple au cours du temps. La fréquence de l'acquisition peut être choisie entre 0,25 et 20 Hz et un système de sécurité permet d'arrêter le moteur lorsque le couple mesuré dépasse une valeur seuil, ici choisie à 5 N.m. La vitesse imposée et le couple mesuré au cours du temps peuvent être enregistrés dans un tableur pour faciliter la traçabilité et l'exploitation des résultats.

4.2. Protocole de mesures rhéologiques

Dans le cadre de cette thèse, l'étude de la puissance consommée dans le mélangeur cylindrique est effectuée avec une poudre à écoulement libre, la semoule, et une poudre cohésive, le lactose. La puissance mécanique consommée est calculée à partir du couple à vide T_0 [N.m], du couple en charge T_f [N.m] et de la vitesse de rotation des pales ω [rad.s⁻¹] lorsque le mélangeur est rempli de poudre (éq. 10).

$$P = \omega. \left(T_f - T_0\right) \qquad \qquad \text{éq. 10}$$

Chaque série d'expériences est constituée de mesures avec une poudre donnée, pour 6 vitesses de rotation des pales différentes : 3, 6, 9, 12, 15 et 18 rad.s⁻¹ (soit de 27 à 172 tr.min⁻¹). Cela permet de balayer la plage de vitesse accessible avec le mélangeur tout en ayant des vitesses linéaires en bout de pales dans la même gamme que celles utilisées dans le mélangeur planétaire Triaxe[®], la vitesse évoluant de 0,36 à 2,16 m.s⁻¹. L'impact du taux de remplissage est aussi étudié, avec trois valeurs différentes: un taux de remplissage faible à 42%, un taux intermédiaire à 63% et un taux

élevé à 83%. Ces taux *f* sont calculés à partir des masses volumiques vrac des poudres utilisées ρ_b [kg.m⁻³], de la masse de poudre versée m_p [kg] et du volume du mélangeur V_{tank} [m³] (éq. 11).

$$f = \frac{m_p}{\rho_b V_{tank}}$$
 éq. 11

Ainsi, la première étape d'une série d'expériences consiste à préchauffer les pièces mécaniques, avec une vitesse de rotation de 8 rad.s⁻¹ pendant au moins 5 min afin de stabiliser le couple à vide. Une fois que le couple est stable, l'ensemble des couples à vide pour les vitesses étudiées est mesuré, avec un minimum de 5 min d'agitation pour atteindre un couple stable à une vitesse donnée, et avec un temps maximum de 10 min. Ensuite le mélangeur est rempli à 42 % et le couple en charge est mesuré avec la même procédure que le couple à vide pour les 6 vitesses étudiées. Puis le mélangeur est rempli jusqu'à 63 %, et enfin jusqu'à 83 %. Ainsi, pour une série d'expérience avec une poudre, 18 couples à vide et 18 couples en charge sont mesurés.

Dans tout les cas, la mesure est effectuée avec une distance de 20 cm entre chaque paroi latérale, disposées symétriquement par rapport aux pales. Cette distance correspond à une transposition géométrique basée sur la conservation du rapport entre la largeur des pales et la distance entre le centre des pales et la paroi, aussi bien pour le mélangeur Triaxe[®] que pour le mélangeur prototype.

4.3. Préparation d'un traceur de la semoule et du lactose fin

La technique employée pour tracer la semoule est l'imprégnation de celle-ci dans une solution iodée (Marikh, 2003). En effet, l'iode va se fixer sur la semoule, et forme un complexe violacé avec l'amidon. L'iode doit être dissoute dans de l'éthanol car l'utilisation d'eau comme solvant va créer une forte agglomération des grains de semoule, ce qui augmente nettement leur taille. Ainsi une solution de 4 g de diiode dissout dans 150 g d'éthanol de lavage à 96% permet de colorer 350 g de poudre. Pour avoir une coloration assez forte, les billes de diiode sont broyées au pilon pour accélérer leur solubilité dans l'éthanol. Le séchage est effectué avec un sèche-cheveux pendant que le mélange semoule-solution iodée est malaxé manuellement à la spatule pour répartir uniformément la coloration sur tous les grains. Au bout d'une heure environ, la poudre est laissée une journée à l'air libre dans un cristallisoir relativement large pour terminer le séchage. La taille de la semoule colorée est très proche de la semoule pure (Figure 15). La taille moyenne est légèrement plus grande et les particules fines de la semoule, inférieures à 100 μ m, ne sont plus présentes.



Figure 15 : Distributions granulométriques de la semoule et de la semoule iodée.

Des particules de talc ont été utilisées en tant que traceur du lactose fin. En effet le talc et le lactose fin ont des tailles assez proches et ne forment pas de mélanges ordonnés (Figure 16). De plus, des mesures au rhéomètre FT4 montrent que leur aptitude à l'écoulement par une pale est similaire, avec un FRI proche de 2,1 pour les deux poudres (Tableau 3).



Figure 16 : Image en microscopie MEB d'un mélange de lactose fin (particules sombres) et de talc (particules blanches).

4.4. Protocole de mélange des poudres

L'objectif de ces expériences est de déterminer comment la poudre est brassée dans le mélangeur prototype avec l'aide d'un modèle stochastique, représentant le mélangeur en plusieurs zones distinctes échangeant de la matière entre elles. Cela est effectué avec les traceurs décrits précédemment, dont les propriétés sont les plus proches possible de la poudre étudiée, qu'il s'agisse de la semoule ou du lactose fin. Au préalable il faut définir les zones d'intérêts dans le mélangeur qui peuvent être prélevées après une étape d'agitation et qui concordent avec le modèle. Dans le cadre de ce travail, le mélangeur sera utilisé à l'horizontale pour mesurer l'influence du mouvement de rotation

des pales dont l'axe est horizontal. Les pales sont disposées près d'une paroi pour limiter le nombre de zones étudiées, et elles sont utilisées sans inclinaison avec un taux de remplissage élevé de 83 %. La figure 17 décrit le découpage du mélangeur en 6 zones de volume égal. Les zones 1-4 et les zones 2-5 sont séparées par le plan horizontal passant par le centre de l'arbre et les zones 1-2-3 et 4-5-6 sont séparées par le plan vertical séparant le volume de la cuve en deux. La répartition de la poudre près de la surface n'est pas parfaitement plane, donc lorsque de la poudre est située au-dessus de la zone 1 ou de la zone 4, elle sera tout de même prélevée et considéré comme appartenant à ces zones.



Figure 17 : Disposition des parois et des zones de prélèvement dans le mélangeur polyvalent.

Plusieurs temps de mélange sont étudiés pour plusieurs positions initiales du traceur. Les temps ont été choisis après une première observation d'agitation avec du traceur, pour s'assurer que le temps n'est ni trop long, ni trop court pour chaque point. Ainsi pour une cinétique de mélange, les temps choisis sont 4, 10, 60 et 300 s, et le traceur sera placé à trois endroits différents clefs: en zone 3 qui constitue une zone quasi-morte avec peu de transferts de matière, en zone 4 qui est en surface avec un transfert rapide de la matière et en zone 1 qui est une zone intermédiaire, avec une partie qui s'écoule plus rapidement. Les mélanges seront notés S_{x-y} pour les mélanges semoule-semoule iodée où le traceur est placé en zone x et pour un temps de mélange de y secondes, et L_{x-y} pour les mélanges lactose fin-talc.

Le prélèvement des zones après une opération d'agitation est réalisé en plusieurs étapes, pour s'assurer qu'il n'y a pas d'échange de matière entre les zones. L'outil utilisé est un système d'aspiration avec un récipient permettant de recueillir la poudre dans un erlenmeyer en verre (Figure 18). Cela est possible grâce à la disposition d'un filtre pour éviter la perte de matière à travers le système d'aspiration. Un tuyau souple et un embout rigide coudé permettent de prélever la poudre dans toutes les zones, et notamment la zone 5 située en dessous des pales et difficile d'accès.



Figure 18 : Système de prélèvement par aspiration des poudres.

D'abord deux séparateurs, des quarts de disque rigides en plastique avec une épaisseur de 2 mm, sont introduits dans la poudre pour séparer les deux zones en surface (zones 1 et 4), au-dessus de l'arbre d'agitation. Puis chaque zone peut être retirée par aspiration, sans se contaminer, mais avec précaution en veillant à s'arrêter à la limite du plan horizontal séparant l'arbre en deux à l'aide de marqueurs sur les séparateurs. Ensuite les séparateurs sont pivotés pour isoler les zones 2 et 5. La zone 2 peut être prélevée facilement (Figure 19), et la zone 5 est prélevée après avoir retiré les séparateurs. Il reste alors à prélever les deux dernières zones (zones 3 et 6), après les avoir séparées avec les quarts de disque.



Figure 19 : Echantillonnage de la semoule dans les zones 1, 2 et 4 du mélangeur prototype.

4.5. Echantillonnage et analyse des mélanges semoule-semoule iodée

Pour déterminer la teneur en semoule iodée des mélanges semoule-semoule iodée, la technique d'analyse choisie est l'analyse d'image. Avec l'utilisation de semoule colorée, la résolution d'un simple appareil photo n'est pas suffisante car chaque particule à une taille trop proche de celle des pixels. Ainsi, l'analyse d'image doit être effectuée à partir de photographies réalisées au microscope optique, avec un grossissement x50. L'éclairage et le nivellement à la surface du lit observé est suffisamment uniforme avec ce grossissement. L'échantillonnage d'une zone de poudre est constitué, après mélange au mélangeur Turbula[®], d'un flacon de 20 g, disposé dans une coupelle circulaire de 19 cm de diamètre. La taille d'une image, pour un grossissement x50 avec l'objectif utilisé, est de 6,9 mm x 5,2 mm. A cette échelle d'observation contenant moins de 450 particules, il est impossible d'avoir une qualité de mélange suffisamment bonne pour estimer la proportion en traceur dans toute la coupelle. Donc 8 photographies par coupelle seront prises aléatoirement, à l'aide d'un quadrillage millimétré muni d'un repère cartésien orthonormé sur le socle du microscope, et d'une génération aléatoire de coordonnées via le logiciel Matlab[®]. La figure 20 récapitule l'ensemble des échantillonnages réalisés pour analyser un mélange effectué avec le mélangeur polyvalent.



Figure 20 : Etapes d'échantillonnage des mélanges semoule-semoule iodée.

Chaque image est analysée avec un programme Matlab[®] permettant de compter le nombre de pixels noirs et de le rapporter au nombre de pixels total de l'image. Les particules colorées et non colorées n'étant respectivement pas parfaitement noires et blanches, un seuillage a été effectué (Figure 21).

Les images au format JPEG, converties en images en noir et blanc, sont extraites par le logiciel Matlab[®] sous forme de matrice 1200x1600 où chaque coefficient a une valeur comprise entre 0 (noir) et 255 (blanc). Ainsi il a été choisi d'effectuer un seuillage en considérant tous les coefficients en dessous de 150 nuls et tous ceux au-dessus égaux à 255. Cette valeur de 150 a été choisie à partir des observations des histogrammes des images, représentant la distribution des niveaux de gris, car c'est la valeur où le pic caractéristique des particules sombres est estompé. Il est ainsi possible de déterminer la proportion en pixels noirs pour chaque image et d'en déduire la proportion moyenne dans un flacon de 20 g à partir des 8 images.



Figure 21 : Analyse d'une image de mélange semoule-semoule iodée, prise au microscope optique en x50 (a), conversion en noir et blanc (b), histogramme des niveaux de gris de cette image (c) et image après seuillage (d).

Une courbe de calibration a été effectuée à partir de 16 flacons de 20 g dont la composition massique en traceur est connue. Les proportions choisies varient entre 0 et 100% avec quatre teneurs régulièrement réparties entre 10 et 90% (26, 42, 58, 74) et plus de point pour les faibles et les fortes teneurs entre 0 et 10% et entre 90 et 100% (0, 2, 4, 6, 8, 10, 90, 92, 94, 96, 98, 100). Si l'utilisation d'une seule courbe de régression sur l'ensemble des points ne semble pas assez précise, il est possible d'effectuer une courbe de calibration associée à chaque domaine (Figure 22). Cette courbe est une moyenne effectuée à partir de deux lots de traceurs préparés séparément. Pour les proportions faibles et fortes, une régression linéaire suffit, mais pour les teneurs intermédiaires l'évolution entre la proportion de pixels noirs et la proportion de traceur est plutôt polynômiale d'ordre 2. Pour l'ensemble des courbes, l'écart entre les teneurs expérimentales et calculées à partir de la régression est inférieur à 4%, l'erreur semble être la plus importante au niveau des mélanges à teneur intermédiaire. La discontinuité de cette courbe de calibration est probablement due à la présence de fines particules de semoule qui vont s'adhérer à la surface des grains de semoule iodée, et à la légère différence de taille entre les particules de semoule et de semoule colorée.



Figure 22 : Courbes de calibration de mélanges semoule-semoule iodée pour l'analyse d'image, proportion en semoule iodée en fonction de la proportion en pixels noirs.

Ce flacon de 20 g de poudre est suffisant pour déterminer la teneur dans toute une zone du mélangeur après un mélange de celle-ci au mélangeur Turbula[®] T2F pendant 3 min à 46 tr.min⁻¹. Des expériences de répétabilité en prenant 2 flacons de 20 g on permis de vérifier que l'homogénéité des zones analysées après mélange au Turbula[®] est suffisante à cette échelle pour une précision au pourcent près (Tableau 4 et 5).

Zone	1	2	3	4	5	6
Flacon 1	31,4	12,8	6,3	19,0	18,9	19,5
Flacon 2	31,4	13,0	6,4	19,2	19,4	19,0

Tableau 4 : Teneur massique [%] en semoule iodée mesurée dans deux échantillons de 20 g, d'un mélangeS1-300.

Tableau 5 : Teneur massique [%] en semoule iodée mesurée dans deux échantillons de 20 g, d'un mélange S_{1-60}

Zone	1	2	3	4	5	6
Flacon 1	28,5	14,7	6,8	19,8	20,1	20,5
Flacon 2	27,8	14,5	8,1	19,7	20,2	20,5

4.6. Echantillonnage et analyse des mélanges lactose fin-talc

Grâce à la composition minérale du talc et à la composition organique du lactose fin, il est possible de déterminer la proportion en talc dans un mélange talc-lactose fin par sublimation du lactose. En effet, les analyses TG-ATD montrent que le talc perd environ 1% de sa masse à 650°C alors que le lactose fin y perd la totalité de sa masse (Figure 23). On peut constater que le lactose utilisé est bien monohydrate avec une perte de masse d'environ 5% entre 100°C et 150°C, correspondant à l'eau liée.





Figure 23 : Mesures TG-ATD sous air du talc (a) et du lactose fin (b).

Il est donc possible de déterminer après chauffage à 650°C la proportion en talc du mélange initial x_t [%] d'un mélange à partir de la masse finale de poudre m_f et de la masse initiale de poudre m_i dans un creuset (éq. 12).

$$x_t = 101 \ \frac{m_f}{m_i}$$
 éq. 12

Les creusets sont remplis entre 1 et 5 g de poudre et des tests de précision de la mesure ont été effectués, avec une chauffe à 650°C dans un four sous air pendant 1 h. Selon ce protocole, il est possible de déterminer la teneur en talc avec une précision inférieure à 1% quelle que soit la teneur réelle, ce qui est très correct pour effectuer les mesures de mélanges à l'échelle du mélangeur convectif polyvalent. Quelques valeurs de mesures pour différentes teneurs sont regroupées dans le Tableau 6.

Tableau 6 : Vérification de la fiabilité de la mesure de teneur en talc par décomposition thermique.

x _t réel (%)	1,73	3,35	50,00	97,00	99,84
x _t mesuré (%)	1,48	3,37	49,66	96,82	99,70

Afin de mesurer la teneur totale en talc dans chaque zone du mélangeur, elles sont préalablement homogénéisées au mélangeur Turbula[®] T2F pendant 5 min, à 96 tr.min⁻¹ pour s'assurer que le mélange n'est pas perturbé par la présence d'agglomérats cohésifs. Puis le mélange est déposé et étalé sur un plateau rectangulaire de taille 25x31 cm et 12 échantillons de 1 à 5 g sont

prélevés aléatoirement avec une spatule grâce à une génération aléatoire de coordonnées cartésiennes avec un tableur. Ces 12 échantillons sont placés directement dans les creusets avant d'être pesés puis chauffés au four. Après le cycle de chauffe à 650°C, les creusets sont de nouveau pesés. Connaissant les masses des creusets, m_i et m_f sont calculées et la proportion en talc du mélange initial dans chaque creuset est déterminée (éq. 12). Deux essais de mélange connus ont été effectués pour valider que cette méthode de mélange et d'échantillonnage permet de connaître la teneur en talc de toute une zone (Tableau 7). Le talc a été déposé au fond du récipient du mélangeur Turbula[®] et recouvert de lactose fin, puis la procédure de mélange et d'échantillonnage décrite précédemment a été effectuée. Après analyse au four, les teneurs moyennes ont été calculées et elles sont assez proches des teneurs réelles.

N° creuset	Mélange avec teneur de 16,67 %	Mélange avec teneur de 5,00 %
1	13,19	4,56
2	17,29	4,89
3	16,84	4,05
4	13,99	5,05
5	12,64	4,52
6	22,88	5,53
7	29,54	5,25
8	11,46	5,10
9	14,86	4,89
10	17,28	4,89
11	16,28	4,92
12	14,02	4,43
Moyenne calculée	16,69	4,84

 Tableau 7 : Fractions massiques en talc [%] mesurées par dégradation thermique de deux mélanges connus pour une série de 12 échantillons.

Conclusion

L'étude du mélangeur Triaxe[®] planétaire à l'échelle pilote, est effectuée à partir de calculs de puissances mécaniques consommées et de vitesses en bout de pales sur des poudres à écoulement libre (semoule) et cohésives (lactose, lactose fin, talc, sable broyé), ainsi que sur des mélanges entre ces deux types de poudres. Un mélangeur prototype, conçu dans notre laboratoire, permet d'effectuer des études rhéologiques plus simples mais aussi d'observer les écoulements, ce qui est impossible

avec le mélangeur Triaxe[®]. L'écoulement de la semoule et du lactose fin sont aussi étudiés par des opérations de mélange avec des traceurs, comme de la semoule colorée à l'iode et du talc respectivement. Ces traceurs ont des propriétés rhéologiques proches des poudres pures et permettent donc d'effectuer réellement des mesures d'agitation d'une poudre, et non de mélange de deux poudres ayant des propriétés différentes. Ainsi les mélanges à base de semoule et de semoule iodée sont analysés par analyse d'image, et les mélanges à base de lactose fin et de talc peuvent être analysés par dégradation thermique.

Références

- André, C., Demeyre, J-F., Gatumel, C., Berthiaux, H., Delaplace, G., 2012. Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders : mixing time and power consumption. Chemical Engineering Journal, 198-199, 371-378.
- Bourson, Y., 2009. Mouture du blé tendre et techniques d'obtention de la farine. Techniques de l'ingénieur.
- Boutonnier, J-L., 2016. Glucides et alimentation : aspects technologiques. Techniques de l'ingénieur.
- Boutonnier, J-L., 2014. Glucides et alimentation : aspects physicochimiques. Techniques de l'ingénieur.
- Delaplace, G., Guerin, R., Leuliet, J.C., 2005. Dimensional analysis for planetary mixer : modified power and Reynolds numbers. AIChE Journal, 51, 3094-3100.
- Demeyre, J-F., 2007. Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe®. Thèse de doctorat, INPT, Toulouse, France.
- Freeman, R., 2007. Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders A comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell. Powder Technology, 174, 25-33.
- Hare, C., Zafar, U., Ghadiri, M., Freeman, T., Clayton, J., Murtagh, M.J., 2015. Analysis of the dynamics of the FT4 powder rheometer. Powder Technology, 285, 123-127.
- Marikh, K., 2003. Mélange des poudres en continu: dynamique et modélisation. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.
- Martin, F., 2008. Nanotales synthétiques : des nanoparticules argileuses à l'assaut de l'industrie. Techniques de l'ingénieur.
- Ribet, J., Poret, K., Arseguel, D., Chulia, D., Rodriguez, F., 2003. Talc functionality as lubricant : texture, mean diameter and specific surface area influence. Drug Development and IndustrialPharmacy, 29, 1127-1135.
- Siret, C., 2014. Structure des aliments. Techniques de l'ingénieur.

Structure des chapitres III et IV

Ces deux chapitres présentent les études expérimentales et les modèles réalisés dans cette thèse. Il s'agit de cinq travaux rédigés sous la forme d'articles à différents stades du processus de publication. Toutes ces études sont des étapes mobilisant différentes façons de travailler avec un mélangeur, et sont représentées en tant que sous-chapitres des chapitres III et IV. Ce sont des ensembles qui peuvent être lus et compris indépendamment. Néanmoins les transitions présentes entre chaque article explicitent les liens existants entre-eux, ainsi que les motivations pour les réaliser. Les deux articles présents dans le chapitre III étudient le mélangeur convectif planétaire Triaxe®. Quand aux trois articles constituants le chapitre IV, ils concernent le mélangeur convectif prototype conçu au cours de cette thèse.

Plusieurs approches scientifiques sont employées pour mesurer ou modéliser l'écoulement des poudres dans ces deux mélangeurs convectifs. La rhéologie, par le biais de mesures de couples, permet de déterminer les puissances mécaniques nécessaires à l'agitation des poudres par des pales. L'analyse dimensionnelle, avec les calculs de nombres de puissances et de Froude, permet d'extrapoler entre différentes échelles les résultats de rhéologie obtenus. Les techniques de caractérisation des poudres permettent de fournir des caractéristiques propres aux poudres comme une cohésion ou un indice de Carr. Ces caractéristiques ont l'avantage d'être mesurables avec des protocoles et des appareils standards présents dans de nombreux laboratoires, tout en utilisant de faibles quantités de matière. L'observation et la mesure des flux de poudres dans un mélangeur permettent d'identifier des régimes et des mécanismes d'écoulements. Les modèles stochastiques de l'écoulement des poudres dans un mélangeur, effectués avec des chaînes de Markov, découlent directement des mécanismes d'écoulements identifiés dans le mélangeur. Le tableau 1 résume l'ensemble des approches scientifiques utilisées afin d'appréhender les écoulements présents dans les deux mélangeurs convectifs, Triaxe® et prototype.

Sous chapitre	Mélangeur	Poudres	Approche scientifique
III.1	Triaxe®	Semoule, lactose, lactose fin, talc, sable, mélanges semoule- lactose, mélanges semoule- lactose fin	Rhéologie et nombres sans dimensions
III.2	<i>Triaxe</i> [®]	Semoule, lactose, lactose fin, talc, sable, mélanges semoule- lactose, mélanges semoule- lactose fin	Rhéologie et caractérisation des poudres
IV.1	Prototype	Semoule, lactose	Régimes d'écoulements, rhéologie et nombres sans dimensions
IV.2	Prototype	Semoule-semoule colorée, lactose fin-talc	Mécanismes d'écoulements
IV.3	Prototype	Semoule-semoule colorée, lactose fin-talc	Modélisation par chaînes de Markov

Tableau 1 : Synthèse des mélangeurs, des poudres et des approches scientifiques employées dans lesarticles des chapitres III et IV.

Chapitre III : Etude expérimentale de la rhéologie des poudres en mélangeur convectif planétaire Triaxe[®]

Ce chapitre est constitué de deux articles, ayant pour objet d'étude principal le mélangeur Triaxe[®]. L'approche choisie pour ces deux études est essentiellement expérimentale, avec des mesures de rhéologie effectuées directement dans le mélangeur Triaxe[®] mais aussi à l'échelle laboratoire.

Le premier article, intitulé « Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender », concerne l'étude rhéologique dans le mélangeur Triaxe[®] avec diverses poudres à écoulement libre et cohésives. Ces poudres sont parfois constituées d'un mélange d'une poudre à écoulement libre avec une poudre cohésive, afin d'obtenir un panel de poudres avec des cohésions plus ou moins fortes. L'approche est basée sur la mesure de puissances avec des couple-mètres et sur l'analyse dimensionnelle, permettant de lier cette puissance à différents paramètres : la vitesse d'agitation, la cohésion de la poudre, le taux de remplissage et la géométrie du mélangeur.

Résumé du Chapitre III.1

Rhéologie de poudres cohésives en mélangeur planétaire pilote

Des expériences d'agitation des poudres en mélangeur planétaire à pales ont été réalisées afin d'établir des corrélations basées sur des nombres sans dimensions. Différentes sortes de poudres ont été étudiées : à écoulement libre (semoule) et cohésives (lactose, talc et sable broyé). Des mélanges à base de poudre à écoulement libre et de poudre cohésive ont aussi été étudiés pour avoir un panel plus large de poudres de différentes propriétés. Il a été observé que le mouvement de giration joue un rôle important pour la consommation de puissance lors de l'agitation des poudres cohésives. La relation entre un nombre de puissance modifié ($N_{pM} = P/\rho_{b.}u_{ch}^{3.}d_{s}^{2}$) et un nombre de Froude modifié ($F_{rM} = u_{ch}^{2/}g.d_{s}$) utilisés dans des travaux précédents est adaptée, et dépend de la cohésion du milieu. Ces nombre sans dimensions sont construits à partir d'une vitesse caractéristique u_{ch} , une longueur caractéristique d_{s} , la masse volumique vrac de la poudre ρ_{b} et la puissance mécanique consommée P. Le taux de remplissage f est aussi pris en compte. Pour une poudre à écoulement libre, de cohésion plus faible que 0.3 kPa, $N_{pM} = a(f.)F_{rM}^{-1}$, alors que pour des poudres plus cohésives, de cohésion supérieure à 0.6 kPa la corrélation $N_{pM} = 6.F_{rM}^{-b}$ est plus appropriée. Pour ces deux équations, a et bsont des paramètres dépendants de la poudre. Leur dépendance linéaire avec le taux de remplissage a été établi.

III.1. Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender

Léonard Legoix, Cendrine Gatumel, Mathieu Milhé, Henri Berthiaux

Université de Toulouse, Centre RAPSODEE, CNRS UMR 5302, Ecole des Mines d'Albi, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

Publication reference: Powder Technology, 2017, vol. 305, pp.609-619. doi.org/10.1016/j.powtec.2016.09.021

Article info

Abstract

Published manuscript in Powder Technology

Keywords

Powder mixing Rheology of mixtures Power number Froude number with the objective of establishing correlations based on dimensionless numbers. Powders of different kind have been studied: free flowing (semolina) and cohesive (lactose, talc and milled sand). Mixtures of free flowing and cohesive powders have also been studied to get a more complete range of powders of different properties. It has been observed that the gyration motion plays an important role in the power consumption of cohesive powders. The relation between a modified power number $(N_{pM} = P/\rho_b u_{ch}^{3} d_s^{2})$ and a modified Froude number $(Fr_M = u_{ch}^2/gd_s)$ used in several previous publications is adapted and shown to depend on powder cohesion. These dimensionless numbers are built on the basis of a characteristic speed u_{ch} , a characteristic length d_s , the bulk density ρ_b and the power consumption P. The filling ratio f is also taken in account. For a free flowing powder, of cohesion smaller than 0.3 kPa, $N_{pM} = a(f) \cdot Fr_M^{-1}$ while for a more cohesive powder, of cohesion higher than 0.6 kPa the correlation $N_{pM} = 6. Fr_M^{b(f)}$ is more appropriate. For both equations, a and b are powder-dependent parameters. Their linear dependency on the filling ratio of the blender has been established.

Powder agitation experiments in a bladed planetary mixer have been performed

1. Introduction

Powder mixing is an important unit operation for the manufacture of several products in many industries, like tablets in the pharmaceutical industry or fuel pellets in the nuclear industry. The goal is to blend different powders having intrinsic properties that may not work together. In the pharmaceutical industry for example, an active pharmaceutical ingredient (API) is mixed with excipients to enable the drug to be manufactured properly and be handled by patients. The challenge

in powder mixing is to provide homogeneous mixtures at the wanted scale, knowing that powders can segregate during and after the operation.

Powders can be divided into two groups, according to their flow behavior: free flowing or cohesive. The first group represents powders that can flow easily under gravity, the grains being able to move almost individually. At the opposite, cohesive powders can be defined as particulate systems for which attraction forces are stronger than gravity. These forces can be surface tension of a free interstitial liquid, electrical double layers, Van Der Waals forces and local joining of particles due to compaction. Concerning dry powders, Van Der Waals forces are the most important cause of cohesion, typically when the particle size is smaller than $100 \ \mu m$ [1]. There is an increasing interest in manufacturing fine powders. In particular, size reduction is known to enhance some properties like bioavailability for APIs, since poorly aqueous soluble drugs are more readily bioavailable when administrated in a form of larger surface area [2]. However fine powders are also known for their reduced flowability which is the source of many issues in industries like waste and maintenance problems [3], or increased risks of dust explosions [4]. If cohesive powders are not subjected to problems of demixing by segregation like free flowing powders, understanding and modeling their flow is still a scientific issue. Previous studies evidenced that these powders are characterized by a history-dependent flow, a strong effect of dilatation and a non-periodic avalanche frequency of variable size [5]. Effects of cohesion were not well understood in relation to powder mixing during the 1960's [6]. While the use of cohesive powder is wider nowadays, this still holds true, even in simple devices like shear cells [7].

For powder blending, different kinds of technologies are available depending on the amount of mixture needed and on powder's properties. Continuous mixing will be preferred for high powder production but batch mixing is still used because of its reliability to monitor the manufacturing step by step. To mix cohesive powders, blenders designed to apply high shear on the mixture are advised since they can break agglomerates of particles, but the stress should not be too significant because of the risk of particle breakage. To mix these powders, convective blenders incorporating an impeller motion inside the tank seem more appropriate than tumbling blenders. Planetary blenders involve two movements of the impeller to be sure that all the powder in the tank is stirred. In the present work, we study the capabilities of a batch convective planetary blender to stir cohesive powders.

During mixing operations, power consumption is an important parameter to optimize. Furthermore recording power consumption is a way to understand mechanisms inside the blender's tank. This has been first studied during the early 1960's in concrete manufacturing [8]. For instance, during the mixing of powders and liquids, the torque measurement provides enough information to decide whether the operation should be stopped to get the wanted product [9]. Bagster and Bridgewater investigated the force needed to move dry particles with a blade at lab scale [10], using dimensional analysis [11]. Several studies provide dimensionless correlations for scale up to foresee power consumption in powder mixing at industrial scale with fewer experiments (Table 1). Most of them involve a power number and a Froude number, representing dimensionless power and agitation speed respectively.

Blender type	Dimensionless correlation	Powders studied	Reference
Vertical stirrer	$N_p = a \cdot N_M^{-1} + b$	sand, alumina, hematite, glass beads,	[12]
		millet, polystyrene	
Nautamix	$N_p = k \left(\frac{N_v}{N_a} \right)^m \left(\frac{L}{D_v} \right)^n$		[13]
Horizontal drum	$N_p = a.F_r^{-1} + b$	sand, alumina, glass, PVC, limestone	[14]
High shear	$N_p = a.F_r^{1/2} + b$	glass spheres, sand	[15]
Triaxe®	$N_{pM} = a.F_{rM}^b$	couscous, semolina, lactose	[16], [17]
Helical double	$N_p = K_{pe} \cdot N_{ce}^{-1.03}$	icing sugar, corn starch	[18]
ribbon			

Table 1 : Dimensionless correlations on powder mixers reported in the existing literature

In Table 1, most studies have been carried out using free flowing powders ([12], [13], [14], [15] and [16]) while dry cohesive powders have only been investigated in two published works ([17] and [18]). The first one determined coefficients in the correlations obtained with two free flowing powders and a cohesive powder. It was suggested, as a perspective, to link these coefficients with the rheological properties of the powders. The second one used only food cohesive powders and tried to link power consumption with cohesion through a dimensionless cohesion number in a continuous blender.

In this work and as a first approach, we study power consumption to highlight the different behaviors of cohesive and free-flowing powders in a planetary blender. Then, with the help of dimensional analysis, we will link together the modified power number, the modified Froude number, the powder cohesion and the blender's filling ratio. This work aims to contribute to the understanding of the influence of cohesion in powder stirring. It is a first step towards the establishment of a model of powder flow in planetary blenders.

2. Materials and methods

2.1. Powder characterization

Five powders were studied: semolina (Le Renard), lactose (Granulac140), fine lactose (Granulac230), talc (Luz00) and sand (Société Nouvelle du Littoral). Semolina is the only free flowing powder, the other four being cohesive. The sand used here is not free flowing because it has been crushed. Two kinds of mixtures made of free flowing and cohesive powders are also studied to complete the panel of powder properties, the composition of which can be appreciated in Table 2.

These powders were chosen for their different properties: particle size, shape and chemical composition. Semolina, lactose and fine lactose are organic powders; talc and sand are mineral powders. Each experiment was carried out with fresh powders, taken out of their sealed bags, especially for the organic ones, which may degrade quickly. These relatively complex powders were considered instead of classical model powders like glass beads, as this work aims to understand rheology with a process viewpoint to be applied directly in industries. Semolina and lactose are involved in agro food industry, lactose in pharmaceutical industry. Talc is used in a very wide range of domains: pharmaceutical, agro food, construction, cosmetic... and sand is mainly used in construction.

The shapes of semolina, lactose, fine lactose and sand particles are polygonal while talc is made of platelets (Figure 1). SEM pictures also show that each powder is polydisperse in particle size.

Table 2: Physical characteristics of the powders studied: mean particle size as obtained by LASER diffraction, bulk densities measured by a volumenometer Erweka®, true density measured by a He pycnometer, cohesion measured by a FT4 rheometer. Available properties are mentioned for the mixtures as well as their compositions

Powder	d ₅₀ (µm)	$\rho_p (kg.m^{-3})$	$\rho_b (kg.m^{-3})$	$\rho_t (kg.m^{-3})$	Carr Index	Cohesion			
					(%)	(kPa)			
Properties of Pure Powders									
Semolina	312	1463	679	720	5.8	0.244			
						±0.098			
Lactose	61	1533	661	795	16.9	0.745			
						±0.116			
Fine	26	1539	495	638	22.5	1.115			
lactose						±0.133			
Talc	16	2772	501	848	40.9	0.535			
						±0.070			
Sand	33	2643	887	1222	27.4	0.593			
						±0.039			
		<u>Properties of</u>	Powder Mixtu	ures by wt%:					
	<u>M1 (La</u>	<u>ctose : Semolir</u>	na) and M2 (Fi	ine lactose : Se	emolina)				
M1 (10:90)	N.A	N.A	724	792	8.6	0.17			
M1 (20:80)	N.A	N.A	761	840	9.4	0.17			
M1 (30:70)	N.A	N.A	793	901	12.0	0.24			
M1 (40:60)	N.A	N.A	817	935	12.6	0.36			
M1 (50:50)	N.A	N.A	781	946	17.4	0.50			
M1 (60:40)	N.A	N.A	761	929	18.1	0.65			
M1 (70:30)	N.A	N.A	744	900	17.3	0.70			
M1 (80:20)	N.A	N.A	695	864	19.6	0.78			
M1 (90:10)	N.A	N.A	685	824	16.9	0.75			
M2 (10:90)	N.A	N.A	704	766	8.1	0.16			
M2 (20:80)	N.A	N.A	706	816	13.5	0.17			
M2 (30:70)	N.A	N.A	698	854	18.2	0.34			
M2 (40:60)	N.A	N.A	681	859	20.7	0.57			
M2 (50:50)	N.A	N.A	655	833	21.4	0.94			
M2 (60:40)	N.A	N.A	599	785	23.6	1.23			
M2 (70:30)	N.A	N.A	582	741	21.5	1.29			
M2 (80:20)	N.A	N.A	517	697	25.9	1.16			
M2 (90:10)	N.A	N.A	482	660	26.9	1.20			



Figure 1: SEM pictures of semolina (top left), lactose (top right), fine lactose (mid left), sand (mid right) and talc (bottom left)

The particle's median diameter d_{50} was measured with a LASER diffraction particle sizer Mastersizer3000 (Malvern) under an air pressure of 3.5 bar, the particle density ρ_p was measured using an Accumulator Pyc 1330 (Micromeritics) with the 10 cc cell. The bulk and tapped densities, ρ_b and ρ_t , were measured with a volumenometer (Erweka) with 110 g of powder, the tapped density being measured after 1000 taps, which is enough to be sure that the powder cannot be more packed by the apparatus since the volume stabilizes around 300 taps. Each characterization was made at least in duplicate, the mean values being given in Table 2 and Figure 2. Mixtures were prepared by adding the ingredients to a half liter transparent container, and further blend it with a spatula for at least one minute until the mixture appears homogenous. The mixture quality was good enough to have no influence on the density measurement, which is verified by the low standard deviation on the repeated tests.



Figure 2: Apparent densities measured for mixture 1 (left) and mixture 2 (right) as a function of composition Bulk and tapped densities allow calculation of the Carr Index (eq. 1), which is a characteristic of powder flowability [19].

$$CI = 100.\frac{\rho_t - \rho_b}{\rho_t} \qquad eq. 1$$

Table 2 and Figure 3 represent Carr Index values for single powders and mixtures. As reported by Leturia et al. [20], the typical scale of flowability used to classify powder flow behavior shows that powders of Carr Index between 5 and 15% are easy flowing, between 15 and 22% the behavior is intermediate, while when higher than 22%, it reveals a bad flowing powder. To ease the interpretations in this study, we will consider that for Carr Index below 15% the powder is free flowing and above 15% the powder is cohesive. Considering the data in Table 2, semolina is free flowing and lactose, fine lactose, talc and sand can be considered as cohesive. For mixture 1, if the lactose content is smaller than 50% the powder is free flowing, and when it is bigger the powder is cohesive (Figure 3). For mixture 2, powders are cohesive when the fine lactose content is bigger than 30%.

The FT4[®] rheometer by Freeman Technology is used as shear device, with its rotational shear cell (Figure 4). This apparatus imposes a normal stress to the powder bed while the shear stress is recorded. Cohesion is measured according to the standard protocol for the FT4 shear testing. The powder is poured into the cylindrical vessel, and its volume is fixed using the rotating part on the top of the vessel that can be seen in Figure 4. The powder is conditioned by a blade getting downward and upward through the testing cell.



Figure 3: Carr Indexes calculated for both mixtures

Yield locus are built as follows: (1) powder is pre-sheared at a normal pre-consolidation load (2) the sample is sheared under smaller consolidation values, increasing up to the pre-consolidation one, in order to measure the shear stress peaks characteristics of the powder bed rupture.





Figure 4: FT4 Freeman rheometer (left) and shear cell (right)

For a given pre-consolidation, the major principal stress σ_l and the unconfined yield strength σ_c [21] are determined graphically from the Yield Locus (Figure 5 (a)) and lead to build flow functions (Figure 5 (b)) that are needed for silo design, for example. Flow functions allow the description of the flowing behavior of powders whatever their consolidation state. They give the possibility to gather results obtained under different procedures [22]. The flow function's representative numerical value is the slope but as far as flow functions are often not straight-lines passing by the origin like in Figure 5 (b) (see [23]), the ratio *ffc* of σ_l and σ_c for given pre-consolidation states is widely used. That limits the interest of the method.



Figure 5: Examples of lactose Yield locus (a) and flow function (b)

As far as cohesion quantifies the interaction forces between particles, it should be considered as a key property that influences the way particles are flowing and insofar the flow pattern during agitation in a vessel. Cohesions derived from the Yield locus correspond to 2, 4, 8 and 16 kPa. Each measurement was repeated twice for three powders. As far as levels of consolidation expected for powders during a mixing operation are small, we chose to consider cohesion measurements obtained at 4 kPa (Table 2). It must be noted that experiments at 2 kPa are not reproducible for finer powders like talc and fine lactose.

2.2. Experimental set up and procedure

The Triaxe[®] is a four bladed mixer that operates thanks to a dual motion of rotation and gyration (Figure 6). It is designed so that the impeller system covers the whole volume of the blender. The four rectangular blades, made of stainless steel, are inclined at about 45°, the angle between each blade being 90°. The angle between the horizontal and the gyration axis is about 15°. The stainless steel spherical tank has a volume of 48 l and the distance between the vessel and the blades is about 1 mm. The powder is loaded by the top and drained from the bottom. More detailed information about this kind of mixer can be found in Demeyre's PhD thesis [24].



Figure 6: Triaxe blender (left) and schematic diagram (right)

Two torque-meters record the rotational and the gyrational torque. If ω is the angular speed (rad.s⁻¹) and *T* is the torque (N.m), the power *P* (W) needed to stir the powder load can be calculated as follows (eq. 2):

$$P = \omega_{gm} (T_{gf} - T_{g0}) + \omega_{rm} (T_{rf} - T_{r0})$$
 eq. 2

With subscripts "g" for gyration, "r" for rotation, "f" for filled tank, "0" for empty tank and "m" for motor.

Angular speeds are expressed as the speed of motors, using reduction ratios of the apparatus; the angular speeds of axis ω_{ga} and ω_{ra} can be calculated thanks to equations 3 and 4. Speeds of the axis reach about 20 revolutions per minute (rpm) and 100 rpm for gyration and rotation respectively.

$$\omega_{ga} = \frac{\omega_{gm}}{144.79} \qquad \qquad eq. \ 3$$

$$\omega_{ra} = \frac{\omega_{rm}}{34} + 0.59.\,\omega_{ga} \qquad \qquad \text{eq. 4}$$

Each pilot scale experiment is performed with 30 kg of powder, following the protocol: torque stabilization during 2 hours with ω_{gm} and ω_{rm} about 2000 rpm, measurement of mean torques with empty mixer (T_{g0} and T_{r0}), loading of the powder, stirring during 10 min with ω_{gm} and ω_{rm} about 2000 rpm to mix the powder enough in order to stabilize the torque, recording of mean torques with filled mixer (T_{gf} and T_{rf}), and finally tank emptying and cleaning.

Torque measurements correspond to combinations of speeds ω_{gm} and ω_{rm} ranging from 0 to 3000 rpm (0, 75, 150, 300, 600, 900, 1500, 2100 and 3000 rpm). This means that for each powder studied, 81 couples (ω_{gm} , ω_{rm}) have been carried out. Figure 7 describes the sequence of gyrational

speeds and rotational speeds used during experiments. First, the gyration is fixed and the rotation increases. When the rotation reaches its maximum value, the gyration speed is increased to the following value and the rotation starts again at its smaller value. It is important to notice that because of the dependence of the rotational angular speed of blades ω_{ra} on the gyrational angular speed of blades ω_{ga} (equation 4). Agitation angular speeds are expressed as angular speeds given by the motor ω_{gm} and ω_{rm} for a better understanding.



Figure 7 : Diagram showing the procedure followed for rotation and gyration changes during the experiments

The filling ratio f may be calculated using the bulk density ρ_b , the tank volume V_{tank} and the mass of powder poured m_p (eq. 5). The filling weight of 30 kg of each powder corresponds to f values in the range 0.70 - 1.25. For f values greater than 1, the powder was forcibly compacted into the blender.

$$f = \frac{m_p}{\rho_b.V_{tank}} \qquad \qquad \text{eq. 5}$$

Experiments with varying filling weights of a same powder were conducted in order to complete these runs. For this, three additional filling ratios were investigated for semolina and lactose: 0.42, 0.63 and 0.83 (Table 3).

		Semolina			Lactose			
Mass (kg)	13.7	20.5	27.1	30.0	13.3	20.0	26.3	30
Volume (L)	20	30	40	44	20	30	40	45
f	0.42	0.63	0.83	0.92	0.42	0.63	0.83	0.94

Table. 3: Lactose and semolina weights, volumes and filling ratios studied
A characteristic tip speed u_{ch} has been set up by Delaplace et al. [25] to combine gyrational and rotational speeds into a single value. It corresponds to the maximum linear tip blade velocity divided by π . Equations 6 and 7 can be used to calculate u_{ch} with: $d_s=0.112$ m the diameter of the spherical reducer of the blender and D=0.448 m the distance between two opposite blade tips. In both equations, angular speeds are written as Ω_{ga} and Ω_{ra} for gyration and rotation. The units should therefore be in revolutions per second.

$$\frac{\Omega_{ra.}d_s}{\Omega_{ga.}D} < 1 \rightarrow u_{ch} = \sqrt{\left(\Omega_{ga}^2 + \Omega_{ra}^2\right) \cdot \left(d_s^2 + D^2\right)}$$
eq. 6

$$\frac{\Omega_{ra}.d_s}{\Omega_{ga}.D} > 1 \rightarrow u_{ch} = \Omega_{ra}.D + \Omega_{ga}.d_s \qquad eq. 7$$

The impact of both rotational and gyrational speeds on u_{ch} can be appreciated on the 3-D graph in figure 8. It can be stated that rotational speed has a greater influence on the characteristic speed than the gyrational speed. The surface represented is almost planar except for the small values of the rotational speed and the highest ones of the gyrational speed, which are not in the expected range of operation of a planetary mixer. In addition, if a projection of these values on the (u_{ch} , Ω_{ra}) plane is made, the whole values are collapsing in a single line, mainly because d_s is much smaller than D.



Figure 8: Influence of both rotational and gyrational speeds on uch

Through the use of u_{ch} , a dimensionless correlation (eq. 10) [16] links a modified Froude number F_{rM} (eq. 8) and a modified power number N_{pM} (eq. 9) [25], where $g=9.81 \text{ m.s}^{-2}$.

$$F_{rM} = \frac{u_{ch}^2}{g.d_s}$$
eq. 8
$$N_{pM} = \frac{P}{\rho_b.u_{ch}^3.d_s^2}$$
eq. 9

$$N_{pM} = a. F_{rM}^b \qquad eq.10$$

To get a better understanding of the meanings of this correlation, the power can be expressed directly as a function of u_{ch} and the two coefficients *a* and *b* (eq. 11) from equations 8, 9 and 10.

$$P = (\rho_b d_s^{2-b} g^{-b}) a u_{ch}^{3+2b}$$
 eq.11

It has been previously reported that for a free flowing powder b = -1 [17]. In equation 11, it means that the power is a linear function of u_{ch} . If the powder is cohesive, b will be closer to -3/2, meaning that the power is not dependent on u_{ch} [17].

3. Results and discussion

3.1. Power consumption during Triaxe experiments

This part presents power consumption in the pilot blender for the five "pure" powders studied. The power measured depends on the flow inside the blender since it represents the forces exerted by the blades on the powder, which are more or less transmitted throughout the powder bed, thanks to avalanches, frictions or collisions between particles.

In Figure 9, the power for semolina is on average higher than the power for any of the four other powders. In addition, it is almost a linear function of the characteristic tip speed. Concerning cohesive powders, the power is obviously less sensitive to a blade speed increase, especially for lactose, talc and sand.



Figure 9: Influence of the nature of particulate system on the P vs u_{ch} charts for 30 kg of powder filling in the Triaxe[®] blender

On Figure 10, that shows power consumptions for cohesive powders in more detail, the global tendency is characterized by a significant increase of the power at small u_{ch} (up to 0.1 m.s⁻¹), followed by a smaller increase for higher speeds. The values that do not seem to follow this trend and are characterized by a much smaller *P*, have been obtained with very small values of the gyrational speed. They can be considered to be out of the normal range of use of a planetary mixer, for which blades have to describe the whole mixer's volume in an acceptable time.

This is emphasized in figure 11, for which the equipment has been set to operate without gyration (green line). In this case, the impeller stirs a smaller powder mass, which is not what may be expected. This is all the more significant in the case of cohesive powders for which shear mixing at the blade-powder interface do not exist in practice. That said, it must be beared in mind that the use of u_{ch} in the prediction of the power is limited to the range of speed combination that exclude small gyrational speed values.









Figure 10: Power consumptions recorded for lactose, fine lactose, talc and sand (from top to bottom), as a function of u_{ch}



Figure 11: Fine lactose power consumption with a set motor rotation (continuous orange lines) and no gyration (dashed green line), as a function of u_{ch}

When gyrational speed increases for a fixed rotational speed (orange lines), the power increases, because the four blades move into the stationary powder bed that was out of reach for them. In fact, this powder rheology analysis puts forward the interest of a planetary blender: the rotation creates a mixing zone for the product and the gyration moves this zone in other parts of the vessel. This impact of gyration is more visible on lactose, less for fine lactose and talc, and almost not observable for sand (Figure 10). This smaller implication of gyration for sand is probably due to its higher bulk density (Table 2), so blades are partially immerged as compared with other powders. This difference in rheological behavior between free flowing and cohesive powders has already been studied for semolina, couscous and lactose [17]. Now we can see that it is also the case for milled sand, of higher density than lactose, talc particles of platelet shape and for fine lactose, made of finer particles. In the case of sand powder it can be noted that no repeatability tests have been done, because this powder is too abrasive and dense, 30 kg of this material being able to damage the mixer for higher agitation speeds.

In order to get rid of the differences in bulk density between the powders and in the objective to generalize our work (for different scales of tank for instance), these results are featured by the dimensionless correlations highlighted before: $N_{pM}=a.F_{rM}^{b}$ [16]. Coefficients *a* and *b* are identified by regression as shown in Figure 12, for semolina and lactose, chosen here as examples to highlight that the power correlation is more reliable for free flowing powders.



Figure 12: Evidence of a power relationship between modified power number and modified Froude number for semolina (top) and lactose (bottom)

Coefficients a and b are represented in figure 13 as a function of semolina content.



Figure 13: Evolution of coefficients a (top) and b (bottom) as a function of semolina content in the mixtures studied

3.2. Correlation between dimensionless coefficients and cohesion

Cohesion is the property chosen to distinguish powders. This part puts forward the cohesion dependence of the coefficients a and b of the dimensionless correlation between the modified power number and the modified Froude number (eq. 10). These coefficients have been calculated using torque measurements for the five single powders and of the 16 mixtures, the blender still being filled of 30 kg for each batch. Linking a and b with a powder property is interesting to limit the powder quantity, the time and efforts spent to perform experiments in blenders, that are usually costly in industry.

Table 4 lists coefficients *a* and *b* calculated for each powder and the regression coefficients R^2 corresponding to each correlation. The regression coefficient is smaller for cohesive powders and closer to 1 for semolina. This is due to the dispersion of power values owing to gyration impact, as explained before.

Powder	a	b	\mathbf{R}^2	f	Fitting	
					Equation	
Data fitting for Pure Powders						
Semolina	52	-0.97	0.999	0.92	Eq. 10	
Lactose	7	-1.38	0.981	0.94	Eq. 10	
Fine lactose	17	-1.22	0.985	1.26	Eq. 10	
Talc	10	-1.17	0.985	1.25	Eq. 10	
Sand	5	-1.20	0.991	0.70	Eq. 10	
Semolina	13	-1	0.990	0.42	Eq. 13	
Semolina	23	-1	0.996	0.63	Eq. 13	
Semolina	37	-1	0.997	0.83	Eq. 13	
Semolina	44	-1	0.998	0.92	Eq. 13	
Lactose	6	-1.13	0.980	0.42	Eq. 14	
Lactose	6	-1.27	0.985	0.63	Eq. 14	
Lactose	6	-1.34	0.983	0.83	Eq. 14	
Lactose	6	-1.41	0.981	0.94	Eq. 14	
	Data	fitting for Powd	er Mixtures by v	vt%:		
	M1 (Lactose	: Semolina) and	M2 (Fine lactos	e : Semolina)		
M1 (10:90)	40	-0.98	0.999	0.86	Eq. 10	
M1 (20:80)	31	-1.03	0.999	0.82	Eq. 10	
M1 (30:70)	21	-1.09	0.999	0.79	Eq. 10	
M1 (40:60)	14	-1.15	0.997	0.76	Eq. 10	
M1 (50:50)	9	-1.20	0.992	0.80	Eq. 10	
M1 (60:40)	7	-1.26	0.992	0.82	Eq. 10	
M1 (70:30)	6	-1.32	0.992	0.84	Eq. 10	
M1 (80:20)	6	-1.34	0.986	0.90	Eq. 10	
M1 (90:10)	6	-1.39	0.982	0.91	Eq. 10	
M2 (10:90)	41	-1.05	0.999	0.89	Eq. 10	
M2 (20:80)	29	-1.06	0.999	0.89	Eq. 10	
M2 (30:70)	15	-1.14	0.998	0.90	Eq. 10	
M2 (40:60)	9	-1.23	0.996	0.92	Eq. 10	
M2 (50:50)	3	-1.31	0.979	0.95	Eq. 10	
M2 (60:40)	NA	NA	NA	1.04	N.A	
M2 (70:30)	6	-1.31	0.994	1.07	Eq. 10	
M2 (80:20)	6	-1.35	0.992	1.21	Eq. 10	
M2 (90:10)	NA	NA	NA	1.30	N.A	

Table. 4: Coefficients a and b derived from the correlations obtained for the single products studied

Coefficients for mixtures 1 and 2 are shown in figure 13. In this, a values seem to decrease linearly with a decreasing semolina content for both kind of mixtures and when the cohesive powder content is bigger than 60%, the coefficient a remains the same. b coefficients show a relatively linear

increase with the free-flowing powder content. Single fine lactose coefficients do not follow the trends observed.

The cohesion of single powders is represented on Table 2. Semolina has the smallest cohesion as expected and fine lactose is the most cohesive powder. Figure 14 represents the evolution of the cohesions of mixtures 1 and 2 with semolina content, for both lactose and fine lactose. As expected, the cohesion increases as the content in cohesive powder increases. Below 30%, the cohesion is close to the semolina's one, being that of lactose or fine lactose after 70%. It looks linear between 30 and 70%.



Figure 14: Cohesion measured for mixture 1 (semolina-lactose) and mixture 2 (semolina-fine lactose)

In a second approach, a and b coefficients can be expressed as a function of cohesion for all mixtures and for single powders. They both seem to decrease with cohesion for the large majority of powders (Figure 15). The fine lactose has an unexpected behavior, which is probably due do its tendency to agglomerate as it has been denoted during the experimental handling of this powder among all experiments. From an industrial viewpoint, a global correlation for a and b can be admitted to get a first estimation of the power consumption, depending on the cohesion c of the powder (eq. 12).

$$N_{pM} = \frac{5.4}{c} \cdot F_{rM}^{b}$$
eq.12
with $b = 0.47c^{2} - 0.94c - 0.87$



Figure 15: Impact of powder cohesion on a (top) and b (bottom) coefficients for all powders and mixtures investigated (30 kg in Triaxe)

The squared coefficients of correlations for a (0.73) and b (0.85) are relatively small. If we except the singular points corresponding to the single fine lactose, a closer look to the graphs demonstrates two extreme cases depending on the cohesion (eq.13 and 14).

$$if \ c < 0.3 \ kPa \rightarrow N_{pM} = a. F_{rM}^{-1}$$
 eq.13

$$if \ c > 0.6 \ kPa \to N_{pM} = 6. \ F_{rM}^b$$
 eq.14

The Carr Index (eq. 1) can be used to associate each group of powders with flowability: if it is smaller than 15, the powder is free flowing while if it is higher, the flowability is affected. On Figure 16 powders of cohesion smaller than 0.3 kPa can be considered as free flowing and powders of cohesion bigger than 0.6 kPa are classified as cohesive. This kind of representation has already been adopted to give an estimation of the flowability of powders using the flow function and the compressibility, both measured with a FT4 rheometer [20]. In both equations 13 and 14, a and b

coefficients should be recalculated by forcing the regression with the constant a or b value. This will be done in the next part, where they will be expressed as functions of the filling ratio.



Figure 16: Flow behaviour of the powders studied according to Carr Indexes and cohesion

3.3. Influence of the filling ratio

In this first approach, experiments were carried out with a fixed mass of each powder (30 kg), but as their bulk densities are ranging between 495 and 887 kg.m⁻³, filling ratios are different for different powders. Filling ratio is linked to the volume occupied by the powder and insofar to the immersion of the blades and to the local sate of consolidation of the bulk (maybe the coexistence of local dilated and consolidated zones).

Powders of two different flow properties have been chosen to investigate the influence of f on the rheology: one is free flowing, semolina, and the other one is cohesive, lactose. Experiments were done at four filling ratios (0.42, 0.63, 0.83, 0.92 or 0.94) for each powder, see Table 3. Coefficients a and b are identified on the basis of correlations 13 and 14. Figure 17 represents the linear dependence of a, plotted against f for semolina and the linear dependence of b on f for lactose. Thus, correlations between the modified power number and the modified Froude number can be completed.



Figure 17: Coefficient a of semolina with b=-1 (top) and coefficient b of lactose with a=6 (bottom) depending on the filling ratio

For semolina, equation 13, which represents equation 10 when the *b* coefficient is forced to -1, should be used. The linear regression of *a* vs *f* is relatively good (R^2 =0.989) and we can express *a* as follows (eq. 15):

$$a = 62 f - 14$$
 eq.15

Concerning lactose, equation 14 is better suited because its cohesion is higher than 0.6 kPa. The *b* coefficient decreases linearly with f (eq. 16) and the correlation is weaker than equation 15 for semolina (R^2 =0.987).

$$b = -0.52 f - 0.92$$
 eq. 16

Experiments have also been performed with fine lactose, and unclassified powders like talc and sand for which the cohesion lays between 0.3 and 0.6 kPa. For all of them, the dependency of a and b on the filling ratio is similar to that of lactose: a is almost constant and b decreases linearly with f.

To sum up, the modified power number can be linked with the modified Froude number and the filling ratio depending on the value of the cohesion (eq.17 and 18).

$$if \ c < 0.3 \ kPa \rightarrow N_{pM} = (62 \ f - 14). F_{rM}^{-1}$$
 eq. 17

if
$$c > 0.6 \ kPa \to N_{pM} = 6. \ F_{rM}^{-0.52 \ f - 0.92}$$
 eq.18

This study of filling ratio has been undertaken only with one powder of each kind: semolina for free flowing and lactose for more cohesive. It should be extended to more powders to get a better reliability. Equations 17 and 18 allow the determination of the power numbers, and in turn power consumptions in the Triaxe blender, at least in the gyrational speed range that is proper to a nearly bijective P vs u_{ch} relationship, and without performing many pilot scales experiments. The lab-scale measured cohesion of the powder and the filling ratio employed in the process are the only additional parameters to know.

4. Conclusion

The aims of this study were to determine the differences between free flowing powders and cohesive powders during a blending operation, and to correlate the power with process geometrical dimensions, operating parameters (agitation speed, filling ratio) and a powder property (cohesion).

A detailed analysis of the power consumption while a powder is stirred by the blender reveals two kinds of behavior, one for free flowing powders through a linear increase of the power with the agitation speed, and one for cohesive powders where the power consumption is smaller and the gyration motion plays an important role to distribute the powder transmitted by blades into the whole powder bed.

Thanks to the Carr Index and the cohesion, two rheological behaviors can be distinguished: free flowing if the cohesion is lower than 0.3 kPa and cohesive if it is higher than 0.6 kPa. Coefficients *a* and *b* of the correlation $N_{pM} = a.F_{rM}^b$ can be estimated depending on this classification. For free flowing powders *b*=-1, as demonstrated by André et al. in a previous study on the Triaxe® mixer [17] and *a* coefficient is found to increase linearly with the filling ratio. Concerning cohesive powders, a=6 and the biggest filling ratios lead to a linear decrease in b coefficient. With the knowledge of the powder cohesion value and of the apparent filling ratio inside the mixer tank, the power that is needed to stir the powder can be estimated. This is of high value for industrial applications since it limits the number of experiments to perform at full scale.

Nevertheless, there are limitations in this study: some powders demonstrate an unexpected behavior, like fine lactose, which is suspected to create agglomerates that in turn improve its flow inside the blender. Some powders cannot be classified easily with the comparison between cohesion and Carr Index, like talc, potentially because the platelets-shape particles result in a cohesion that is smaller than expected when the powder is sheared.

As a perspective to this work, a four bladed transparent cylindrical mixer, without gyration motion, has been set up to study directly the impact of the powder properties and process parameters on the different flow regimes induced by rotation. Investigating the flow involved in a bladed mixer is an essential step to create a model able to describe and predict what is happening in a complex planetary blender like the Triaxe[®]. This model will be based on a Markov chain analysis, as its ability to model powder flow has already been proved in many studies [26].

Acknowledgements

Many thanks to Laurent Devriendt and Manon Bru, respectively a technician and an internship student at RAPSODEE research center, for their contribution in powder characterization and stirring experiments.

Nomenclature

$ ho_b$	Bulk density	[kg.m ⁻³]
ρ_t	Tapped density	[kg.m ⁻³]
$ ho_p$	True density	[kg.m ⁻³]
$\Omega_{ m ra}$	Blade axis rotational speed	[rev.s ⁻¹]
$\Omega_{ m ga}$	Blade axis gyrational speed	[rev.s ⁻¹]
ω_{gm}	Motor angular gyrational speed	[rad.s ⁻¹]
$\omega_{ m m pm}$	Motor angular rotational speed	[rad.s ⁻¹]
ω _{ra}	Blade axis angular rotational speed	[rad.s ⁻¹]
ω _{ga}	Blade axis angular gyrational speed	[rad.s ⁻¹]
с	Powder cohesion under 4 kPa pre-shear	[kPa]
d ₅₀	Characteristic particle diameter	[m]
D	Distance between two blade tips	[m]
ds	Diameter of Triaxe's spherical reducer	[m]
f	Triaxe's filling ratio	[]
IC	Carr Index	%
Р	Power needed to stirr powder in Triaxe	[W]
T_{g0}	Gyrational torque for empty tank	[N.m]
T_{gf}	Gyrational torque for filled tank	[N.m]
T _{r0}	Rotational torque for empty tank	[N.m]
T _{rf}	Rotational torque for filled tank	[N.m]
u _{ch}	Impeller characteristic tip speed	[m.s ⁻¹]

References

- [1] J. Bridgwater, Fundamental Powder Mixing Mechanisms, Powder Technol. 15 (1976) 215– 236.
- [2] M.E. Aulton, ed., Pharmaceutics: the science of dosage form design, Churchill Livingstone, Edinburgh etc., Royaume-Uni (2002).
- [3] J.M. Valverde Millán, Fluidization of Fine Powders, Springer Netherlands, Dordrecht (2013).
- [4] J. Nagy, Development and Control of Dust Explosions, CRC Press (1983).
- [5] A.W. Alexander, B. Chaudhuri, A. Faqih, F.J. Muzzio, C. Davies, M.S. Tomassone, Avalanching flow of cohesive powders, Powder Technol. 164 (2006) 13–21.
- [6] J.R. Bourne, The Mixing of Powders, Pastes and Non-Newtonian Fluids, Institution of Chemical Engineers, 1964.
- [7] H. Li, J.J. McCarthy, Cohesive particle mixing and segregation under shear, Powder Technol. 164 (2006) 58–64.
- [8] G. Reverdy, Contrôle éléctrique intégral de la fabrication des bétons hydrauliques, Rev. Générale Routes. 381 (1963) 125–126.
- [9] B. Cazacliu, J.Legrand, Characterization of the granular-to-fluid state process duringmixing by power evolution in a planetary concretemixer, Chem. Eng. Sci. 63 (2008) 4617 4630.
- [10] J.Bridgwater, D. F. Bagster, The Measurement of the Force Needed to Move Blades Through a Bed of Cohesionless Granules, Powder Technol. 1 (1967) 189–198.
- [11] P.W. Bridgman, Dimensional analysis, by P.W. Bridgman., Rev. ed., New Haven (1963).
- [12] T.S. Makishima, Experimental study on the power requirements for agitating beds of solid particles, and proposal of a new model, J. Chem. Eng. Jpn. - J CHEM ENG JPN. 1 (1968) 168– 174.
- [13] W. Entrop, Proc. European Conference on Mixing in the Chemical and Allied Industries, (1978) 1–14.
- [14] M. Sato, K. Miyanami, T. Yano, Power Requirement of Horizontal Cylindrical Mixer, J. Soc. Powder Technol. Jpn. 16 (1979) 3–7.
- [15] P.C. Knight, J.P.K. Seville, A.B. Wellm, T. Instone, Prediction of impeller torque in high shear powder mixers, Chem. Eng. Sci. 56 (2001) 4457–4471.
- [16] C. André, J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, G. Delaplace, Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders: Mixing time and power consumption, Chem. Eng. J. s 198–199 (2012) 371–378. doi:10.1016/j.cej.2012.05.069.
- [17] C. André, J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, G. Delaplace, Derivation of dimensionless relationships for the agitation of powders of different flow behaviours in a planetary mixer, Powder Technol. 256 (2014) 33–38. doi:10.1016/j.powtec.2014.02.002.

- [18] I. Gijón-Arreortúa, A. Tecante, Mixing time and power consumption during blending of cohesive food powders with a horizontal helical double-ribbon impeller, J. Food Eng. 149 (2015) 144–152.
- [19] R.L. Carr, Evaluating flow properties of solids, 72 (1965) 163–168.
- [20] M. Leturia, M. Benali, S. Lagarde, I. Ronga, K. Saleh, Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods, Powder Technol. 253 (2014) 406–423.
- [21] A.W. Jenike, Gravity flow of bulk solids, Salt Lake City (1961).
- [22] J.W. Carson, H. Wilms, Development of an international standard for shear testing, Powder Technol. 167 (2006) 1–9.
- [23] G. Calvert, M. Ghadiri, M. Dyson, P. Kippax, F. McNeil-Watson, The flowability and aerodynamic dispersion of cohesive powders, Powder Technol. 240 (2013) 88–94.
- [24] J.-F. Demeyre, Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe[®], Toulouse, INPT (2007).
- [25] G. Delaplace, R. Guérin, J.C. Leuliet, Dimensional analysis for planetary mixer: Modified power and Reynolds numbers, AIChE J. 51 (2005) 3094 3100.
- [26] H. Berthiaux, V. Mizonov, Applications of Markov Chains in Particulate Process Engineering: A Review, Can. J. Chem. Eng. 82 (2004) 1143–1168.

Le chapitre III.1 a démontré que des relations peuvent être identifiées entre le nombre de puissance et le nombre de Froude, selon le type de poudre et les différents paramètres employés. L'article présenté a soulevé de nombreuses interrogations, de par l'opacité de la cuve et la dualité du mouvement du mélangeur convectif Triaxe[®] (rotation et giration). Par ailleurs, les mesures de rhéologie effectuées sur les mélanges à base de poudres à écoulement libre (semoule) et cohésives (lactose ou lactose fin) montrent un comportement surprenant, avec une évolution contre-intuitive de la puissance, selon la proportion en poudre cohésive présente dans le mélange. De plus, divers états de consolidations sont supposés dans ce mélangeur, notamment pour les poudres cohésives. La poudre peut être compactée localement pour des vitesses d'écoulement faibles, ou bien aérée pour les vitesses plus élevées. Le chapitre III.2 apporte des éléments de réponses dans ce sens, à partir de mesures et calculs à différentes échelles d'observations, et sous différents états de consolidations de la poudre.

Résumé du Chapitre III.2

Comment caractériser les poudres afin de prédire leur comportement macroscopique lors de l'agitation ?

Dans ce travail nous examinons les relations entre les caractéristiques des particules et leur comportement en procédé. Les propriétés d'écoulement de vingt-trois poudres ont été étudiées avec des techniques à trois échelles de mesure et sous trois différents états de consolidation, dans le but de relier leurs caractéristiques avec leur comportement lors de l'agitation dans un mélangeur. L'échelle macroscopique concerne des expériences d'agitation de poudres dans un mélangeur planétaire pilote de 48 litres. Les propriétés à l'échelle mesoscopique ont été mesurées avec un voluménomètre Erweka® et un rhéomètre Freeman FT4 sous trois différents états de consolidation. Leurs plage d'écoulement s'étend de cohésif à écoulement libre. Les propriétés microscopiques, à l'échelle d'une particule, ont été déduites par granulométrie LASER, pycnométrie à hélium et microscopie électronique à balayage. Les mesures rhéologiques dans le mélangeur à l'échelle macroscopique montrent deux comportements différents : un comportement cohésif et un comportement à écoulement libre, la transition entre ces deux comportements n'étant pas intuitive. Par ailleurs, la puissance mesurée lors de l'agitation d'un milieu à écoulement libre dont les pores sont remplis de particules cohésives atteint un minimum, ce qui est lié à la structure microscopique de l'empilement particulaire. De plus, une comparaison entre des expériences réalisées à l'échelle macroscopique et microscopique montre que l'état de consolidation de la poudre est un paramètre clef, surtout pour les poudres cohésives.

III.2. How to characterize powders in order to predict their macroscopic flow behavior during agitation?

Léonard Legoix, Cendrine Gatumel, Mathieu Milhé, Henri Berthiaux

Université de Toulouse, Centre RAPSODEE, CNRS UMR 5302, Ecole des Mines d'Albi, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

Article info

Abstract

Submitted to Powder Technology

Keywords

Rheology Powder characterization Convective blender Flowability Mulit-scale study In this study we examine the relationships between particles characteristics and in-process powder behavior. Flowing properties of twenty-three powders have been investigated with different techniques at three scales of measurement and three different states of consolidation in order to link their basic characteristics to their behavior during agitation in a mixer. The macroscopic scale concerns powder stirring experiments in a 48 l planetary pilot mixer. The mesoscopic scale properties have been measured with Erweka® volumenometer and FT4 Freeman rheometer under three different consolidation states. Their flow ability ranges from free-flowing to cohesive. Microscopic properties, at the scale of a particle, have been deduced from LASER granulometry, SEM observations and He-pycnometry. The macroscopic scale in-mixer rheological measurements show two main patterns: a free-flowing like pattern and a cohesive like pattern, the ranking of the powders between these two being not intuitive. Else, the power registered when stirring a powder constituted by a free-flowing media filled with a cohesive one reaches a minimum that has been linked to the microscopic structure of the particle's packing. Furthermore, the comparison between macroscopic experiments and mesoscopic characterizations through specific power shows that the consolidation state of the powder is a key parameter to consider, especially for cohesive powders.

1. Introduction

Powders, that are a form of materials present in various industries, show a flow behavior in processes that is not easily matched with any of their characteristics. They can be processed with liquids in granulation operations for instance, or at a dry state, without any liquid addition. Even if liquid is present in a very small amount in the media, capillary cohesion forces may appear between particles, and diminish the flowability of the powder, that is then qualified as cohesive. For dry powders, cohesion forces exist too and are mainly due to Van der Waals forces. For this kind of powders, of particle sizes usually under 100 μ m, Van der Waals forces can be considered as significant as compared to gravity, leading to poor flow behavior (Bridgwater, 1976). Powders, for which the movement of particles is more influenced by gravity than cohesive forces, can be qualified as free-flowing.

While flowability of powders is important to know in order to manage powder manufacturing processes such as mixing operations, or their storage and transportation between successive operations, it remains ill-defined. Indeed, flowability is not an intrinsic property of a material since it depends on the shape and the size of the particles, their porosity and roughness but also on environmental conditions like temperature, relative humidity and surface impurities and keep the history of the manipulations it underwent during, for example, transport or storage.

Numerous methods of characterization have been developed, from the simpler ones to the more sophisticated or automated. Among them we can cite:

- measurement of an angle of repose
- measurement of the minimum aperture for a powder flowing out of a hopper (Gioia, 1980)
- volumenometry which consists in measuring the packing density of the powder in a graduated test tube submitted to vibrations and comparing the final tapped density to the initial density of the bulk to calculate Flowability indexes (Carr Index, Hausner ratio)
- shear-cells associated to Jenike method to calculate different properties such as friction and cohesion of granular materials (Schultze, 2008) to build flow functions related to rheological behavior of the powder under a range of normal consolidation situations
- powder rheometer as developed by Freemann Technology, that proposes different tests linked to flowability in variously confined flowing situations like agitation with a bladed impeller or aerated measurements with an air flow (Freeman, 2007). It allows to perform

these measurements with a standard protocol of preparation of the powder, which minimizes the influence of the operator on results.

A recent study compares different methods of characterization of flowability for various powders, from nanoparticles to group B of Geldart's classification (Leturia et al., 2014). Three different kinds of methods have been distinguished, depending on the stress level conditions of the powder bed:

- packed conditions that are reached during compaction operations for instance

- free-surface conditions for which flow properties are measured under low stresses

- aerated conditions, that take place when air is incorporated in the powder, like in fluidized beds.

One of the conclusions of this paper is that powders cannot be viewed as invariant entities, their flow properties having to be deduced from the connection of several characterization methods.

In practice, the basic data on powders given by suppliers are microscopic or particle scale relevant, such as chemical composition or size. The only way we have to link a powder to its flow pattern during processing is then to test its flowability with one or several mesoscopic scale devices and the question of the choice of the tests remains open. To what extent individual characters are linkable to collective behavior? Is that scale-dependant? The work presented here inspects the relationships between observations at process scale and mesoscale characterizations or individual particle's scale properties.

Flowabilities of twenty three powders chosen for their range of sizes and shapes are investigated by means of a multi-scale study (Figure 1). The microscopic scale concerns the properties that have a physical sense at the scale of a particle (size and shape from LASER granulometry and SEM observations, particle density from He-pycnometry). The mesoscopic scale deals with few quantities of powder that can be handled in a laboratory to characterize flowability (flow indexes from volumenometry and cohesion from a shear test, flow rate index and aeration rate from FT4 powder rheometer). The macroscopic scale experiments are in-mixer rheology measurements in a 48 l planetary pilot mixer. This mixer has already demonstrated its ability to stir free-flowing and cohesive powders as well, and its efficiency for rheological investigations (Demeyre, 2007; Legoix et al., 2017).



Figure 1: Scales of powder measurements.

2. Materials and methods

2.1. Powders

In this work, several powders and mixtures have been studied to cover a wide range of physical properties. The five powders studied are semolina (Le Renard), lactose (Granulac 140), fine lactose (Granulac 230), talc (Luz00) and crushed sand (Société Nouvelle du Littoral). These powders have been chosen for their different sizes, densities, morphologies and chemical compositions. Semolina and lactose mixtures (M_1) have then been studied as well as semolina and fine lactose mixtures (M_2). Lactose (or fine lactose) mass fraction varies from 0 to 1 with a 0.1 step in order to obtain powders of different properties. Taking into account single powders and mixtures, this defines twenty three different powders.

Different properties have been measured at the microscopic scale. The median diameter d_{50} is measured using LASER diffraction particle sizer Mastersizer3000 (Malvern). Particle density ρ_p has been measured using helium pycnometry with an Accumulator Pyc 1330 (Micromeritics). All of these properties are gathered in table 1.

Property	Semolina	Lactose	Fine lactose	Talc	Sand
d ₅₀ (µm)	312	61	26	16	33
$\rho_p (kg.m^{-3})$	1463	1533	1539	2772	2643

Table.	1: Main	powder	properties
--------	---------	--------	------------

The morphology of the particles has been established using SEM microscopy (Figure 2). The shape of semolina, lactose, fine lactose and sand particles are polygonal, whereas talc is clearly made of platelets.

It is possible to assess classifications that characterize the air-particle interactions. This can be done using Geldart's classification, by expressing the difference between the density of particles ρ_p and air, against particles characteristic size d_{50} (Geldart, 1973). Group A gathers powders that can be easily fluidized with a dense phase expansion after a minimum air speed of fluidization is reach, whereas powders in group B shows bubbling behavior. Particles in group C are tough to fluidize and those in group D are able to create spouted beds. Only lactose and sand are clearly in group A of Geldart's classification, and other powders are close to the border between A and C groups like fine lactose and talc (Table. 2). Semolina is classified in B group.



Figure 2: SEM pictures of the particles.

Table. 2: Geldart's classification of the powders considered in this study.

Powder	Semolina	Lactose	Fine lactose	Talc	Sand
Geldart class	В	А	A (close to C)	C (close to A)	А

2.2. Characterization of powders

2.2.1. Mesoscopic scale measurements of flowability

The Carr Index *CI* (Carr, 1965), widely employed as an information on the flowability, can be evaluated using a tapped density volumenometer (Erweka[®]). It reflects interactions between particles in motion situation, since it quantifies the difference of density between the bulk powder ρ_b and the tapped powder ρ_t , as compared to the tapped powder density (eq. 1). An important Carr Index means that the powder is easily packed by air evacuation to create blocks of powders, which is a behavior that is characteristic of cohesive powders. In this work, the Carr Index will be expressed in percent.

$$CI = 100. \frac{\rho_t - \rho_b}{\rho_t} \qquad \text{eq. 1}$$

Typically, a Carr Index smaller than 15 is associated to free-flowing powders that can flow easily and where grains show few attractive interactions between them. On the contrary, a powder has a poor flow and can be considered as poor flowing, with strong attraction forces between particles, when the Carr Index is greater than 22 (Carr, 1965).

Mesoscopic measurements are also performed with the FT4 Freeman powder rheometer using the 50 mm diameter vessel. The impeller employed is made of two blades that can move towards the powder poured in the vessel. The torque exerted on blades, and the normal force applied at the bottom of the vessel are measured and directly converted as a global energy needed to stir the powder.

The Flow Rate Index (*FRI*) is obtained by the basic Freeman procedure. A blade is moving through the powder bed, the energy being recorded for two blade speeds: 10 and 100 mm.s⁻¹. *FRI* represents the ratio between the measured energy at low speed E_{10} and the measured energy at high speed E_{100} (eq. 2). A *FRI* greater than 1 means that more energy is required to stir the powder bed at low speed, it is attributed to cohesive forces that do not allow particles to reorganize themselves behind the blades when the stirring speed is high. Typically, the largest the FRI is, the poorest the Flowability is. As stated by Leturia et al. (Leturia et al., 2014), we assume that this gives an indication on flowability under "free-surface" conditions.

$$FRI = \frac{E_{10}}{E_{100}}$$
 eq. 2

The aeration cell of the FT4 was employed to evaluate the effect of aeration on the flow properties of the powders (Figure 3). Flow energy is measured for 100 mm.s⁻¹ blade speed and air velocity can vary from 0 to 40 mm.s⁻¹. The flow energy generally decreases as the air velocity increases. The bed is aerated or fluidized depending on powder properties. The last data recorded, with the larger air velocity, corresponds to the Aerated Energy (*AE*). In our experiments, it is obtained at 6 mm.s⁻¹ of air, since elutriation can be observed beyond this value for some powders. Usually for cohesive powders, especially group A, the Aerated Energy is smaller than that of non fluidizable powders in other Geldart groups. When air velocity is great enough, the particles of group A are not in contact anymore, resulting in cohesion and friction forces that offer less resistance to the blade.



Figure 3: FT4 rheometer equipped with the air injection device.

Cohesion measurements have been processed with the shear cell of the FT4 rheometer. A yield locus is built under a pre-shear of 4 kPa consolidation, which is an intermediate level of consolidation available by the apparatus for the powders studied. Then, cohesion is deduced from this yield locus as the intercept of a linear regression between plotted shear strength as a function of the applied normal strength. For dry powders, the cohesion measured represents the attractive forces of Van der Waals between grains of a static powder bed. The more the cohesion value is important, the less the powder can flow when particles are in contact. The cohesion has more impact on the flow of consolidated or confined powder beds.

2.2.2. Microstructure calculations for the mixtures

The microstructure of a powder bed can be characterized by its porosity (air volume content). This porosity is first evaluated thanks to results from different measurements of density (particle, bulk and tapped densities). The goal of the calculations described in this part is to evaluate the porosity of binary blends such as M_1 and M_2 , with some hypothesis about the packing structure at micro-scale and densities measurements of the two components. The experimental and calculated porosity profile for M_1 and M_2 will finally be compared to gain a better insight of the organization of the particles at microscopic scale.

Experimental porosity of mixtures

Concerning mixtures M₁ and M₂, for a semolina content of 0 or 100%, the particle density has already been measured by pycnometry (Table. 1). For a mixture made of components of different true densities, we calculate a mean density of particles by eq. 3. It means considering a solid of density ρ_m made of *n* components of density ρ_{pi} and a mass proportion x_i for each. In this work n=2 and x_i vary from 0 to 1 with a 0.1 step.

$$\rho_m = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{x_i}{\rho_{ni}}\right)}$$
 eq. 3

The porosity ε of blends M₁ and M₂ is calculated from the tapped density measurements using eq. 4, where ρ_t is the tapped density and ρ_m the mean particle density of the mixtures. The tapped density is preferred to the bulk density since these measurements are more reproducible and it better represents the structure of a stack of particles.

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_t}{\rho_m} \qquad \qquad \text{eq. 4}$$

Theoretical porosity of mixtures

A theoretical calculation of porosities of blends can be achieved thanks to a thermodynamic analogy of packing of spherical grains (Ben Aïm and Le Goff, 1968). Some hypothesis need to be brought: mixtures are made of big grains of semolina and of small grains of the other component (lactose or fine lactose), and every particle of a kind is spherical and is of the same size. Two models of packing will be presented: a simple model (model 1) and a more complex for ordered mixtures

(model 2). To explain calculations, equations will be given as density ρ_k , k=1 or 2 being the number of the packing model studied. The associated porosities ε_k can be then deduced by eq. 4.

The first model of packing "model 1" is based on the assumption that big particles form a structure with pores that can be filled by small particles (Figure 4). This is true until the small particle's mass fraction x is smaller than the fraction x_f needed to fill all the pores. For larger fractions of small particles, the system can be considered as a packing of small particles with some inclusions of big particles.

The evolution of the density ρ_1 of the powder bed can be expressed knowing the tapped density of big particle's pack ρ_{tb} and the mass proportion *x* in small particles, for a fraction in small particles smaller than x_f (eq. 5(a)). In this case, the volume of the bed remains the same and does not depend on *x*. Concerning the situation of a bed of small particles with some inclusions of big particles, the density associated can be calculated with the mass fraction in small particles *x*, the true density of big particles ρ_{pb} and the tapped density of small particles ρ_{ts} (eq. 5(b)).



Figure 4: Packing model 1 for binary mixtures made of small and big particles

$$\rho_{1} = \begin{cases}
\frac{\rho_{tb}}{1-x} & \text{if } x < x_{f} \quad (a) \\
\frac{\rho_{pb} \cdot \rho_{ts}}{\rho_{pb} \cdot x + \rho_{ts} \cdot (1-x)} & \text{if } x \ge x_{f} \quad (b)
\end{cases}$$
eq. 5

With the equality between the two expressions of model 1 (eq. 5), x represents the proportion x_f of small particles for which the packing of the mixture is the more compact, ie when every pores of the big particles bed are completely filled by small particles. The corresponding porosity profile, that will be compared with experimental tapped density, is plotted on figure 5.



Figure 5: Porosity profile according to model 1, x is the mass fraction of lactose/fine lactose

Optical microscopy observation reveals that particles of lactose and of fine lactose will be located preferentially around semolina particles (Figure 6). It will be considered as coating for theoretical calculations, but the particle affinity and the size ratio between large and small particles are probably no enough to literally ensure a coating. It looks more like an ordered structure in the packing than a monolayer coating of every semolina particle. An ideal step of coating may be added before filling pores between particles of semolina to take into account this ordering of the mixture. The model associated to this will be "model 2".





Figure 6: semolina-lactose (left) and semolina-fine lactose (right) ordered mixtures with lactose and fine lactose surrounding semolina grains.

During coating, small particles are supposed to create bigger composite particles, made of one big particle and several small particles. If we assume that the small particles are uniformly dispersed as a non-porous mono-layer around big particles, porosity will be the same until each big particle is perfectly coated with a mono-layer of small particles (Figure 7).



Figure 7: Packing model 2 for binary mixtures of small and big particles.

The mass proportion of small particles x_c represents the proportion needed to coat entirely the big particles. The corresponding number of small grains n_s is calculated knowing the radii r and R of small and big particles respectively, with the assumption that the repartition of small particles around a big one forms a two dimensional compact structure, as shown in eq. 6 (Thomas et al., 2009). Then x_c is evaluated using the mass of a big particle m_b and the mass of a small particle m_s (eq. 7).

$$n_s = \frac{4\pi}{2\sqrt{3}} \frac{(R+r)^2}{r^2}$$
 eq. 6

$$x_c = \frac{1}{1 + \frac{m_b}{n_s m_s}} \qquad eq. 7$$

If x is smaller than x_c , the porosity of the bed is not supposed to change, giving the eq. 8(a). Once the coating is achieved, the pack is made of big grains surrounded by small grains of resulting radius is R+2r. The second relation, eq. 8(b) is readapted from model 1 (eq. 5(a)), for big pore filling, using ρ_{tc} the tapped density of perfectly coated particles that can be calculated with x_c and eq. 3. The difference between x and x_c represents the small particle fraction that is not coated and fills pores. When the proportion of small particles is large enough, all the pores of the coated particle bed are filled with small particles and the proportion associated is noted x_{cf} . When x is greater than x_{cf} , the mixture is supposed to be made of a small particles packing with big particles inclusions. In this case, since big particles are not considered as coated anymore, the density can be described like eq. 5 (b) of model 1 (eq. 8(c)). The corresponding porosity profile, that will be compared with the experimental tapped density, is plotted on figure 8.



Figure 8: Porosity profile according to model 2, x is the mass fraction of lactose/fine lactose.

2.3. Rheological measurements

Rheology is the study of the flow and deformation of matter when mechanical forces are applied to it. In this study it consists in measuring the torque exerted on the blades of an apparatus during powder agitation. This is done for different agitation speeds. A methodology is developed to compare experiments performed at macroscopic scale in a pilot blender and at mesoscopic scale in the FT4 powder rheometer.

2.3.1. In-mixer rheology

The macroscopic rheology is performed in a pilot scale convective blender Triaxe[®]. It is a four bladed mixer that has already shown its ability to blend powders (Demeyre, 2007) and has been described by Legoix et al. (Legoix et al., 2017). This blender is planetary and its blades spin over two axes (Figure 9). This leads to a rotational motion that stirs the powder and a gyrational motion that distributes this agitated zone all over the vessel. Two torque-meters allow measuring the rotational and the gyrational torques.

Empty vessel torque measurements are first performed without powder in the tank, and are respectively denoted as T_{g0} and T_{r0} for the gyrational and rotational torques. The gyrational and

rotational torques (respectively T_{gf} and T_{rf}) are registered afterwards with the loaded vessel. These torques are measured for different combinations of motor rotational speed ω_{rm} and motor gyrational speed ω_{gm} that can reach 3000 revolutions per minutes (rpm). It is important to note that these two angular blade speeds are smaller because of mechanical reduction, the maximal blade gyrational speed value being 20 rpm and the maximal blade rotational speed value 100 rpm. Concerning studies of mixtures M₁ and M₂, the vessel is filled with a fixed mass of 30 kg of powder. For the five single powders, two volume filling ratios *f* are investigated: 0.42 and 0.83. The filling ratio is evaluated considering the powder inside the blender is in a loose bulk state.



Figure 9: Agitation device of the Triaxe[®] blender with its spherical vessel (left) and without the vessel showing rotational and gyrational directions (right).

The torques and motor angular speeds, in N.m and rad.s⁻¹ respectively, allow to calculate the mechanical power P needed to stir the powder bed (eq. 9).

$$P = \omega_{gm} (T_{gf} - T_{g0}) + \omega_{rm} (T_{rf} - T_{r0})$$
 eq. 9

For more detailed information about the protocol and calculations, the reader can refer to a previous study dedicated to powder rheology with this planetary blender (Legoix at al., 2017). The Triaxe[®] measurements have already been described in this previous study for the five single powders and for the mixtures M_1 and M_2 . Concerning single powders, Legoix et al. have expressed results as the power *P* needed to stir the powder against the characteristic blade tip speed u_{ch} , that has been calculated as proposed by Delaplace et al. (Delaplace et al., 2007). It has been shown that the power increases almost linearly with u_{ch} for free flowing powders. For cohesive powders the power strongly increases with u_{ch} for the smaller stirring speeds and slightly increases with u_{ch} for the largest speeds. The value of the power needed to agitate free-flowing powders is globally larger than that of the

cohesive ones. Concerning the study of mixtures, the power consumption will be presented as a specific power P_m , to be compared with the rheological results at mesoscopic scale.

2.3.2. Rheology from measurements of flowability

The Aerated Energy (AE) has been measured at mesoscopic scale in the FT4 rheometer with the aeration device. The blade tip speed varied from 10 to 100 mm.s⁻¹ and air velocity was up to 6 mm.s⁻¹. The energy without aeration has also been measured at the same blade speeds. In order to compare results with in-mixer rheology, AE is divided by the mass of powder in the cell and the duration of the measurement to calculate a specific power P_m [W.kg⁻¹]. Power charts are built by plotting P_m as a function of a characteristic blade tip speed calculated by dividing the blade tip speed by π in order to be consistent with in-mixer rheology.

3. Results of characterizations

3.1. Flowability of single powders

Table 3 represents all the mesoscale characterizations that have been done for the five single powders. Carr Index and Flow Rate Index indicate that semolina is effectively a free-flowing powder and the others can be considered as cohesive.

Characteristic	Semolina	Lactose	Fine lactose	Talc	Sand
CI (%)	5.8 ± 0.3	16.9 ± 0.9	22.4 ± 2.7	40.9 ± 0.8	24.4 ± 0.1
FRI	0.89 ± 0.07	1.25 ± 0.16	2.09 ± 0.09	2.09 ± 0.03	2.34 ± 0.03
Cohesion (kPa)	0.24 ± 0.10	0.75 ± 0.12	1.12 ± 0.13	0.54 ± 0.07	0.59 ± 0.04
AE (mJ)	558 ± 48	317 ± 38	172 ± 19	131 ± 22	64 ± 6

Table. 3: Powder mesoscale characterizations.

A ranking of each characteristic can be given (Table. 4). If we consider that:

- the larger Carr Index, FRI and Cohesion are, the more cohesive the powder is
- the smaller the AE is, the more cohesive the powder is.

Semolina is ranked as the less cohesive powder by every mesoscale testing. Lactose has the second place for every measurements, excepted for cohesion for which it is considered as more cohesive than talc and sand.

Rank	1	2	3	4	5
CI (%)	Semolina	Lactose	Fine lactose	Sand	Talc
FRI	Semolina	Lactose	Talc/Fine lactose	Talc/Fine lactose	Sand
Cohesion (kPa)	Semolina	Talc	Sand	Lactose	Fine lactose
AE (mJ)	Semolina	Lactose	Fine lactose	Talc	Sand

Table. 4: Powder ranking by mesoscale characterizations, from free-flowing to cohesive.

These four characterizations are in agreement to distinguish free-flowing and cohesive powders. However, they are not able to provide a coherent ranking between cohesive powders (A/C groups). This is all the more obvious for fine lactose, talc and sand which are in the same range of particle's size ($d_{50} = 16, 26, 33 \mu m$ respectively): their differences in shape and density are prevailing in the different operating conditions.

3.2. Flowability of mixtures

Figure 10 gathers the mesoscale characterizations of flowability for mixtures M_1 and M_2 , as a function of the cohesive powder mass content *x*, which is lactose for M_1 and fine lactose for M_2 . The errors for Carr Index measurements represent the standard deviation of the repeatability of two experiments for mixtures M_1 and of three experiments for mixtures M_2 , since fine lactose bulk density measurements are less reproducible.

For a given mass fraction of cohesive powder, Carr Index, Flow Rate Index and cohesion for M_2 are larger than for M_1 : that corresponds to the more cohesive character of fine lactose (see table 3).

From the general tendencies of these charts, we can see that Carr Index, Flow Rate Index and cohesion for M_1 and M_2 are increasing functions of the mass content of the two lactose powders, varying from values of single semolina to single lactose. Each of these two blends is made up with particles of similar shapes and densities. In these conditions the three methods are consistent. The results corresponding to the more cohesive mixtures are rather scattered. They may be affected by the powder handling conditions when the different test devices are filled.



Figure 10: Characterizations of mixtures of semolina-lactose M₁ and semolina-fine lactose M₂ at meso-scale, for different cohesive powder contents.

When examining the charts into further details, two phenomena are remarkable:

- Results obtained for M₁ and M₂ are close as long as the content of lactose/fine lactose is bellow to 20%.
- For both mixtures, a threshold value of the fraction of lactose appears on Carr Index and AE charts. It corresponds approximately to 0.5 for M₁ and 0.4 for M₂. Carr Index increases with lactose fractions until this threshold, afterwards it looks dispersed around the Carr Index of the cohesive component. As regards to AE, this threshold corresponds to a minimum, while according to Geldart's classification AE should decrease from the semolina's value to that of lactose.

The next part will give a better insight of the relationship between these phenomena and the structure of the mixtures.

3.3. Microscopic structure of the mixtures

The microscopic structures of M_1 and M_2 are expressed by their porosities. These are calculated from the measurements of the true density of the particles ρ_p and the tapped density of the blends ρ_t (eq.3 and 4) and further plotted as a function of the proportion in fine particles of the blends *x*. Figure 11 shows that both porosities are reaching a minimum. This most compact structure of the blends is obtained at *x*=0.5 for M₁ and *x*=0.4 for M₂.



Figure 11 : Tapped porosity of semolina-lactose and semolina-fine lactose mixtures, as a function of the mass proportion x in cohesive powder.

The theoretical calculation of pore filling of the packing of semolina with cohesive particles has been represented on figure 12, according to model 1 and model 2.

In model 1, since fine particles are mixed with semolina, the porosity decreases drastically as the content in cohesive powder increases. Conversely in model 2, porosity of packing is constant until the big particles of semolina are coated by a monolayer of lactose or fine lactose.


Figure 12: Comparison between experimental (points) and theoretical tapped densities for M₁ and M₂ according to model 1(dotted lines) and model 2 (full lines).

The experimental and calculated minima of porosity are reported in table 5. According to the particle size distribution, a smaller fine lactose than lactose mass content is needed to reach a compact structure. Experimental data are in between the two models.

Mixture	Model 1	Experimental	Model 2
\mathbf{M}_1	0.36	0.5	0.71
M_2	0.31	0.4	0.47

Table. 5: Cohesive powder proportion x_{min} at the minimum of porosity.

Models 1 and 2 of particle packing are two idealistic descriptions of the structure of the blends M_1 and M_2 . Model 1 underestimates the lactose or fine lactose quantity needed to create a compact structure, whereas model 2 suggests that this structure can be reached with more significant cohesive powder quantities than for the experimental ones.

Particles of semolina are partially coated with lactose when the blends contain small amounts of lactose. At small lactose contents, the particles of the blends can be considered as semolina partially coated by lactose or fine lactose. Their size is close to that of semolina, contacts between particles of lactose are scarce and they can still be considered as free-flowing particles, this is consistent with the results of characterizations reported on figure 10.

Beyond the minimum of porosity of model 2, the two models are identical and represent fairly the experimental data. Above this point, the mixtures will be considered as lactose filled with semolina where contacts between particles of lactose are dominating. The threshold values observed from the results of the characterizations (Figure 10) correspond to the composition of the more compact blends (Table 5). At these compositions, no more contacts between particles of semolina exist, whatever the powder is packed, compacted or aerated. In this case, the flowing behavior of the blends is close to that of lactose or fine lactose. In the specific conditions of aerated measurements in the FT4, this particular composition corresponds to the structure that need the minimum energy of agitation as if powders were lubricated one by the other.

4. Results of rheological measurements

Rheological measurements are performed at macroscopic scale for the twenty-three powders and compared to mesoscopic scale characterizations for the five single powders.

4.1. Single powders

Results of the in-mixer rheology in the Triaxe[®] show a significant difference in powder requirements for stirring free flowing and cohesive powder (Figure 13). Beyond a critical value of u_{ch} more power is needed to stir the free flowing material (semolina) than the cohesive powders (lactose, fine lactose, talc, sand).



Figure 13: P vs u_{ch} for 30 kg of powder in the Triaxe® blender, f is the volumic filling ratio (Legoix et al., 2017).

Figures 15, 16, 17 compare in-mixer rheology experiments to the mesoscopic characterizations in the FT4 rheometer, with and without aeration. For needs of the comparison, the characteristic tip

speeds u_{ch} is limited to 35 mm.s⁻¹ in order to stay in the range of tip speed of the FT4 rheometer (Figure 14).



Figure 14: Range of comparable values between Triaxe® and FT4 experiments, power chart of semolina in Triaxe blender (f=0.83) is plotted.

The rheological experiments are sensitive to the apparent density of the powder. Indeed on these charts, we see that aerating the FT4 cell or pouring a smaller volume of powder in the mixer leads to a decrease of the power involved in agitation.

For the five powders, the values recorded in the pilot mixer are nearly of the same order of magnitude than for the mesoscale measurements. Semolina, fine lactose and talc behave in the mixer in the same way than in the aerated FT4 cell. Specific powers of lactose and sand give intermediate values between tests with and without aeration. For the highest filling ratio, the behavior is closer to FT4 rheometer measurements without air, meaning that there is a more compact flow inside the blender. We conclude from this, that the packing state in the mixer is mostly aerated by the action of the blades but can be locally compacted especially when cohesive powders as involved.



Figure 15: Specific power of semolina, dotted line representing meso-scale measurements for different air velocities, and crosses representing macro-scale measurements for different filling ratios.



Figure 16: Specific powers of fine lactose (top) and talc (bottom), dotted line representing meso-scale measurements for different air velocities, and crosses representing macro-scale measurements for different filling ratios.



Figure 17: Specific power of lactose (top) and sand (bottom), dotted line representing meso-scale measurements for different air velocities, and crosses representing macro-scale measurements for different filling ratios.

4.2. Mixtures M₁ and M₂

A similar P vs u_{ch} chart is given in figure 18, so as to examine the impact of the composition in cohesive powder in the mixtures (lactose or fine lactose) on the rheological behavior. The rheological signatures of the blends are free-flowing like when the content of lactose or fine lactose is small (up to 20%) and tend gradually towards a cohesive-like behavior when it is larger.



Figure 18: Semolina-lactose M_1 (top) and semolina-fine lactose M_2 (bottom) mixtures rheology with Triaxe[®] blender, for 30 kg of powder.

In order to study more accurately the influence of the composition of the mixtures on in-mixer rheology, we have plotted the power needed to stir powder as a function of the composition of the two kinds of mixtures M_1 and M_2 (Figure 19). Small (0.09 m.s⁻¹), medium (0.39 m.s⁻¹) and large (0.72 m.s⁻¹) values of u_{ch} have been chosen in order to cover the range of the agitation conditions in the mixer.

Power consumption does not evolve monotonously with lactose or fine lactose content. At the smaller speed of agitation, power does not vary significantly as a function of the lactose content in mixtures M_1 and M_2 . The power drastically decreases towards a minimum as lactose content increases at medium and large speeds. This minimum is obtained for 70% in M_1 and 50% in M_2 .



Figure 19: Evolution of the power in the Triaxe[®] blender against the lactose (top) and fine lactose (bottom) compositions in mixtures M_1 and M_2 .

These two limit values of lactose content for the minimum of power are close to the theoretical composition for the more compact packing porosity calculations of model 2, which suggests that the pore filling of coated particles occurs at 71 % and 47 % of cohesive powder proportion for M_1 and M_2 , respectively (Table 5). We assume that beyond these compositions, rheology is dominated by the contacts between lactose or fine lactose particles.

At these specific compositions the power does not depend on the agitation speed, as if the forces exerted on the blades were inversely proportional to the rotational speed. This corresponds to the minimum of Aerated Energy of agitation measured in the FT4 rheometer for a lactose content around 50%. Once again, the phenomenon is observed whatever the scale of observation is.

5. Conclusions

Different scales of observation and states of consolidation have been investigated by means of rheology experiments and characterizations of powders (Table. 6).

In their study, Leturia et al. (Leturia et al., 2014) defined three states of consolidation for powders to cover the usual range of stress level in processes. They are aerated conditions like in a fluidized bed, free-surface conditions like in a rotating drum, and packing conditions like during compaction. They can be associated to the characterization devices used in our study.

Table. 6: Representation of measurements under different scales and consolidations.

scale / consolidation	Aerated	Free-surface	Packed		
Microscopic		Porosity			
Mesoscopic	AE	CI, FRI	Cohesion		
Macroscopic		In-mixer rheology			

Porosity is a property that needs measurements of bulk/tapped and true densities, respectively performed at meso and microscopic scales under free-surface conditions. However, it has a physical signification at microscopic scale. This is the reason why it has been placed in table 6 as a microscopic characteristic: it describes the packing of particles and requires at least a measurement at microscopic scale.

AE, Carr Index, *FRI* are clearly measured at mesoscopic scale and aerated, free-surface conditions. The cohesion is placed here as a mesoscopic characteristic under packed conditions. It is a characteristic usually interpreted as the attraction strength between particles at microscopic scale, but this is measured with a shear cell at mesoscopic scale. The power measurement in the Triaxe[®] blender at macroscopic scale has been considered as a free-surface measurement, since globally the stress exerted on powder could be considered as small, and is not controlled, like it could be if air was injected or a normal stress applied like in the FT4 rheometer.

Mesoscopic scale: influence of the consolidation state

In order to compare the flow characteristics measured at different states of consolidations, the results obtained for the twenty-three powders have been plotted on figures 20, 21 and 22. As far as Carr Index is widely used to evaluate the flow properties of powders, it will be plotted as a reference. CI smaller than 15 mark out free-flowing powders and CI larger than 22 mark out cohesive ones.

In figure 20, two free-surface conditions measurements, FRI and CI, are compared. As expected, for all the mixtures and single powders investigated, the *FRI* is close to 1 for free flowing. Poor flowing powders exhibit a *FRI* greater than 1.5. The *FRI* and the Carr Index are well correlated, excepted for talc that shows a behavior out of the tendency of the other powders. This is probably due to the platelet shape of its particles, that allows the particles to reorganize themselves during tapping in the volumenometer.

Figure 21 compares cohesion measured under packed state conditions and Carr Index. As a global tendency, cohesion increases as Carr Index increases but results are scattered. For cohesive powders, with Carr Index greater than 15, the cohesion and the Carr Index do not rank the powders in the same order since values are too much dispersed. The Carr Index seems more appropriate to distinguish good flowing powders, whereas cohesion is more discriminating for intermediate and poor flowing powders.



Figure 20: Flow Rate Index measurements related to the Carr Index, for single powders and mixtures.



Figure 21: Cohesion at 4 kPa pre-shear linked with the Carr Index, for single powders and mixtures.

The Aerated Energy and Carr Index are compared on Figure 22. *AE* globally decreases with the Carr Index. For good flowing powders, the two characteristics seem well correlated. For powders with Carr Index greater than 15, the *AE* is dispersed around 100 mJ, meaning that the *AE* is not a good index to classify the flowability of this kind of powders.



Figure 22: Aerated Energy and Carr Index of powders and mixtures, for single powders and mixtures.

The four characterizations are in agreement to distinguish free-flowing and cohesive powders but fail to provide a coherent ranking between cohesive powders. At mesoscopic scale, the state of consolidation is a key parameter to take into account, especially for cohesive powders.

Multiscale analysis

Studies on microstructure of packing of mixtures M_1 and M_2 revealed that when lactose or fine lactose is filled into semolina, fine particles preferentially coat the largest before filling the interparticular porosity, and mixtures still demonstrate a free-flowing behavior. Beyond the critical composition that corresponds to the minimum of the packed porosity, the behavior of the powder at meso and macroscopic scales is dominated by the contacts between lactose or fine lactose particles. At the critical composition, mesoscopic Aerated Energy and macroscopic power reach a minimum as if particles were lubricated one by another.

The macroscale in-mixer rheological measurements of semolina, lactose, fine lactose, talc and sand are comparable to mesoscopic scale experiments. In the range of tip speed values we studied, the macroscopic specific power lays between aerated and non-aerated experiments on the FT4 rheometer. Different consolidation states may co-exist in our convective mixer, especially for cohesive powders:

- Compacted (ahead of the blades and furthermore with high filling ratio)
- Loose bed packing (flow of particles under shear of blades and free-surface flow)
- Aerated bulk (probably due to avalanches behind the blade crossing)

To compare characterizations at different scales, it should be appropriate to compare them with data obtained under similar states of consolidation.

Final remarks

This paper shows different techniques of characterization for powder flowability and rheological measurements that are performed under various consolidation states and at different observation scales. To compare these experiments and explain some phenomena at different scales, typical characteristics must be calculated, as the powder bed porosity, the tapped and the true densities, the power consumption of the apparatus and a characteristic velocity of its impeller.

A set of twenty-three powder has been involved is this study. Characterizations of the freeflowing powders at the different scales are in good agreement. In free-flowing powders, particles are flowing according to gravity, they are not really sensitive to local aeration or compaction. At the opposite, cohesive powders are difficult to rank from different types of measurements because the compaction state of the bed is dominant for their characterization. Their flowability depends strongly on microscopic characteristics as shape or bed structure. It should be characterized by comparing the results of at least two methods involving different consolidation states. In this case, if we want to assess process efficiency, it is important to characterize them in the same range of constraints as in the process.

Moreover, macroscopic rheological measurements in the pilot planetary blender have been compared with mesoscopic measurements in a FT4 rheometer. The specific powers calculated in the blender for single powders are in-between aerated and non-aerated experiments on the FT4 rheometer. As far as the consolidation state is not homogeneously distributed in the entire volume of the mixer, local states in the blade neighborhood should control rheology. Furthermore, in the case of blends of semolina and lactose, the comparison between in-mixer experiments and measurements of flowability highlighted that structured mixes have a special rheology that should be studied into details. A better insight on the effect of a blade moving through particles is needed, especially for mixing purposes.

There are two main issues of perspectives. The first one is to work, at the scale of a mixer, in a transparent tank in order to link flowing regimes and flowing mechanisms to the rheological measurements. It will be performed in a near future with a laboratory convective bladed blender built for this purpose. The second one should be to go further into mixtures rheology at meso and macroscopic scales, by studying different structured mixtures and their local segregation nearby the blades.

Acknowledgements

We would like to thank Laurent Devriendt and Manon Bru, respectively a technician and an internship student at RAPSODEE research center, for their contribution in powder characterization.

Appendix 1

Powder	ρ _b (kg.m ⁻³)	$\rho_t (kg.m^{-3})$	Carr Index	
			(%)	
Semolina	679	720	5.8	
Lactose	661	795	16.9	
Fine lactose	495	638	22.5	
Talc	501	848	40.9	
Sand	887	1222	27.4	
M ₁ (10:90)	724	792	8.6	
M ₁ (20:80)	761	840	9.4	
M ₁ (30:70)	793	901	12.0	
M ₁ (40:60)	817	935	12.6	
M ₁ (50:50)	781	946	17.4	
M ₁ (60:40)	761	929	18.1	
M ₁ (70:30)	744	900	17.3	
M ₁ (80:20)	695	864	19.6	
M ₁ (90:10)	685	824	16.9	
M ₂ (10:90)	704	766	8.1	
M ₂ (20:80)	706	816	13.5	
M ₂ (30:70)	698	854	18.2	
M ₂ (40:60)	681	859	20.7	
M ₂ (50:50)	655	833	21.4	
M ₂ (60:40)	599	785	23.6	
M ₂ (70:30)	582	741	21.5	
M ₂ (80:20)	517	697	25.9	
M ₂ (90:10)	482	660	26.9	

Table 7: Powder bulk density, tapped density and Carr Index. Mixtures properties are noted by wt%: M_1 (lactose:semolina) and M_2 (fine lactose:semolina).

Appendix 2

Calculation of ρ_m for the case of a mixture of *n* components (eq. 3).

Density of mixture = $\frac{Total mass of mixture}{Sum of volumes occupied by each component}$ $\rho_m = \frac{m_{tot}}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{x_i \cdot m_{tot}}{\rho_{pi}}\right)}$ $\rho_m = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{x_i}{\rho_{pi}}\right)}$

Calculation of ρ_1 for the case of a packing of big particles filled with small particles (eq. 5).

Total volume of powder mixture =
$$\frac{Total mass of big grains}{Density of big grains bed}$$

 $V_{tot} = \frac{m_{tot}(1-x)}{\rho_{tb}}$
 $\rho_1 = \frac{\rho_{tb}}{(1-x)}$

Calculation of ρ_1 for the case of a packing of small particles with inclusions of big particles (eq. 5), using eq. 3.

$$\rho_1 = \frac{1}{\frac{1-x}{\rho_{pb}} + \frac{x}{\rho_{ts}}}$$
$$\rho_1 = \frac{\rho_{ts} \cdot \rho_{pb}}{(1-x)\rho_{ts} + x \cdot \rho_{pb}}$$

Calculation of ρ_1 for the case of a packing of pore filling of a coated particle packing, adapted from the pore filling equation without coating (eq. 8).

$$\rho_2 = \frac{Tapped \ density \ of \ coated \ particles \ bed}{1 - fraction \ of \ small \ particles \ in \ pores}$$

$$\rho_2 = \frac{\rho_{tc}}{1 - (x - x_c)}$$

The density of a bed of coated particles can be calculated with the hypothesis of equality of porosity between a packing of big grains and a packing of big coated grains (see eq. 8).

Porosity of coated particle bed = Porosity of big particle bed

$$1 - \frac{\rho_{tc}}{\rho_{pc}} = 1 - \frac{\rho_{tb}}{\rho_{pb}}$$

$$\rho_{tc} = \rho_{pc} \frac{\rho_{tb}}{\rho_{pb}}$$
but $\rho_{pc} = \frac{1}{\frac{(1 - x_c)}{\rho_{pb}} + \frac{x_c}{\rho_{ps}}} = \frac{\rho_{pb} \cdot \rho_{ps}}{(1 - x_c)\rho_{ps} + x_c \cdot \rho_{pb}}$

$$\Rightarrow \rho_{tc} = \frac{\rho_{ps} \cdot \rho_{tb}}{(1 - x_c)\rho_{ps} + x_c \cdot \rho_{pb}}$$

References

Ben Aïm, R., Le Goff, P., 1968. Effet de paroi dans les empilements désordonnés de sphères et application à la porosité de mélanges binaires. Powder Technology.1, 281-290

Bridgwater, J., 1976. Fundamental powder mixing mechanisms. Powder Technology. 15, 215-236.

Carr, R., 1965. Evaluating flow properties of solids. Chem. Eng. J., 72, 163-168.

Delaplace, G., Thakur, R., Bouvier, L., André, C., Torrez, C., 2007. Dimensional analysis for planetary mixer: Mixing time and Reynolds numbers. Chem. Eng. Sci., 62, 1442-1447.

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

Freeman, R., 2007. Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders-A comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell. Powder Technology, 174, 25-33.

Geldart, D., 1973. Types of gas fluidization. Powder Technology, 7, 285-292.

Gioia, A., February 1980. Intrinsic Flowability: A New Technology for Powder-Flowability Classification, Pharmaceutical Technology Magazine.

Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux H., 2017. Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender. Powder Technology, 305, 609-619.

Leturia, M., Benali, M., Lagarde, S., Ronga, I., Saleh, K., 2014. Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods. Powder Technology, 253, 406-423.

Schultze, D., 2008. Powders and bulk solids, Springer-Verlag, Berlin Heidenberg.

Thomas, G., Ouabbas, Y., Grosseau, P., Baron, M., Chamayou, A., Galet, L., 2009. Modelling the mean interaction forces between powder particles. Application to silica gel-magnesium stearate mixtures. Appl. Surf. Sci., 255, 7500-7507.

Chapitre IV : Etude expérimentale et modélisation d'un mélangeur convectif prototype

Le chapitre III a mis en évidence le comportement rhéologique bien différent entre des poudres à écoulement libre et des poudres cohésives, mais aussi l'influence de la proportion en poudre cohésive dans un mélange, qui peut être expliquée par la structure microscopique de l'empilement des particules. Dans l'objectif de proposer un modèle de mélange des poudres dans le mélangeur planétaire Triaxe[®], les constatations rhéologiques effectuées précédemment sont insuffisantes. Des observations et des mesures directes des écoulements sont nécessaires.

C'est l'objet du chapitre IV.1, où des régimes d'écoulement doivent être identifiés. Pour cela, un mélangeur convectif polyvalent a été développé dans notre laboratoire. Il présente la particularité d'être transparent, ce qui est indispensable pour identifier les régimes d'écoulement avec des moyens techniques relativement simples comme la photographie. Ce prototype permet d'effectuer des mesures de rhéologie car il est équipé d'un couplemètre. Sa capacité à faire de telles mesures et leur extrapolation au mélangeur Triaxe[®] seront aussi évaluées.

Résumé du Chapitre IV.1

Analyse de l'écoulement de poudres et rhéologie en procédé dans un mélangeur convectif horizontal à pales inclinables

Un mélangeur convectif prototype, élaboré et construit spécialement pour ce travail, permet d'étudier la rhéologie des poudres selon différentes configurations géométriques. La configuration choisie ici est une cuve horizontale et quatre pales rectangulaires. Deux inclinaisons de pales $(0-33^{\circ})$ et trois taux de remplissages sont étudiés pour deux différentes poudres : une à écoulement libre (semoule) et une cohésive (lactose). Pour la plus petite vitesse d'agitation, le régime d'écoulement de la poudre est le roulement, caractérisé par des avalanches en surface du lit de poudre. Pour les vitesses d'agitations plus élevées, le régime d'écoulement est la cataracte, avec des particules projetées qui suivent le mouvement des pales. Ces régimes d'écoulements sont identifiés pour les deux poudres et ne dépendent pas du taux de remplissage. Les mesures rhéologiques montent que l'inclinaison des pales a peu d'impact sur la puissance mécanique nécessaire pour agiter la poudre à écoulement libre. Par contre elle a un impact visible pour les poudres cohésives, spécialement pour les taux de remplissages élevés. Une corrélation entre le nombre de puissance et le nombre de Froude est établi et comparée à des résultats de travaux précédents effectués avec une technologie différente. Elle est de la forme : N_p = a.Fr^b, les coefficients *a* et *b* dépendant du type de poudre et du régime d'écoulement.

IV.1. Analysis of powder flow and in-system rheology in a horizontal convective mixer with reclining blades

Léonard Legoix, Cendrine Gatumel, Mathieu Milhé, Henri Berthiaux

Université de Toulouse, Centre RAPSODEE, CNRS UMR 5302, Ecole des Mines d'Albi, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

Article info

Abstract

Submitted to Particulate Science and Technology: An International Journal

Keywords

Powder mixing Convective blender Rheology Flow regimes Cohesive powders A prototypal convective mixer, designed and built for this work, allows investigating powder rheology under various geometrical configurations. The configuration chosen here is a horizontal vessel with four rectangular blades. Two blade inclinations (0-33°) and three filling ratios are studied for two powders of different kind: a free-flowing powder (semolina) and a cohesive powder (lactose). For the smaller agitation speeds, the flow regime of the powder is rolling, and is characterized by surface powder avalanches. For greater agitation speeds, the flow regime is cataracting, with particle projections that follows the blade movement. These flow regimes are identified for both powders and do not depends on the filling ratio. Rheological measurements evidence that the blade inclination has few impact on the mechanical power needed to stir the free-flowing powder. It has an impact observable on cohesive powders, especially for high filling ratios. A correlation between the power number and the Froude number is established and compared to previous results obtained on a different technology. It is of the form: $N_p = a.F_r^b$. The dependencies of the coefficients a and b on the powder type and on the flow regime are quantified.

1. Introduction

Powder blending is a key operation for many industries, such as pharmaceutical, agro-food industries, construction or metallurgy. Technologies to mix powders can be divided into two groups: tumbling blenders for which the rotation of the vessel provokes the motion and subsequent mixing of the powder bed, and convective blenders for which powder is put into motion by the action of an impeller inside a fixed tank. For free-flowing powders of different particle sizes, the avalanching created by most of tumbling blenders enhances segregation (Moakher et al., 2000), as well as it favors the aggregation of the particles for cohesive systems. Despite some difficulties that may arise

in their cleaning procedures, the use of convective blenders is now generalized in the industry, because of their polyvalence to process any kind of systems. In the case of cohesive systems, they are the most recognized alternative for their ability to break agglomerates and create a better mixture at the smallest scale.

Convective blenders can be operated either in continuous or batch regimes, the first one gaining more ground every day, as a way to enhance productivity in factories. However, batch mixing processes are still the rule, because of their reliability to assess batches of products. For years, batch convective mixers have been designed through a simple principle: impellers mounted on a horizontal shaft rotating at a fixed speed, the main technology being the Lödige[®] mixer. This blender has been studied through experiments and simulations with powders of different shapes (Cleary, 2013; Laurent and Cleary, 2012). Its impellers are designed like a ploughshare that penetrates into the powder bed progressively and create side flows. Others complex designs of impellers exists like ribbons or screws, but blades are simpler and processed in different technologies of powder blending, like high shear mixers (Knight et al., 2001) or the Triaxe[®] planetary blender (Demeyre, 2007).

In the scientific literature, several papers studied the action of various blade systems on the powder with a physical approach, so as to get a better understanding of powder flow at the smallest scale. The action of a single flat rectangular blade over a granular bed has been studied since the 1960's in various works, through camera observations and torque measurements (Bagster and Bridgwater, 1969; Bagster and Bridgewater, 1967). More recently, it has been investigated with the help of high velocity camera acquisition, and analysis by Particle Image Velocimetry (Radl et al., 2012) as well as modelling by Discrete Element Method (Chandratilleke et al., 2012; Siraj, 2014). These studies were focused on the influence of different parameters on rheology, such as blade angle or shape, blade speed or blade position inside the powder bed. They proved that a recirculation zone on the surface in front of the blade exists and its size depends on blade position, angle and velocity. This recirculation is a helpful mechanism in the general blending process. These fundamental studies, that are essential to understand how powder moves around a moving obstacle, are of limited interest since they concern the flow over a blade in two dimensions surrounded by transparent lateral walls along the flow direction. Indeed this is not the case in a blending process that uses the motion of numerous impellers that can cover the vessel in the three dimensions of space. This is the reason why mixing or rheological studies, performed during processing can add valuable information that can be applied directly in the industry.

At the level of the process, research works have been concerned with horizontal convective blenders (Laurent and Bridgwater, 2002; Malhotra et al., 1990a, 1990b, 1988; Malhotra and Mujumdar, 1990) and also vertical convective blenders (Chandratilleke et al., 2009; Conway et al., 2005; Halidan et al., 2014; Havlica et al., 2015; Makishima and Shirai, 1968; Remy et al., 2011, 2010; Zhou et al., 2004). These papers provide valuable information about powder flow, rheology and mixing kinetics. However they are usually confined to free-flowing systems and mixers operating in single flow regimes.

The existence of different flow regimes and their impact on the prevalence of certain mixing mechanisms and mixing kinetics has been studied for tumbling blenders (Mellmann, 2001 and Mayer-Laigle, 2012). It has been found that their knowledge is essential in the scaling-up procedure of mixers, as dynamics or kinematics similarities are never considered in the conception of powder mixers. The present work aims at identifying and studying flow regimes in convective blenders and can be placed in the continuity of these previous studies. For this, a transparent polyvalent prototype equipped with a torque measurement system, has been designed. It aims at identifying the impact of different geometrical parameters, such as the number of blades, their inclination, the vessel's volume, the positioning of the blade system inside the vessel, but also the inclination of the tank itself. Different kind of powders can be studied according to their rheological characterization (freeflowing or cohesive) that can be verified in-situ. This work is restricted to the horizontal position of the mixer with four reclining blades mounted on the shaft and is divided into three main parts. First, powder motion and flow will be characterized through simple observation in order to identify the flow regimes in the blender. Then, a focus will be made on the mechanical power required to stir powders of different types, with different blade angle and different filling ratio though process rheometry. Finally, a general method to express the rheological measurements will be suggested for scale up calculations.

2. Materials and methods

2.1. Powders considered

Two powders have been studied, a free flowing one and a cohesive one. The free flowing powder is fine semolina (Le Renard) and the cohesive powder chosen is lactose (Granulac140). Both particles are of polygonal shape, as shown by SEM pictures in figure 1.



Figure 1: SEM pictures of semolina (a) and lactose (b).

Table 1 gathers the main properties of these two powders, d_{50} being the median diameter measured by LASER diffraction with a Mastersizer3000 (Malvern) under an air pressure of 3.5 bar. The particle true density ρ_p has been measured thanks to an Accumulator[®] Pyc 1330 (Micromeritics) with the 10 cm³ cell. The bulk and tapped densities ρ_b and ρ_t have been measured with a volumenometer (Erweka[®]) for a powder mass of 110 g. The tapped density has been measured after 1000 taps, which is enough to be sure that the powder cannot be more packed by the apparatus since the volume stabilizes around 300 taps. The Carr Index for semolina is smaller than 15 %, which makes it an easy flowing powder. For lactose, the Carr Index is greater than 15 % which is characteristic for powders that do not flow easily (Leturia et al., 2014). This attests that semolina can be considered as a free-flowing powder, whereas lactose is a cohesive system.

Table	1:	Powder	properties
-------	----	--------	------------

Powder	d ₅₀ (µm)	$\rho_p (kg.m^{-3})$	$\rho_b (kg.m^{-3})$	$\rho_t (kg.m^{-3})$	CI (%)
Semolina	312	1463	679	720	5.8
Lactose	61	1533	661	795	16.9

2.2. Convective blender prototype

A prototypal convective mixer has been designed and built in order to get a better understanding of powder flow regimes and governing mechanisms under very different geometrical configurations. The cylindrical tank, delimited by two lateral walls, is made of PMMA because of its mechanical resistance and so as to observe the progression of the mixing process (Figure 2). The vessel diameter is 24 cm, blade to wall distance is 1 mm and blade width is 6 cm. The rotational speed can be varied between 2 and 20 rad.s⁻¹ thanks to a gear-motor. A torque-meter allows recording the motor torque between 0 and 15 N.m. Rotational speed and torque are acquired thanks to a Labview[®] program that records the torque at 1 Hz. The powder can be loaded thanks to a rectangular aperture in the cylinder.



Figure 2: Blending prototype showing the four rectangular blades.

The mixer has been conceived as a multi-functional tool, so as to study the influence of four parameters: the number of blades, the blade angle, the vessel angle and the position of the walls with respect to the stirring system.

2.2.1. Blades

Between 1 and 4 blades can be mounted on the shaft, in any of the four locations available as shown in figure 3. The distance between each blade tip and the vessel is about *1 mm*. The blade angle α with respect to the shaft can also be adjusted blade by blade, between 0° and 180° (Figure 3). In the present study, the four blades will be mounted on the shaft, all at the same angle. Two angles will be studied: 0° and 33° . For $\alpha = 0^{\circ}$, the blades will be qualified as "straight blades" and for $\alpha = 33^{\circ}$, they will be qualified as "reclined blades".



Figure 3: The four blade positions in the polyvalent bladed blender, side view (a) and blade angle (b).

2.2.2. Vessel

The vessel angle can be adjusted with the spinning table on which the vessel, the torque-meter and the motor are fixed (Figure 4). The vessel angle can be chosen between -90° and 90° , with the angle orientation as shown in figure 4. In this study, the vessel angle will be fixed at 0° , placing therefore the mixer in the horizontal position.



Figure 4: Vessel inclination (M: motor, T: torquemeter).

2.2.3. Walls

The powder remains inside the cylindrical vessel thanks to two disc-shaped lateral walls. Each wall is equipped with o-rings, giving a good sealing of the vessel to fine powders. They both can be placed everywhere on the shaft on each parts of the blades, so that the agitation device is not

necessarily centered between these walls (Figure 5). For this work, the blades are centered at a wallblade distance of *10 cm*.



Figure 5: Example of lateral walls positioning in the prototype.

2.3. Experimental procedure

As stated above, the torque-meter allows performing in-process rheometry by measuring the torque exerted on the shaft during stirring. Each experiment begins by running the blades 5 min at a speed of 8 rad.s⁻¹ in the empty vessel. Torques are then measured at a speed increasing from 3 to 18 rad.s⁻¹ with a 3 rad.s⁻¹ step. For each speed, the agitation is maintained during 5 to 10 min to be sure that the torque is stabilized, after which its mean value is calculated over 1 min and will be considered as the recorded empty torque. Then, the vessel is filled with the powder studied and after a conditioning step that lasts 5 min at 8 rad.s⁻¹, the same torque measurement procedure is repeated. For all studies, 3 filling ratios *f* are investigated: 0.42, 0.63 and 0.83. These are calculated using the bulk density of the powder ρ_b [kg.m⁻³], the mass of powder m_p [kg] and the volume of the blender V_{tank} [m³] which is about 8.851 (eq. 1).

$$f = \frac{m_p}{\rho_b \, V_{tank}} \qquad \qquad \text{eq. 1}$$

The power consumption *P* [W] can be calculated knowing the blade rotational speed ω [rad.s⁻¹], the empty torque T_0 [N.m] and the torque with filled vessel T_f [N.m] (eq. 2).

$$P = \omega \left(T_f - T_0 \right) \qquad \text{eq. 2}$$

Dimensional analysis of this process leads to the definition of different numbers, such as the Froude number F_r and the power number N_p . These two numbers can be calculated with g [m.s⁻²], ω [rad.s⁻¹], the blade radius R [m], ρ_b [kg.m⁻³] and P [W] (eq. 3 and 4). This approach is useful for scale-up calculations, or to predict power consumption at industrial scale, thanks to lab-scale or pilot-scale experiments that require less powder and consume less energy. With the rotational speeds considered in this work, the Froude numbers involved are 0.1, 0.4, 1.0, 1.8, 2.8 and 4.0.

$$F_r = \frac{R.\,\omega^2}{g} \qquad \qquad \text{eq. 3}$$

$$N_p = \frac{P}{\rho_b \omega^3 R^5} \qquad \qquad \text{eq. 4}$$

The different process parameters of each experiment are gathered in table 2. For these 12 combinations of powder cohesion, blade inclination and filling ratios, the 6 rotational speeds listed above, ranging from 3 to 18 rad.s⁻¹, will be studied.

Powder		Semolina				Lactose						
Blade angle (°)	0		33		0		33					
f	0.42	0.63	0.83	0.42	0.63	0.83	0.42	0.63	0.83	0.42	0.63	0.83
ω (rad.s ⁻¹)	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18	3-18
Fr	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4	0.1-4

Table 2: Powder and process parameters investigated.

Flow observations have been performed using a Canon 650D camera with a 18-55 mm lens. The same rotational speeds and filling ratios are studied as for rheology measurements. An exposure time of the digital sensor of 5 ms is used, which is the smallest duration available with the photoflash for this device. This is fast enough to strap up the powder flow, even for greatest rotational speeds, which is useful to observe flow regimes. All the pictures are taken in the front view of the blender, meaning that the vector of the angular speed goes from the left to the right. The direction of the rotation is reminded on each figure with a flat white arrow, while black arrows highlight powder flows.

2.4. Attrition and temperature

Attrition and temperature elevation have been measured to ensure that powders properties do not change during and after the mixing operation. A size distribution analysis has been made after one typical series of measures with various rotational speeds (3, 6, 9, 12, 15, 18 rad.s⁻¹) at 10 minutes of agitation for each speed. The powder was sampled inside the zone agitated by the blades, the motor being turned off. It can be observed in figure 6 that the particle size distributions described by the three characteristics diameters d_{10} , d_{50} and d_{90} are almost the same.



Figure 6: Semolina (a) and lactose (b) characteristic sizes before and after stirring.

The temperature was measured near the blades just after the stirring operation described before. The ambient temperature of the laboratory was about 22°C and the powder temperature reached 27°C. This observable temperature elevation is not enough to influence significantly the torque exerted on blades.

3. Identification of powder flow regimes

3.1. Free-flowing material flow

Qualitative observations of different flow regimes in the agitated zone of the blender, were made thanks to the pictures taken with the camera. Two main flow regimes have been distinguished for the free-flowing particulate system: the rolling regime and the cataracting regime. These names are given in analogy with those employed for tumbling blenders operating with free flowing material (Figure 7). The classification given by Mellmann (Mellmann, 2001) can be adapted for the convective blender, since the powder flow has some similarities. Concerning the rolling regime, the powder follows the walls or the blades until it reaches a vertical position, and then rolls down by

avalanches. At higher speeds, a cataracting regime can be observed. Once the particles are not in contact with the walls or the blades, they follow the same trajectory and do not roll by avalanching. This is characterized by projections of particles in the air.

Basic form	Slipping	; motion	Cascad	ing ("tumbling")	Cataracting motion		
Subtype	Sliding	Surging	Slumping	Rolling	Cascading	Cataracting	Centrifuging
Schematic	\bigcirc						$\overline{\bigcirc}$
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	$Fr \ge 1$
Filling degree f [-]	f < 0.1	f > 0.1	f < 0.1 f > 0.1		f > 0.2		
Wall friction coeff. $\mu_w[-]$	$\mu_w < \mu_{w,c}$	$\mu_w \geq \mu_{w,c}$	$\mu_{w} > \mu_{w,c}$			$\mu_w > \mu_{w,c}$	
Application	no u:	se	Rotary kilns and reactors; rotary dryers and coolers; mixing drums			Ball mills	no use

Figure 7: Tumbling blender flow regimes for free-flowing powders as reported by Mellman (2001).

The Froude number, that compares the centrifugal acceleration with gravity, helps characterizing the flow regime that takes place in the blender. Knowing the rotational speed ω [rad.s⁻¹] and the distance from the center of the shaft to the blade tip (value close to *R*), the maximal centrifugal acceleration provided by blades can be calculated and divided by the standard gravity *g* (eq. 3). Pictures taken while semolina is stirred show that when the Froude number is smaller than 1, the flow regime is rolling. This can be observed especially when the blade goes from a horizontal position to a vertical position, and is off the powder bed (Figure 8). The powder taken by a blade rolls by avalanches to the next blade, since the centrifugal force is less influent than gravity. Conversely, when the Froude number is greater than 1, the powder flow regime is cataracting. This is easy to observe since the powder is projected by the blade instead of rolling in front of it (Figure 9).





Figure 8: Observation of the rolling flow regime for semolina inside the convective blender equipped with straight blades, at Fr=0.1 a,d f=0.63. The white and black arrows show respectively blade rotation and powder motion.





Figure 9: Centrifuging flow regime of semolina inside the convective blender equipped with straight blades, at *Fr*=1.0 and *f*=0.63 (left), and at *Fr*=1.8 and *f*=0.83 (right).

For this flow regime determination, observations are characteristic of the flow in front of the blades, at the free-surface level. Indeed, for a filling ratio of 0.42, 0.63 and 0.83, a Froude number of 1 is always the border of a flow regime change (Table 3).

Table 3: Map of flow regimes for s	semolina agitation with	h the convective blender
------------------------------------	-------------------------	--------------------------

f \ F _r	0.1	0.4	1.0	1.8	2.8	4.0
0.42	Rolling	Rolling	Cataracting	Cataracting	Cataracting	Cataracting
0.63	Rolling	Rolling	Cataracting	Cataracting	Cataracting	Cataracting
0.83	Rolling	Rolling	Cataracting	Cataracting	Cataracting	Cataracting

The influence of blade angle has also been observed. The same conclusions as for straight blades can be drawn: for a Froude number smaller than 1, the flow regime is rolling and when it is greater than 1, the flow regime is cataracting. However, if the blade angle chosen here do not change the flow regime, the powder flow is obviously different in other ways. For instance, an asymmetric axial flow has been identified. This can be observed in the front views of figure 10, in which the powder moves axially from the right to the left of the vessel: blades throw the powder to a preferential direction, depending on the blade inclination. The pictures taken with reclined blades show that when the Froude number is too small, the powder can fall on the next blade, and part of it rolls down to the right. For higher blade speeds, with a Froude number greater than 1, the lateral projection of powder is more efficient since all the powder moved by the blades goes to the same lateral way, on the left. These qualitative observations highlight the central role of Fr in the transport mechanisms involved in the stirring of free-flowing powders.



Figure 10: Rolling flow regime (left) and cataracting flow regime (right) of semolina inside the convective blender equipped with reclined blades.

3.2. Cohesive powder flow

Experiments carried out with lactose show the same behavior to what concerns Froude numbers. A rolling regime and a cataracting regime can be identified when the Froude number is smaller or greater than 1 respectively. As for semolina, the filling ratio has no influence on these regimes.

However a difference between semolina and lactose flow can be detected in the rolling regime. For semolina, all the powder carried by blades rolls down, but for lactose, the powder avalanching occurs by blocks that fall one after the other. This is due to cohesion forces between particles that do not allow them to fall separately (Figure 11). Concerning reclined blades, as for semolina, the same flow regimes of rolling and cataracting are observed, with an axial asymmetry of the flow (Figure 12). Concerning the rolling regime, the avalanche on the next blade of a part of the powder swept by the previous blade, is also observed.





Figure 11: Consecutive falling of lactose powder by blocs, at Fr=0.1 and f=0.42



Figure 12: Rolling flow regime (left) and cataracting flow regime (right) of lactose inside the convective blender equipped with reclined blades.

4. In-mixer rheology

Power consumption has been recorded for the six rotational speeds ω , the three filling ratios f studied and the two particulate systems. Each experiment has been repeated twice to evaluate measurements repeatability. The deviation of the power P_1 and P_2 between two identical experiments can be calculated with equation 5.

$$\Delta P = \frac{|P_1 - P_2|}{P_1}.100$$
 eq. 5

The data are reproducible for semolina with straight blades, with ΔP values smaller than 8 % (Table 4). When blades are reclined, data are less reproducible for semolina with values comprised between 0.4 to 20.1 %. Concerning lactose, values of ΔP can reach 45.1 % for straight blades and 57.0 % for reclined blades.

Powder	Blades	f	3 rad.s ⁻¹	6 rad.s ⁻¹	9 rad.s ⁻¹	12 rad.s ⁻¹	15 rad.s ⁻¹	18 rad.s ⁻¹
Semolina	Straight	0.42	6.5	7.2	7.4	5.1	1.1	1.8
		0.63	3.2	3.7	0.3	1.1	1.3	1.6
		0.83	0.4	4.2	2.5	2.0	0.6	0.6
	Reclined	0.42	13.5	16.2	20.1	2.3	4.9	4.8
		0.63	7.4	4.9	3.7	0.4	1.5	1.7
		0.83	7.1	7.0	3.6	15.4	14.3	0.1
Lactose	Straight	0.42	7.7	8.4	8.3	0.8	10.9	11.2
		0.63	20.9	27.6	27.2	19.7	19.6	4.4
		0.83	17.9	45.1	42.0	18.4	15.8	8.6
	Reclined	0.42	11.1	7.7	57.0	28.2	30.4	11.8
		0.63	10.0	3.8	3.1	2.1	3.6	3.9
		0.83	4.4	5.6	20.3	12.8	11.2	6.8

Table 4: Deviations of the power measurements (%).

4.1. Influence of blade inclination

Figures 13a, 13b and 13c report the power consumption of the system for semolina, as a function of the rotational speed of the impeller for the three filling ratios investigated. For all the cases studied, P increases with ω , as expected.

The values of the power are close to each other whether the position of the blades is, especially at small rotational speeds (rolling regime). While promoted by the rotation of the blades, the flow of such particulate systems is still guided by the individual behavior of the particles rather than by the process conditions themselves. As a result, the effect of the blade angle is negligible in this regime. For the two highest speeds considered (cataracting regime), it seems that the power is slightly greater for straights blades than for reclined ones. This may indicate that the more vigorous action of the impeller in the cataracting regime has a deeper impact on powder flow, and as a result the conditions under which the process runs, such as blade angle, is about to be denoted.



Figure 13: Power requirements to stir semolina in the convective blender according to blade angles, for f=0.42(a), f=0.63(b), f=0.83(c).

The agitation of lactose has been investigated in the same way, the results being given in figures 14a, 14b and 14c. The power consumption is approximately three times smaller for such a cohesive system than for a free-flowing powder. Here, particle-particle interaction helps counteracting particle weight and facilitates the motion of the blades that displaces blocks of powder. Power is also greater for straight blades than for reclined blades, especially for medium-to-high rotational speeds. The presence of a 33° blade angle induces shear of the powder bed in the same direction as that of the blade motion itself. This is more efficient to displace a cohesive system than a

flat angle that offers its whole surface to the bulk. With a greater powder mass or filling ratio (i.e. f=0.83), the difference is all the more marked and favors the use of reclined blades to stir cohesive systems in the present horizontal equipment configuration. In the cataracting regime, for rotational speeds above 15 rad.s⁻¹, the material being pushed as blocks of powder, less energy will be required for reclined than for straight blades.



Figure 14: Power requirements to stir lactose in the convective blender according to blade angles, for *f*=0.42(a), *f*=0.63(b), *f*=0.83(c).

4.2. Influence of filling ratio

The effect of the filling ratio f on the power P can be seen on figures 15a and 15b, only for the case of the reclined blades, for both particulate systems.

For the free-flowing powder, the power increases with the filling ratio, whatever the rotational speed. As no compaction of such a system is expected, the bulk density does not change and the filling ratio is proportional to the powder weight (eq. 1). Figure 15a therefore reflects directly the fact

that moving a greater powder mass requires a greater power consumption, in particular if this has to be done at a high speed.

For the cohesive powder, figure 15b reflects a notably different tendency. Indeed, if the power increases between the first two filling ratios (0.42 and 0.63), it decreases for the highest value of f in the majority of the speeds considered. This can be attributed to a local decrease of bulk density of the powder conveyed by the blades or in their vicinity. This is more likely to be noted when the blender is filled and blades are immerged in the system, as the level of stress in the bulk is greater.



Figure 15: Evolution of power consumption with filling ratio, according to different rotational speeds in the reclined blades case for either semolina (a) and lactose (b).

5. Dimensionless representation

The previous results of power measurements can be represented thanks to dimensionless numbers and correlations. The power is expressed as a power number N_p and the agitation speed as a Froude number F_r . As reported for powder stirring experiments in other studies of convective powder blenders (C. André et al., 2012; Knight et al., 2001), the typical correlation that links those numbers is of the following form (eq. 6):

$$N_p = a. F_r^b \qquad \qquad eq. 6$$
5.1. Establishment of a general correlation

The dimensionless correlation for semolina, with straight blades and a filling of 0.42, is given as an example in figure 16. In this, the logarithms of dimensionless numbers are plotted and linear fits are performed in accordance with eq. 6. This representation shows that for Froude numbers smaller than 1 and for Froude numbers greater than 1, separated correlations should be considered. The slope represents the *b* coefficient, the intercept being ln(a). The squared coefficients of variation, both greater than 0.99, demonstrate that the power correlation between N_p and F_r is verified. Concerning Froude numbers smaller than 1, meaning that the flow regime is rolling, the coefficient *b* is close to -1 and the coefficient *a* has a value about 0.65. For the cataracting regime, *b* is close to -0.7 and *a* value is about 0.63. The coefficient *b* is therefore significantly different between the two regimes, while the coefficient *a* can be said to be the same.



Figure 16: Representation of the correlation between Fr and Np in the prototype equipped with straight blades, f=0.42, semolina case.

Similar correlations have been investigated for the other filling ratios and blade angle, still for the free-flowing material (Table 5). The coefficient b can be said to be independent of the filling ratio, and practically independent of the blade angle in the rolling regime for which its value is close to -1. It is quite sensitive to the flow regime in general, its value being close to -0.7 in the cataracting regime for straight blades and -0.8 for reclined blades, therefore marking a light impact of the blade angle that may be the transcription of the flow asymmetry that has been qualitatively evidenced. To what concerns coefficient a, it is particularly insensitive to the flow regime, and to a smaller extent to the blade inclination. Its main acting parameter is undoubtedly the filling ratio that can triplicate its value while f is only doubled.

Table 5 also gathers similar results for the cohesive material. The coefficient b is globally always equal to -1 in the rolling regime, except for the greatest filling ratio and when the blender is equipped with reclined blades (equals to -1.4). In the cataracting regime, while the correlation is of a regular quality, b is still close to -0.7 for straight blades and -0.8 for reclined blades. Once again, a filling ratio of 0.83 for reclined blades apparently drives to a different situation. As for semolina, the coefficient *a* is remarkably independent on the flow regime and the blade inclination, its value being the fact of the filling ratio, and the type of material: approximately three times less important for the cohesive powder than for the free-flowing powder.

Globally, it can be said that the coefficient a depends on the powder (kind, mass), whereas the coefficient b is more sensitive to a change in flow regime.

parameters			b		a		\mathbf{R}^2		
powder	blades	f	rolling	cataracting	rolling	cataracting	rolling	cataracting	
semolina	straight	0.42	-0.98	-0.71	0.65	0.63	0.999	0.991	
		0.63	-0.95	-0.67	1.15	1.18	0.999	0.999	
		0.83	-0.89	-0.75	1.84	1.79	0.999	0.978	
	reclined	0.42	-0.92	-0.84	0.64	0.67	0.991	0.992	
		0.63	-0.93	-0.79	1.30	1.32	0.998	0.998	
		0.83	-0.86	-0.81	2.12	1.99	0.997	0.942	
	straight	0.42	-0.99	-0.51	0.22	0.22	0.999	0.986	
		0.63	-0.96	-0.72	0.50	0.51	0.998	0.991	
lactose		0.83	-1.18	-0.58	0.41	0.44	0.985	0.952	
	reclined	0.42	-1.08	-0.69	0.24	0.24	0.999	0.995	
		0.63	-1.07	-0.84	0.47	0.49	0.998	0.999	
		0.83	-1.40	-0.49	0.33	0.33	0.999	0.935	

Table 5: Correlation $N_{p}=a.F_{r}^{b}$ coefficients for powder agitation with the convective blender.

5.2. Comparison with a planetary blender

The planetary blender Triaxe[®] has been used in previous work on powder blending and rheology by our research team (Demeyre, 2007; André et al., 2014, Legoix et al., 2017). This blender is characterized by a dual movement of rotation and gyration that moves the blade support around the vessel. The suppression of the gyration leads to a movement of the four blades close to the rotation provided by the polyvalent blender studied in this paper. The ratio between the blade width L_b ' and the blade-wall distance d_w ' (eq. 7) is the same as that of the polyvalent blender (figures 3, 5 and 17).

$$\frac{L_b}{L_b'} = \frac{d_w}{d_{w'}}$$
 eq. 7



Figure 17: Schematic view of the Triaxe[®] mixer showing some characteristic lengths.

As for the horizontal blender, dimensional analysis can be performed for the Triaxe[®] blender, thanks to the introduction of a power number N_p and a Froude number Fr. These two numbers can be calculated with the rotational speed of the blades ω_{ra} [rad.s⁻¹], the distance between two opposite blade tip D=0.448m, ρ_b [kg.m⁻³] and the power measurement P [W] (eq. 8 and 9).

$$F_r = \frac{D \cdot \omega_{ra}^2}{2 \cdot g} \qquad \qquad \text{eq. 1}$$

$$N_p = \frac{P}{\rho_b \omega_{ra}^3 (D/2)^5} \qquad \qquad \text{eq. 2}$$

 N_p is plotted against *Fr* for both equipment in the different operating conditions already studied here (figure 18a, 18b, 18c, 18d). It must be said that the data are not in the same range of Froude numbers, the Triaxe[®] covering smaller values while the polyvalent blender covers greater ones. However, there is a partial overlap particularly around Fr=1. Whatever the particulate system considered and the filling ratio, the log-log representation considered in the previous section leads to similar correlations for both technologies. This attests the ability of the polyvalent convective blender designed for this work to be used for scale up or power prediction in blenders that cannot be equipped with torque-meters.



Figure 18: Comparison of the power law correlations obtained in the Triaxe[®] blender and the actual prototype (straight blades): semolina for f=0.42 (a); semolina for f=0.83 (b); lactose for f=0.42 (c); lactose for f=0.83 (d)

6. Concluding remarks

The polyvalent convective blender, built for this work, allows to investigate in-situ powder rheology induced by blades, and may be helpful in scale-up procedures and understanding of powder flow in different systems. This device has been studied for two powders of different kinds: fine semolina that is free-flowing, and lactose, which is cohesive. Flow regimes have been identified for these two powders, three filling ratios (0.42-0.63-0.83) and two blade angles (0-33°). For Froude

numbers smaller than 1, a rolling regime is evidenced and characterized by avalanches of powder at the free-surface. For Froude numbers greater than 1, a cataracting regime is observed: the powder is projected when it reaches the surface of the powder bed. However, the great differences in power consumption for the two powders highlight that the flow mechanisms in the powder beds might be completely different.

There is practically no effect of the blade angle on the power consumption for the free-flowing system considered, while it is significant for cohesive powders, especially for high filling ratios in the cataracting regime. This may be confirmed and investigated more into details in future works involving powders of different cohesions. When investigating the effect of the filling ratio on power consumption, an hypothesis on a possible variation of bulk density due to powder compaction under stressing process conditions has been given and may also need confirmation. Correlations between a power number and a Froude number through a simple power law have been established for free-flowing and cohesive powders. These relations involve two coefficients depending on the powder type (coefficient a) and on the flow regime considered (coefficient b) and are in good agreement with previous work.

In future work, we will focus on the influence of different configurations of blades, vessel and wall position, or vessel inclination, as well as combinations of these. This will give more insight into the flow mechanisms at play, especially for cohesive systems.

Acknowledgements

We would like to thank Asma Toualoua and Luana Grillet, internship students in our laboratory, for their help during rheology measurements that are presented in this work. Many thanks to Pierre Bertorelle for his technical ideas and dedication, both necessary for the elaboration of the blending prototype.

References

- André, C., J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, G. Delaplace, 2012. Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders: Mixing time and power consumption. Chem. Eng. J. s 198–199, 371–378.
- André, C., J.F. Demeyre, C. Gatumel, H. Berthiaux, G. Delaplace, 2014. Derivation of dimensionless relationships for the agitation of powders of different flow behaviours in a planetary mixer, Powder Technol. 256, 33–38.
- Bagster, D.F., Bridgewater, J., 1967. The Measurement of the Force Needed to Move Blades Through a Bed of Cohesionless Granules. Powder Technol. 1, 189–198.
- Bagster, D.F., Bridgewater, J., 1969. The flow of granular material over a moving blade. Powder Technol. 3, 323–338.
- Chandratilleke, G.R., Yu, A.B., Bridgwater, J., 2012. A DEM study of the mixing of particles induced by a flat blade. Chem. Eng. Sci. 79, 54–74.
- Chandratilleke, G.R., Yu, A.B., Stewart, R.L., Bridgwater, J., 2009. Effects of blade rake angle and gap on particle mixing in a cylindrical mixer. Powder Technol., Special Issue: Discrete Element Methods: The 4th International conference on Discrete Element MethodsThe 4th International Conference on Discrete Element Methods, Brisbane, August 2007 193, 303–311.
- Cleary, P.W., 2013. Particulate mixing in a plough share mixer using DEM with realistic shaped particles. Powder Technol. 248, 103–120.
- 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.
- Demeyre, J.-F., 2007. Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe® (Thèse de doctorat). Institut national polytechnique, Toulouse, France.
- Halidan, M., Chandratilleke, G.R., Chan, S.L.I., Yu, A.B., Bridgwater, J., 2014. Prediction of the mixing behaviour of binary mixtures of particles in a bladed mixer. Chem. Eng. Sci. 120, 37– 48.
- Havlica, J., Jirounkova, K., Travnickova, T., Kohout, M., 2015. The effect of rotational speed on granular flow in a vertical bladed mixer. Powder Technol. 280, 180–190.
- Knight, P.C., Seville, J.P.K., Wellm, A.B., Instone, T., 2001. Prediction of impeller torque in high shear powder mixers. Chem. Eng. Sci. 56, 4457–4471.
- Laurent, B.F.C., Bridgwater, J., 2002. Influence of agitator design on powder flow. Chem. Eng. Sci. 57, 3781–3793.
- Laurent, B.F.C., Cleary, P.W., 2012. Comparative study by PEPT and DEM for flow and mixing in a ploughshare mixer. Powder Technol. 228, 171–186.
- Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux H., 2017. Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender, Powder Technology, 305, 609-619.

- Leturia, M., Benali, M., Lagarde, S., Ronga, I., Saleh, K., 2014. Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods. Powder Technol. 253, 406–423.
- Makishima, S.-I., Shirai, T., 1968. Experimental Study on the Power Requirements for Agitating Beds of Solid Particles, and Proposal of a New Model. J. Chem. Eng. Jpn. 1, 168–174.
- Malhotra, K., Mujumdar, A.S., 1990. Particle mixing and solids flowability in granular beds stirred by paddle-type blades. Powder Technol. 61, 155–164.
- Malhotra, K., Mujumdar, A.S., Imakoma, H., Okazaki, M., 1988. Fundamental particle mixing studies in an agitated bed of granular materials in a cylindrical vessel. Powder Technol. 55, 107–114.
- Malhotra, K., Mujumdar, A.S., Miyahara, M., 1990a. Estimation of particle renewal rates along the wall in a mechanically stirred granular bed. Chem. Eng. Process. Process Intensif. 27, 121–130.
- Malhotra, K., Mujumdar, A.S., Okazaki, M., 1990b. Particle flow patterns in a mechanically stirred two-dimensional cylindrical vessel. Powder Technol. 60, 179–189.
- Mayer-Laigle, C., 2012. Étude dynamique et effet du changement d'échelle pour plusieurs systèmes particulaires en mélangeur Turbula®: application à un mélange destiné à la fabrication de plaques composites (Thèse de doctorat). Institut national polytechnique, Toulouse, France.
- Mellmann, J., 2001. The transverse motion of solids in rotating cylinders—forms of motion and transition behavior. Powder Technol. 118, 251–270.
- Moakher, M., Shinbrot, T., Muzzio, F.J., 2000. Experimentally validated computations of flow, mixing and segregation of non-cohesive grains in 3D tumbling blenders. Powder Technol. 109, 58–71.
- Radl, S., Brandl, D., Heimburg, H., Glasser, B.J., Khinast, J.G., 2012. Flow and mixing of granular material over a single blade. Powder Technol. 226, 199–212.
- Remy, B., Canty, T.M., Khinast, J.G., Glasser, B.J., 2010. Experiments and simulations of cohesionless particles with varying roughness in a bladed mixer. Chem. Eng. Sci. 65, 4557– 4571.
- Remy, B., Khinast, J.G., Glasser, B.J., 2011. Polydisperse granular flows in a bladed mixer: Experiments and simulations of cohesionless spheres. Chem. Eng. Sci. 66, 1811–1824.
- Siraj, M.S., 2014. Single-blade convective powder mixing: The effect of the blade shape and angle. Powder Technol. 267, 289–301.
- Zhou, Y.C., Yu, A.B., Stewart, R.L., Bridgwater, J., 2004. Microdynamic analysis of the particle flow in a cylindrical bladed mixer. Chem. Eng. Sci. 59, 1343–1364.

Ce nouvel équipement d'agitation des poudres, le mélangeur convectif polyvalent, a permis ainsi de distinguer l'existence de deux régimes d'écoulement selon le nombre de Froude : le roulement et la cataracte. Ces régimes d'écoulement sont présents de façon similaire pour des poudres cohésives ou à écoulement libre, mais aussi quel que soit le taux de remplissage, dans la gamme utilisée (0,42-0,83). Il permet aussi d'effectuer des mesures de rhéologie avec une précision satisfaisante, notamment pour les poudres à écoulement libre. De plus, ces mesures peuvent être extrapolées au mélangeur Triaxe[®] dans le cas particulier où la giration est nulle. Dans l'objectif d'effectuer un modèle de mélange en mélangeur planétaire Triaxe[®], ce mélangeur prototype semble être un bon outil pour aborder la modélisation et l'agitation dans des mélangeurs convectifs de poudres. Les deux derniers articles présentés (chapitres IV.2 et IV.3) permettent de proposer un modèle d'écoulement pour une poudre à écoulement libre et une poudre cohésive.

Le chapitre IV.2 s'intéresse uniquement à l'aspect expérimental de traçage des poudres. Cela a pour objectif d'alimenter un modèle en identifiant des cinétiques et des mécanismes de répartition de la poudre au cours de l'agitation. Ceci est effectué aussi bien pour les poudres à écoulement libre que pour les poudres cohésives.

N.B : seul du lactose fin est employé par la suite. Si le terme « lactose » est employé, il ferra référence au « lactose fin ».

Résumé du Chapitre IV.2

Dynamique des écoulements de poudre en mélangeur convectif horizontal : expériences de traçage

L'agitation de poudres ayant différents comportements rhéologiques, une à écoulement libre (semoule) et une cohésive (lactose), est étudiée dans un mélangeur convectif horizontal équipé de quatre pales. Les cinétiques de mélange sont mesurées pour chaque poudre, grâce à des expériences de traçage de la semoule (semoule colorée) et du lactose (talc). Différentes durées d'agitation et vitesses de rotation du mobile ont été étudiées. Trois mécanismes d'écoulement sont identifiés : la convection, l'avalanche et la diffusion. La convection déplace d'importantes quantités de poudre près des pales, alors que le mécanisme d'avalanches à lieu en surface du lit de poudre. La diffusion, qui est le mécanisme le plus lent, permet le transport de matière vers les zones où les pales ne passent pas ou vers les zones éloignées de la surface du lit de poudre. La répartition en traceur dans le volume du mélangeur est meilleure pour la poudre à écoulement libre, et s'améliore avec l'augmentation de la vitesse d'agitation.

IV.2. Powder flow dynamics in a horizontal convective blender: tracer experiments

Léonard Legoix, Cendrine Gatumel, Mathieu Milhé, Henri Berthiaux

Université de Toulouse, Centre RAPSODEE, CNRS UMR 5302, Ecole des Mines d'Albi, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

Publication reference: Chemical Engineering Research and Design, 2017, vol. 121, pp.1-21. doi.org/10.1016/j.cherd.2017.03.002

Article info

Abstract

Published in Chemical Engineering Research and Design

Keywords

Convective blender Powder stirring Flow mechanism Free-flowing Cohesive The stirring of powders of different flow behavior, namely one free-flowing (semolina) and one cohesive (lactose) is investigated in a four-blade horizontal convective mixer. The mixing kinetics is investigated for each powder separately, thanks to tracking experiments performed with colored semolina and talc, respectively tracers of the free-flowing and of the cohesive powder. Different stirring times and rotational speeds of the impeller are studied. Three flow mechanisms are identified: convection, avalanching and diffusion. Convection conveys important amounts of powder near the blades, while the avalanching mechanism takes place on the powder bed surface. Diffusion, which is the slowest mechanism, allows powder transport to the zones of the blender in which blades do not pass through or to zones that are far from the powder bed surface. The tracer repartition in the blender's volume is better for the free-flowing powder than for the cohesive powder, and is enhanced by an increase of the rotational speed.

1. Introduction

Powder mixing is an operation that concerns many industrial fields. It is an important step since it allows combining the properties of different powders into a single product that has to meet specifications and standards based on the homogeneity of the mixtures. The flow of a powder depends on the physical properties of its particles, like size and shape. The environmental factors, such as ambient hygrometry and temperature, can change drastically powder behavior and lead to strong industrial issues. Two kinds of powders are distinguished: free-flowing powders and cohesive powders. Free-flowing powders can be considered as powders for which grains can move

independently from each other. On the contrary, cohesive powders are made of particles that interact through attractive forces, such as capillary forces induced by the presence of a liquid. Concerning dry powders, this attraction is mainly due to Van Der Waals forces that can be considered as more important than gravity when particle size is smaller than 100 μ m (Bridgwater, 1976).

Two main technologies are employed to mix powders: convective mixers for which the vessel is fixed and an impeller allows the motion of the bulk; tumbling mixers for which the vessel itself is put into motion. Powder mixing in tumbling blenders have been studied, for both free-flowing and cohesive powders (Aoun-Habbache et al., 2002; Brone and Muzzio, 2000; Massol-Chaudeur et al., 2002; Mayer-Laigle et al., 2015; Wightman and Muzzio, 1998a, 1998b). These mixers are less adapted than convective ones for cohesive powder blending, because the avalanching movement located mainly at the powder bed surface can induce powder agglomeration (Bonamy, 2001). Convective blenders seem more suited to mix cohesive powders, as long as the impeller can be rotated at a sufficiently high speed to break agglomerates.

Mixture characterization consists in analyzing the repartition of a key component in the whole powder bed or at the outlet of the mixer, at the scale of scrutiny which is defined by the final use of the product (Cuq et al., 2013). In most cases, the proportion in key component is measured from different samples withdrawn from a batch and used to derive the standard deviation of the distribution of the compositions, and in turn the Relative Standard Deviation (RSD). The RSD is most of the time employed to accept or reject a mixture in the industry. Sometimes, mixing indices are derived to compare these values to extreme cases (Ashton and Valentin, 1966; Lacey, 1943; Smith, 1955).

Three main transport mechanisms are identified during powder mixing operations: convection, diffusion and shearing (Lacey, 1954). Convection can be described as the movement of adjacent groups of particles. Diffusion is a movement of the powder at a scale closer to that of the particle size. Shearing is characterized by the slipping of planes within the mixture. Shear zones can be observed between the clumps formed by mixing through convection, so that shear cannot occur alone (Bridgwater, 1976). A classical mixing kinetic is characterized by a monotonous decrease of the standard deviation with mixing time (Figure 1). A sharp decrease at the beginning is attributed to the predominance of the convection mechanism, through the motion of blocks of particles, at the scale of the blades for example. When the scale of heterogeneous zones in the mixture is below that of the blocks of particles, convection is no longer efficient in the decrease of the standard deviation. As a result, diffusion becomes the predominant mechanism and will be responsible for the subsequent

decrease of the curve and an intimate mixture. When the mixing time is long enough, the standard deviation reaches a minimum value and sometime oscillates around it. These oscillations can indicate a competition between mixing by diffusion and segregation by percolation, which is due to differences in size, shape or density of the particles. At the industrial scale, the operation should be stopped at the minimum of this curve.



Figure 1: Classic powder mixing kinetic curve showing the associated predominant mechanisms (Rose, 1959).

As stated above, mixing mechanisms are responsible for particle -or particulate ensemblesmobility. Their identification is key in the understanding of flow in the mixer or at the vicinity of mixing media (blades, screw, ribbon, etc.), towards more general goals such as process optimization. It is therefore not a surprise to see that many studies have focused on flow understanding through the use of tracers and the development of tracking techniques in mixing operations over the past 20 years or so. According to Kaye (Kaye, 1997), "a tracer is an ingredient that is meant to trace out movements within a powder mixing system... One uses tracers to find out directions and pathways within a powder mixer". In the case of powder mixing, however, a precision must be made according to the case studied:

- A is a single powder that is representative of a flow category, i.e. cohesive, free-flowing, etc. The objective is to apprehend the general flow pattern inside the mixer for powders of the same type (Aoun-Habbache et al., 2002, Marikh et al., 2006, Barling et al., 2015). In this case, a particulate product A' is chosen for his flow properties that are assumed -or demonstrated to be- identical to those of A, and is employed as a tracer of A. Particles of A' can be placed in specific locations in the mixer's volume, their concentrations in any locations (or cells) of the whole volume being detected with time. This also allows to

calculate the RSD of A' with respect to A, and further determine "mixing" kinetics. The term "mixing" is employed despite the fact that it does not really fit with the situation, which refers more to "stirring".

- A and B are two powders of different nature, corresponding to either a model case or a specific industrial case. If A' is a tracer of A, it can be employed as above and the results may allow to figure out whether the presence of B changes A's flow or not. In any case, the RSD can be calculated and the mixing kinetics can be described. Of course, the same procedure should be overtaken for B.
- B is a key component in the mixture and is considered as a tracer of the bulk. While this is obviously a strong hypothesis, it has been extensively employed over the years as it allows the derivation of the mixing kinetics in a much easier way. It is also supported by the development of single-particle tracking techniques as applied to mixing (Larachi et al., 1995, Hiseman et al., 2002, Bridgwater, 2003) to detect the tracer's presence in the whole mixer's volume in real time.

In the present work, we aim to understand powder flow inside a prototypal convective blender that can be representative of the whole spectra of convective blenders. The situation of this study is therefore corresponding to the first of the 3 cases developed in the above paragraph. Thanks to tracer experiments performed for either free-flowing or cohesive systems, we will focus on powder flow at the vicinity the blades and study the impact of the impeller's rotational speed that is expected to play an important role in the flow dynamics.

2. Materials and methods

2.1. Powders used

Two powders are used in this study: a free-flowing one (semolina) and a cohesive one (fine lactose). Both are of polygonal morphology, as shown by SEM pictures in figure 2. Table 1 gathers the main properties of these two powders, d_{50} being the median diameter measured by LASER diffraction (Mastersizer3000, Malvern) under an air pressure of 3.5 bar. The particle density ρ_p has been measured thanks to an Accumulator Pyc 1330 (Micromeritics) with the 10 cm³ cell. The bulk and tapped densities, ρ_b and ρ_t , have been measured with a volumenometer (Erweka) with 110 g of powder, the tapped density being measured after 1000 taps. The important Carr Index (CI) of the fine lactose, greater than 22 %, means that this powder is effectively cohesive. The Carr Index of semolina, smaller than 15 %, suggests to classify this powder as free-flowing (Leturia et al., 2014).





Figure 2: SEM pictures of semolina (left) and fine lactose (right).

Powder	d ₅₀ (μm)	$\rho_{\rm p}$ (kg.m ⁻³)	$\rho_{\rm b}$ (kg.m ⁻³)	$\rho_t (\text{kg.m}^{-3})$	CI (%)
Semolina	312	1463	679	720	5.8
Fine lactose	26	1539	495	638	22.5

Table 1: Powder properties.

2.2. Prototypal convective blender

The blending prototype considered is a polyvalent and transparent convective mixer, in which operating parameters such as blade number, blade angle, wall position, blending volume or vessel angle can be varied. The configuration chosen here consists in four straight blades for a vessel positioned horizontally (Figure 3). The distance between lateral walls is 13 cm, one of the walls being close to the blades with a 0.5 cm gap. Agitation speed can reach 20 rad.s⁻¹.



Figure 3: Horizontal convective blender showing the four rectangular straight blades.

The blender volume is artificially divided into six zones or cells. These zones are of identical volumes and are represented schematically in figure 4. Five of these six zones will be filled with the powder whose flow is studied (either semolina or lactose), the last zone being initially occupied by a tracer.

For each experiment, the mass of powder poured in the blender is about 3232 g for semolina and 2357 g for fine lactose (including the tracer), corresponding to a volume bulk filling ratio f of 0.83. This filling ratio is calculated using bulk density ρ_b , the mass of powder poured m_p and the volume of the mixer V_{tank} .

$$f = \frac{m_p}{\rho_b.V_{tank}} \qquad \qquad \text{eq. 1}$$

The powder inside each cell can be sampled layer by layer with a system of aspiration. If some powder is present over the top of the zones 1 or 4, it will be sampled and considered as belonging to these.



Figure 4: Front view of the prototype and approximate position of the six zones. The white arrow represents the real direction of rotation of the system.

2.3. Tracking experiments

2.3.1. Experimental procedure

A typical experiment of powder stirring consists in filling the blender with a powder and its corresponding tracer, agitating the powder bed at a given rotational speed ω for a duration *t*, and then sampling the whole powder bed according to the six cells defined previously. For each of the two powders studied, two agitation speeds and several stirring times are chosen (Table 2).

For each experiment, three different initial positions of the tracer are studied: close to the freesurface (zone 1), far from blades and surface (zone 3), in the blade's direct action zone (zone 4).

Powder		Semolina				Fine lactose				
Agitation speed ω (rad.s ⁻¹)	6			15	6		15			
Stirring time t (s)		10	60	300	4	4	10	300	4	10

Table 2: Product and process parameters investigated for mixing experiments.

The mean powder weights contained into each cell, for each experiment of stirring made in this work, are represented in table 3. The fluctuating values of the mass are mainly due to the different state of compaction of the powder, depending on its position in the vessel. The angle of repose of the powder near the blades and near the walls has an impact on the mass sampled too. For semolina, the mass do not vary a lot from zone to zone, nevertheless it can be seen that the mean values are greater for zones 1 and 4 that are closer from the free-surface. Concerning lactose, the cells 1 and 4 contain also more powder, as well as zone 3 for which powders may be compacted at the bottom of the blender.

Table 3: Powder weights measured in each zones of the blender (g).

Zone	1	2	3	4	5	6
Semolina (g)	565 ± 55	509 ± 36	490 ± 57	602 ± 29	552 ± 58	484 ± 57
Lactose (g)	425 ± 73	344 ± 29	408 ± 63	414 ± 39	361 ± 74	379 ± 64

2.3.2. Determination of tracer composition in cells

Two tracers of different nature have been chosen separately for semolina and lactose, the main criteria being the size of the particles to limit segregation. Because of the different choices of tracer, the experimental protocol to determine the mass proportion in tracer inside the different zones of the mixer will be different.

2.3.2.1. Semolina tracer

The tracer that has been considered for semolina is made of semolina itself, colored by an iodine solution that has been previously prepared by dilution of solid iodine in a 96% ethanol-water solution. After impregnation of semolina, the black-colored semolina is stirred with a spatula and dried with hot air, in order to avoid agglomeration of grains.

Image analysis seems to be a good technique to analyze a tracer in a powder blend, as already shown in literature (Daumann et al., 2009). In the present work, an image analysis technique has been set up to quantify the proportion of colored semolina. It has been calibrated for 20 g of mixture. The sample is poured in a 19 cm circular dish, and 8 pictures are taken randomly with a Keyence[®]

optical microscope equipped with a x50 lens. The size of each picture is about 7x5 mm. The mean proportion of the surface occupied by colored semolina is evaluated with a Matlab[®] program for the 8 pictures. The mass proportion of the sample in colored semolina can be calculated (Figure 5) thanks to a main second order polynomial function for proportions between 10% and 90%, and to two linear correlations for proportions smaller than 10 % and greater than 90 %. The calibration points have been measured twice, with different batches of colored semolina to make sure that the tracing technique and the microscope counting are reproducible. The average values are used for the calibration.



Figure 5: Calibration curve for image analysis of semolina- colored semolina mixtures.

This allows an accurate calculation of the proportion of tracer in 20 g of sample, but cannot be done for a single cell of the mixer that contains 20 to 30 times this quantity. For this, each sampled zone is previously homogenized with a Turbula[®] T2F mixer for 3 min at an agitation speed of 46 rpm. The powder is then poured on a plate, and one 20 g sample of semolina (and its tracer) is randomly taken out. The homogenization of the zone is good enough, so that the 20 g can be assumed to be representative of the whole composition of the zone, with a precision of about 1 %.

2.3.2.2. Fine lactose experiments

Talc has been employed as tracer for fine lactose. Measurements with the FT4 Freeman[®] rheometer show that it has a Flow Rate Index about 2.1, which is similar to that of lactose. The analysis of the tracer content of a fine lactose-talc mixture is carried out by thermal degradation of lactose. Samples of weights around 2 g are heated up to 650°C for 1h in ceramics crucibles in order

to sublimate the lactose. Talc mass lost is only about 1 %. The precision of the scale (Balco[®]), of the order of the milligram, allows to determine the mass proportion in talc x_t with a precision smaller than 1 %, knowing the powder masses before and after heating, m_0 and m_f respectively (eq. 2).

$$x_t = 101 \ \frac{m_f}{m_0} \qquad \qquad eq. 2$$

As for semolina experiments, the analysis of tracer content in an entire zone is not possible, being the mass analyzed about 2 g. Again, the homogenization of sampled zones is made with the Turbula[®] T2F mixer for 5 min with an agitation speed of 96 rpm. Then the powder is poured in a plate and 12 samples of about 2 g are randomly taken before being laid into a crucible. The compositions of all of these samples are analyzed by the thermal degradation procedure previously described and the mean value of these 12 compositions will represent the global composition in tracer of the zone, with a good precision. This has been verified with two Turbula[®] homogenizations of 393 g of powder (the mass of fine lactose and tracer poured in the mixer, divided by six), with a known tracer content of 16.7 % and 5.0 %. The respective compositions measured by the described technique were 16.7 % and 4.8 %.

2.3.3. Tracer mixing kinetics

Knowing the mass of powder in a given zone and the mass proportion of tracer in this zone as given by the analytical techniques described above, it is possible to calculate the corresponding mass of tracer. The tracer mass fraction in zone i, will be denoted X_i , the sum of these fractions being equal to 1 at any time.

The Relative Standard Deviation (RSD) is the index chosen here to quantify the homogeneity of the tracer – powder mixture, for a given time and rotational speed. The RSD can be calculated from the standard deviation σ of the tracer mass proportion in each zone and the tracer mean composition in the mixer, which is equal to 0.167 since only one zone is filled initially with it (eq. 3). The more the tracer concentrations are close to each other, the more the RSD approaches zero.

$$RSD = \frac{\sigma}{0.167} \qquad \qquad \text{eq. 3}$$

3. Results and discussion

In this section, we present the different stirring kinetics that have been obtained, according to the rotational speed of the blades (6 rad.s⁻¹ or 15 rad.s⁻¹) and the nature of the powder (free-flowing or cohesive). In each experiment, the tracer is placed initially in one zone: zone 4, 1 or 3. These three zones, chosen for their locations with respect to the blades and the free-surface, will help in the identification of the mechanisms at play. Pictures taken during the experiments with semolina will support this, something which is not possible for the cohesive powder since fine lactose and its tracer share a similar color.

3.1. Low-speed stirring of free-flowing powders

The focus is made here on experiments performed with semolina, the rotational speed of the blades being 6 rad.s⁻¹. Under these operating conditions, the flow regime that takes place is rolling, which is characterized by a movement of avalanching of the powder carried by the blades, since gravity is greater than centrifugal force.



3.1.1. Tracer initially in zone 4

Figure 6: Evolution of composition of each zone in the mixer for semolina, with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ and tracer initially placed in zone 4.

When the initial position of the tracer is in zone 4, a fast dissipation of the tracer to the other zones of the blender can be observed (Figure 6). After four seconds of agitation, the mass proportion of tracer is almost divided by three, while the contents in tracer for zones 5 and 6 are increasing. After 60 s of stirring, the tracer contents in zones 4, 5 and 6 do not change anymore and are close to each other. This is typical of a convection mechanism where the blades, which are directly in contact

with zone 4, move important amounts of powder. This convection seems to take place mainly in zones 4, 5 and 6 for which the blades are passing through. The tracer content in zone 1 increases slowly as compared to these zones, to reach a constant value after 60 s of stirring. The tracer has more difficulties to reach zone 2 and even more to reach zone 3. The increase of tracer content in these zones that are not directly in contact with the blades suggests that other mechanisms, conveying smaller amounts of powder, may coexist.

Convection has also been evidenced with a video camera recording (Figure 7). It is clear that after each blade pass, an important proportion of the powder is exchanged between zones 4, 5 and 6 which includes the volume occupied by the blades.



Figure 7: Front view of the mixer after each blade pass (numbers on bottom left), tracer has been placed initially in zone 4, the blade rotational speed is 6 rad.s⁻¹.

The RSD decreases monotonously with mixing time (Figure 8), up to 60 s, afterwards if decreases slowly to remains at a value close to 0.33. This final RSD is far from zero, a value that would have corresponded to a homogenous repartition of the tracer in the blender at the scale of the cells. This may be attributed to the small quantities of powder that are exchanged between directly agitated zones and zones that are out of reach for the blades. The fast decrease of RSD during the first minute of agitation shows the predominance of the convection mechanism that homogenizes the tracer over zones 4, 5 and 6.



Figure 8: Mixing kinetics of semolina, rotational speed of 6 rad.s⁻¹, tracer placed initially in zone 4.

3.1.2. Tracer initially in zone 1



Figure 9: Evolution of composition of each zone in the mixer for semolina, with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ and colored semolina initially placed in zone 1.

When the tracer is initially placed in zone 1, its concentration stabilizes in each zone after 60 s of stirring (Figure 9). The tracer concentrations in zones 4, 5 and 6 are evolving the same way: if the tracer is present in one of these zones, it is quickly homogenized with the two others, due to the convection mechanism identified above. The tracer concentration in zone 1 decreases sharply, but not as fast as for the previous situation. In this case, this is not convection that moves powder from the zone 1 to others, but avalanches. This can be seen on figure 10 and explains the fast transfer of particles from zone 1 to other zones, despite the blades are not passing through this zone. Part of the powder bed is conveyed higher than zone 4 in the back of the blender and partly falls in zone 1,

while part of the powder in zone 1 goes back on the front of the zone 4. This mechanism is slower than convection and allows the tracer present initially in zone 1 to interact with the agitated zones.



Figure 10: Back view (left), front view (middle) and top view (right) of the mixer after 4 s of mixing at 6 rad.s⁻¹. Arrows are showing the avalanching flow observed on the free-surface.



Figure 11: Mixing kinetics of semolina, rotational speed of 6 rad.s⁻¹, tracer placed initially in zone 1.

All of this is transcribed by the RSD's sharp decrease until the reach of a value comprised between 0.4 and 0.5 (Figure 11). The avalanching mechanism creates an important flow of tracer towards zones 4, 5 and 6, so that the RSD decreases the same way as when the tracer is placed initially in zone 4. However the final mixing quality is slightly worse (RSD close to 0.44), since a part of the tracer present in zone 1 cannot communicate with the other zones.

3.1.3. Tracer initially in zone 3



Figure 12: Evolution of composition of each zone in the mixer for semolina, with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ and colored semolina initially placed in zone 3.

The dissipation of the tracer when initially placed in zone 3 is presented in figure 12, and may help to gain more insight into the slower mass transport mechanisms acting in this zone. A fast decrease of concentration in zone 3 is measured during the first ten seconds, after which the mixing of the tracer become much slower. It reaches a value close to 0.5 after 5 min of stirring. A more important quantity of powder remains in zone 3, as compared to the situations reported in the two previous sections. The concentrations in zones 1, 4, 5 and 6 increase and are all smaller than 0.1. A certain quantity of tracer seems to transit from zone 3 to zone 2, since after 60 s of stirring the decrease of concentration in zone 3 is followed by an increase of concentration in zone 2. This suggests the presence of a mass transport mechanism which is slower than convection and avalanching, between zones far from the free-surface and in which blades do not pass through.

The decrease of tracer proportion in zone 3, at the beginning of agitation, is mainly due to the fact that a part of zone 3 is dragged by shearing to the zones where blades are passing. Since this shearing mechanism is relatively slow and may be viewed at a scale close to that of the particles, it will be considered as a diffusion mechanism in this work. Indeed, the powder repartition inside zone 3 is far from being homogenous, a part of it being occupied by the tracer only (Figure 13).



Figure 13: Front view of the blender after 5 min of stirring of semolina at 6 rad.s⁻¹, tracer initially placed in zone 3.

As in previous experiments, the RSD decreases sharply at the beginning of the operation, and more slowly after 10 s (Figure 14). This slow decrease of the RSD attests the presence of the diffusion mechanism in the powder bed. The increase of tracer concentration in zone 2, and the decrease in zone 3 during the same time suggests that the diffusion mechanism may occur at least between these two zones.



Figure 14: Mixing kinetics of semolina, rotational speed of 6 rad.s⁻¹, tracer placed initially in zone 3.

3.2. Low-speed stirring of cohesive powders

This part focuses on the stirring experiments performed with lactose and its tracer at a rotational speed of 6 rad.s⁻¹, which corresponds to the rolling flow regime. Similar experiments as for

semolina are performed. However, since three stirring times are investigated, the kinetic data is less accurate. The RSD obtained will be directly compared to that of semolina experiments presented in the last part, in order to evaluate the main differences between free-flowing and cohesive powders.

3.2.1 Tracer initially in zone 4

With an initial placement of tracer in zone 4, its proportions in cells 4, 5, 6 is stationary after just 4 s (Figure 15). This indicates that the mechanism of convection described for semolina is also predominant for fine lactose. The mass fraction of tracer in zone 1 at a stirring time of 5 min is close to that in zones in direct contact with the blades. The tracer clearly cannot access to zones 2 and 3, meaning that negligible exchange of powder takes place between these zones and the others. As the Carr Index may suggest it, the compressibility of this powder is important (see table 1), and may have led to the formation of blocks of packed powder in these zones.



Figure 15: Evolution of composition of each zone in the mixer for lactose, with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ and talc (tracer) initially placed in zone 4.

The RSD has been calculated in the same way as for semolina mixtures (Figure). The evolution of the RSD is similar between the two particulate material, with a sharp decrease of the RSD during the first seconds, characteristic of the convection mechanism, followed by a slow decrease, typical of the diffusion mechanism. However, for the cohesive powder, the RSD is greater whatever the stirring time. This may be attributed to the unmixed powder that remains in zones 2 and 3, for which the zero content in tracer gives rise to high RSD's.



Figure 16: Mixing kinetics for lactose as compared with semolina, rotational speed of 6 rad.s⁻¹ tracer initially placed in zone 4.

3.2.2. Tracer initially in zone 1

When the tracer is initially placed in zone 1 (Figure 17), an important decrease at the beginning of stirring takes place, attesting that a fast exchange of powder occurs between zone 1 and its neighboring zones, but after 5 min of stirring the proportion in tracer remains at 0.51, whereas it decreased to a value of 0.27 for semolina in the same conditions. A fraction of the tracer in zone 1 is not put in contact with blades and remains in this zone because of cohesion forces that hold the particles together and limit the avalanching flow mechanism. As a result, the avalanching mechanism described for semolina is less important for fine lactose.



Figure 17: Evolution of composition of each zone in the mixer for lactose, with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ and talc (tracer) initially placed in zone 1.

The RSD measured in these operating conditions decreases quickly during the first seconds of stirring and then reaches a steady state for stirring times greater than 10 s (Figure 18). Considering the RSD as a parameter to quantify mixing, the cohesive powders are clearly more difficult to blend than free-flowing powders when the tracer is placed initially in zone 1. It is also worth noting that stirring times longer than 60 s do not improve homogeneity that is finally worse than that obtained if the tracer is initially placed in zone 4.



Figure 18: Mixing kinetics for lactose as compared with semolina, rotational speed of 6 rad.s⁻¹ tracer initially placed in zone 1.

3.2.3. Tracer initially in zone 3

If the tracer is initially placed in zone 3, a large amount of tracer, which is more important than for semolina, remains in this zone and is not put in contact with the neighboring zones (Figure 19). After 5 minutes of mixing, the tracer proportion in zone 3 is 0.87 whereas for semolina this value was about 0.45. In all others zones a very small, steady and identical content in tracer is measured. The diffusion mechanism that was still efficient for semolina to displace tracer particles of this "isolated" zone, is no longer able to disrupt the compacted lactose powder at the scale of individual particles.

The RSD of fine lactose decreases sharply during the first seconds of agitation to reach a steady state around a value of 2 (Figure 20). As for free-flowing powders, a shearing may take place in a limited part of zone 3, close to the blades, the other part being almost a dead zone.



Figure 19: Evolution of composition of each zone in the mixer for lactose, with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ and talc (tracer) initially placed in zone 3.



Figure 20: Mixing kinetics for lactose as compared with semolina, rotational speed of 6 rad.s⁻¹ tracer initially placed in zone 3.

More globally, it has been shown that, whatever the case, the powder is never perfectly stirred since the steady-RSD is far from zero. The minimum is reached with a RSD value of 0.33 for the free-flowing material, when the tracer is initially placed in the blade zone (cell 4). It is clear with the RSD calculations that the cohesive powder is stirred with more difficulties, the worst case being that of a tracer placed at the bottom of the vessel, out of the blade zone (cell 3). This zone can be assimilated as a stagnant zone for which an important proportion of the powder will never transit to the other zones of the vessel.

3.3. High-speed stirring of free-flowing powders

For rotational speeds greater than 9 rad.s⁻¹, the flow regime is cataracting. Cataracting is characterized by a movement of projection of the powder carried by the blades, since centrifugal force is greater than gravity. In the following, we report tracer distributions obtained after four seconds of mixing at a rotational speed of 15 rad.s⁻¹ and compare it with the results presented in section 3.2.

3.3.1. Tracer initially in zone 4

When the tracer is initially in zone 4, its distribution over the other zones is faster for 15 rad.s⁻¹ than for 6 rad.s⁻¹ (Figure 21). With the smaller rotational speed, the tracer is distributed over the zones 4, 5 and 6, less in zone 1, while few quantities are present in zones 2 and 3. When the blade speed is more important, the tracer mass fractions in the blade zones 4, 5 and 6 decrease and the proportions in zones 1, 2 and 3 increase, meaning that the avalanching mechanism and the diffusion mechanism are still taking place, and to a greater extent. In a general viewpoint, the increase of the rotational speed promotes convection towards a greater extent and leads to a better mixture for the same mixing time.



Figure 21: Impact of the rotational speed on the distribution of the free-flowing powder over the whole mixer, 4 s stirring time, tracer initially placed in zone 4.

3.3.2. Tracer initially in zone 1

If colored semolina is placed in zone 1, its quantity in this zone decreases by about a half when the rotational speed is 6 rad.s⁻¹. It is mainly distributed over zones 2, 4, 5, 6 and a bit less in zone 3 (Figure 22). For the higher rotational speed, the tracer proportion decreases by more than a third, the rest of it being also distributed over zones 2, 4, 5 and 6. The proportion in zone 3 is almost the same as at a small agitation speed. It seems that the higher speed induces more convection in the vessel, which is more efficient than avalanches and shear, and contributes to a better distribution of the tracer over the cells.



Figure 22: Impact of the rotational speed on the distribution of the free-flowing powder over the whole mixer, 4 s stirring time, tracer initially placed in zone 1.

3.3.3. Tracer initially in zone 3

If colored semolina is placed initially in zone 3, its proportion in this cell after 4 s is slightly smaller at high speed and is more distributed towards cell 5 (Figure 23). These variations of concentrations between rolling and cataracting regime are not as significant as for previous experiments. This is due to the location of zone 3 that is far from blades and from surface, or in other words, where powder flow occurs.



Figure 23: Impact of the rotational speed on the distribution of the free-flowing powder over the whole mixer, 4 s stirring time, tracer initially placed in zone 3.

3.4. High-speed stirring of cohesive powders

As for free-flowing powders, the comparison between the rolling regime and the cataracting regime, respectively reached at 6 rad.s⁻¹ and 15 rad.s⁻¹ of blade agitation speed, will be presented in the following. Two stirring times, 4 s and 10 s, will also be considered.

3.4.1. Tracer initially in zone 4

For an initial placement of tracer in zone 4, after 4 s of mixing time with a blade speed of 6 rad.s⁻¹ the tracer is not well distributed between zones 4, 5 and 6 (Figure 24). A relatively important part is present in zone 6, as compared to the others. This may be a block of tracer, transported by convection that is not dispersed into zones 4 and 5. The distribution is more homogeneous in these states for the cataracting regime.

After 10 s of stirring, the tracer is almost equally distributed over the cells that are directly in contact with the blades (4, 5, 6) whatever the flow regime or rotational speed. However, for the cataracting regime, the tracer quantity present in these strongly agitated zones is smaller, and more distributed towards other zones than for the rolling regime. This can be attributed to the powder projection that allows the tracer to reach these zones, a phenomena that is enhanced by a higher blade

speed that improves the powder exchange by diffusion at the common border of zones 4-5-6 and 1-2-3.

Figure 24: Impact of the rotational speed on the distribution of the cohesive powder over the whole mixer, 4 s (left) and 10 s (right) stirring time, tracer initially placed in zone 4.

3.4.2. Tracer initially in zone 1

When the tracer is initially placed in zone 1, its transit to other zones is better achieved with the higher agitation speed, whatever the stirring time (Figure 25). As in the previous section, the cataracting mechanism, which is enhanced by a higher speed, improves the distribution of the powder over the different zones of the blender.

Figure 25: Impact of the rotational speed on the distribution of the cohesive powder over the whole mixer, 4 s (left) and 10 s (right) stirring time, tracer initially placed in zone 1.

3.4.3. Tracer initially in zone 3

Figure 26 shows that whatever the stirring time, zone 3 demonstrates very few exchange of tracer with the other zones. However, with a blade rotational speed of 15 rad.s⁻¹, more tracer is distributed towards zones 4, 5 and 6, while the proportions in zones 1 and 2 remain close to each other. This is observable especially after 10 s of agitation. This means that the tracer passes from zone 3 to agitated zones by a horizontal mass transport mechanism, which is promoted by the cataracting flow.

Figure 26: Impact of the rotational speed on the distribution of the cohesive powder over the whole mixer, 4 s (left) and 10 s (right) stirring time, tracer initially placed in zone 3.

4. Concluding remarks

The tracer experiments performed in this work helped identifying the different mixing mechanisms that are appearing in a horizontal convective blender, according to the type of powder and the rotational speed of the stirring system that is the main process parameter. The initial placement of the tracer in specific zones of the vessel is essential in this procedure. It has been demonstrated that the convection mechanism is predominant in zones in which blades are passing through, the avalanching mechanism takes place at the free-surface, and a slow diffusion mechanism may show up. This diffusion is a key mechanism to transport powder over zones that are not in contact with the free-surface or the blades. The flow regime that is taking place shows a major influence on the mixing kinetics. In particular, the cataracting regime looks more efficient to homogenize the bulk, whatever the particulate material studied.

Considering the maximum stirring time of 5 min investigated, a part of the zones that are not in direct contact with the blades can be considered as stagnant, especially the deepest zone of the vessel (zone 3). There is indeed a segregated zone that is the fact of the flow itself in the configuration studied, not that of differences in particle's characteristics.

Even with a distribution of the blades along the mixer's length, the horizontal configuration will give rise to stagnant zones in the mixer and zones that are poorly mixed. This must be particularly taken into account in the context of industrial batch mixing processing. For example, the filling procedure of the vessel, that is usually disregarded, may lead to the placement of the key component in zones that are not favored by the stirring action. In addition, non-conformities are usually detected at the beginning and at the end of batches and may be attributed to the emptying of unmixed zones that are placed close to the outlet valve gates. While this may be overcome by the use of continuous mixers, this is not always feasible because of production constraints. Direct technical solutions such as the inclination of the blades, the inclination of the vessel, as well as a combination of both, may be considered. This is possible in the polyvalent prototype presented here, and we will investigate these effects in future work. For this, the same experimental tracing procedure will be repeated.

A closer perspective of this work lays in the building of a model of powder agitation, able to catch all the tendencies revealed here, qualitatively and quantitatively. This may be based on a markovian model by the inclusion of the mechanisms identified in terms of transition probabilities. It is worth noting that the blender designed has also been elaborated to perform Particle Image Velocimetry, since the walls and the cylindrical vessel are transparent. This technique can be implemented with the use of an adapted tracker, as it allows to measure the different velocity fields of particles near the walls or at the powder bed surface. This would in turn help improve the markovian model by increasing the number of states and as a consequence its resolution.

At a longer term, the behavior of other powders will also be studied, so as to cover a wider spectrum of powder properties. In particular, cohesive powders of different shapes and sizes may reveal different flowabilities and drive to different tracing results. Tracing each powder during the establishment of an A/B mixture would also be meaningful in terms of understanding flow interactions, such as particle segregation.

Appendix 1: Data of tracer mass proportion evolution for semolina at 6 rad.s⁻¹ agitation speed

t (s)	0	4	10	60	300			
Tracer initially placed in zone 1								
X_1	1	0.505	0.320	0.285	0.273			
X_2	0	0.096	0.157	0.108	0.122			
<i>X</i> ₃	0	0.054	0.065	0.060	0.058			
X4	0	0.080	0.208	0.194	0.200			
X_5	0	0.141	0.162	0.152	0.169			
X ₆	0	0.123	0.088	0.202	0.178			
Tracer initially placed in zone 3								
<i>X</i> ₁	0	0.081	0.078	0.066	0.083			
X_2	0	0.140	0.143	0.129	0.200			
<i>X</i> ₃	1	0.694	0.622	0.609	0.488			
X_4	0	0.021	0.063	0.074	0.095			
X5	0	0.041	0.056	0.068	0.065			
X ₆	0	0.022	0.037	0.054	0.070			
		Tracer initially	placed in zone 4		-			
X_1	0	0.121	0.150	0.164	0.167			
X_2	0	0.052	0.061	0.112	0.128			
<i>X</i> ₃	0	0.017	0.034	0.085	0.080			
X4	1	0.310	0.337	0.212	0.231			
X_5	0	0.300	0.240	0.227	0.195			
X ₆	0	0.199	0.177	0.201	0.199			

Appendix 2: Data of tracer mass proportion evolution for fine lactose at 6 rad.s⁻¹ agitation speed

t (s)	0	4	10	300				
Tracer initially placed in zone 1								
<i>X</i> ₁	1	0.468	0.525	0.511				
<i>X</i> ₂	0	0.084	0.127	0.099				
<i>X</i> ₃	0	0.059	0.032	0.030				
<i>X</i> ₄	0	0.154	0.135	0.132				
X5	0	0.121	0.091	0.108				
X ₆	0	0.114	0.090	0.119				
Tracer initially placed in zone 3								
<i>X</i> ₁	0	0.045	0.048	0.024				
<i>X</i> ₂	0	0.047	0.053	0.020				
<i>X</i> ₃	1	0.766	0.808	0.875				
X4	0	0.038	0.024	0.034				
X5	0	0.044	0.032	0.021				
X ₆	0	0.061	0.035	0.027				
	Tracer	initially placed in	zone 4					
<i>X</i> ₁	0	0.108	0.090	0.251				
X_2	0	0.017	0.018	0.015				
<i>X</i> ₃	0	0.029	0.012	0.006				
X_4	1	0.224	0.336	0.294				
X5	0	0.203	0.269	0.180				
X ₆	0	0.418	0.275	0.254				
Appendix 3: Data of tracer mass proportion evolution for semolina and fine lactose at 15 rad.s⁻¹ agitation speed

t (s)	0	4	4	10		
		(semolina)	(fine lactose)	(fine lactose)		
Tracer initially placed in zone 1						
X_1	1	0.286 0.307		0.269		
X_2	0	0.157	0.112	0.107		
<i>X</i> ₃	0	0.047	0.064	0.060		
X_4	0	0.167	0.209	0.226		
X_5	0	0.179	0.131	0.163		
X ₆	0	0.165	0.177	0.176		
Tracer initially placed in zone 3						
<i>X</i> ₁	0	0.067	0.038	0.052		
X_2	0	0.125	0.047	0.050		
X_3	1	0.675	0.719	0.601		
X4	0	0.032	0.059	0.059		
X_5	0	0.083	0.059	0.139		
X ₆	0	0.019	0.083	0.099		
Tracer initially placed in zone 4						
X_1	0	0.194	0.210	0.204		
X_2	0	0.082	0.079	0.054		
<i>X</i> ₃	0	0.047	0.043	0.096		
X4	1	0.274	0.277	0.280		
X_5	0	0.248	0.245	0.193		
X ₆	0	0.156	0.146	0.173		

References

Ashton, M., Valentin, F.H., 1966. Truns Inst Chem Eng 44.

- Barling D., Morton D.A.V., Hapgood K., 2015. Pharmaceutical dry powder blending and scale-up: maintaining equivalent mixing conditions using a coloured tracer powder, Powder Technology, V 270, B, 461-469
- Bonamy, D., 2001. Phénomènes collectifs dans les matériaux granulaires : écoulements de surface et réarrangements internes dans des empilements modèles. Paris 11, Orsay.
- Bridgwater, J., 1976. Fundamental Powder Mixing Mechanisms. Powder Technol. 15, 215–236. doi:10.1016/0032-5910(76)80051-4
- Bridgwater, J., 2003, Powder mixers: What is going on inside? 4th International Conference for Conveying and Handling of Particulate Solids, Budapest, 2: 9.1–9.6
- Brone, D., Muzzio, F.J., 2000. Enhanced mixing in double-cone blenders. Powder Technol. 110, 179–189. doi:10.1016/S0032-5910(99)00204-1
- Cuq B., Gatumel C., Berthiaux H. Food powder mixing, in Handbook of Food Powders: Processes and properties, Bhandari – Bansal – Zhang – Shuck editeurs, Woodhead Publishing Series in Food Science, Technology and Nutrition No. 255, 1st edition august 2013, ISBN 0 85709 513 7.
- Daumann, B., Fath, A., Anlauf, H., Nirschl, H., 2009. Determination of the mixing time in a discontinuous powder mixer by using image analysis. Chem. Eng. Sci. 64, 2320–2331. doi:10.1016/j.ces.2009.01.032
- Hiseman, M.J.P., Laurent, B.F.C., Bridgwater, J., Wilson, D.I., Parker, D.J., North, N., Merrifield, D.R., 2002. Granular Flow in a Planetary Mixer. Chem. Eng. Res. Des., Materials Processing 80, 432–440. doi:10.1205/02638760232022401
- Kaye, B.H., 1997. Powder mixing in Technology and Engineering, Chapman and Hall ed., London
- Lacey, P.M.C., 1954. Developments in the theory of particle mixing. Journal of Applied Chemistry, 4, 257-268.
- Lacey, P.M.C, 1943. The mixing of solid particles. Transactions of the Institution of Chemical Engineers, 21, 53.
- Larachi F., Chaouki J., Kennedy G., 1995. 3-D mapping of solids flow fields in multiphase reactors with RPT, A.I.Ch.E. Journal, 41 (2), 439–443
- Leturia, M., Benali, M., Lagarde, S., Ronga, I., Saleh, K., 2014. Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods. Powder Technol. 253, 406–423. doi:10.1016/j.powtec.2013.11.045
- Marikh, K., Berthiaux H., Mizonov, V., Barantseva, E., Ponomarev, D. 2006. Flow analysis and markov chain modelling to quantify the agitation effect in a continuous powder mixer, Chemical Engineering Research and Design, Trans IChemE Part A, 84-A11, 1059-1074

- Massol-Chaudeur, S., Berthiaux, H., Dodds, J.A., 2002. Experimental study of the mixing kinetics of binary pharmaceutical powder mixtures in a laboratory hoop mixer. Chemical Engineering Science, 57, 4053-4065.
- Mayer-Laigle, C., Gatumel, C., Berthiaux, H., 2015. Mixing dynamics for easy flowing powders in a lab scale Turbula® mixer. Chem. Eng. Res. Des. 95, 248–261. doi:10.1016/j.cherd.2014.11.003
- Rose, H.E., 1959. A suggested equation relating to the mixing of powders and its application to the study of the performance of certain types of machines. Trans. AIChE 37, 47
- Smith, J.C., 1955. Mixing Chemicals with Soil. Ind. Eng. Chem. 47, 2240–2244. doi:10.1021/ie50551a020
- Wightman, C., Muzzio, F.J., 1998a. Mixing of granular material in a drum mixer undergoing rotational and rocking motions I. Uniform particles. Powder Technol. 98, 113–124. doi:10.1016/S0032-5910(98)00010-2
- Wightman, C., Muzzio, F.J., 1998b. Mixing of granular material in a drum mixer undergoing rotational and rocking motions II. Segregating particles. Powder Technol. 98, 125–134. doi:10.1016/S0032-5910(98)00011-4

Dans l'article précédent, trois mécanismes d'agitation des poudres ont pu être identifiés : la convection, directement due au transport de la poudre par les pales, l'avalanche, présente en surface et la diffusion, qui est un processus plus lent que les deux autres et s'effectue en périphérie des zones éloignées de la surface et des pales. Les expériences réalisées et les mécanismes semblent adaptés pour proposer un modèle basé sur les chaînes de Markov. Le chapitre IV.3 a pour objectif d'établir un modèle théorique inspiré des observations effectuées au chapitre IV.2, applicable aussi bien pour les poudres à écoulement libre que pour les poudres cohésives.

NB : le modèle théorique établi au chapitre IV.3 contient un paramètre noté « c », qui ne doit pas être confondu avec la cohésion, elle aussi notée « c » dans d'autres parties de ce manuscrit.

Résumé du Chapitre IV.3

Dynamique des écoulements de poudre en mélangeur convectif horizontal : modélisation par chaînes de Markov

Une modélisation par chaîne de Markov d'un mélangeur à poudre convectif horizontal, permettant de décrire l'agitation de deux différentes poudres, a été établie. Ce modèle d'écoulement considère quatre paramètres : la convection, l'avalanche, la diffusion verticale et la diffusion horizontale. Ces paramètres représentent l'influence des mécanismes d'agitation qui ont été identifiés expérimentalement dans le mélangeur. Les paramètres du modèle ont été calculés à partir de mesures expérimentales d'écoulement, réalisées au cours d'une étude précédente. Cela concerne une poudre à écoulement libre (semoule) et une poudre cohésive (lactose fin). Tous les paramètres du modèle ont des valeurs plus faibles pour la poudre cohésive, car la mobilité des particules est plus faible.

IV.3. Powder flow dynamics in a horizontal convective blender: Markov chain modelling

Léonard Legoix^a, Mathieu Milhé^a, Cendrine Gatumel^a, Vadim Mizonov^b, Henri Berthiaux^a

^aUniversité de Toulouse, Centre RAPSODEE, CNRS UMR 5302, Ecole des Mines d'Albi, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

^bISPEU, Department of Applied Mathematics, Rabfakosckaya 34, 153 003 Ivanovo, Russia

Keywords

Abstract

Convective mixer Markov chains Agitation mechanism Free-flowing powder Cohesive powder A Markov chain modelling of a horizontal convective powder blender describing the agitation of two different powders has been set up. This flow model considers four parameters: convection, avalanching, vertical diffusion and horizontal diffusion. These parameters represent the influence of agitation mechanisms that have been identified experimentally in the mixer. The parameters of the model have been fitted using experimental dynamic data previously studied for a free-flowing powder (semolina) and a cohesive powder (fine lactose). All the parameters of the models are smaller for the cohesive powder, particle's mobility being less significant.

1. Introduction

Powders are complex systems that can exhibit various behaviors, from fluids when aerated or put into fast motion, to nearly-continuous solids when packed or moving in a quasi-static regime. The movement of powders is not spontaneous, as it could be in many fluids where molecular diffusion takes place. Powder mixing operations can be performed through different technologies. Tumbling blenders consist of a rotating vessel that will mix powders mainly by avalanches into a bed surface layer (Henein et al., 1983). Convective blenders are equipped with a moving impeller that can break agglomerates that are readily to be found in fine cohesive powders. This type of blender is interesting in an industrial context where small particles are of great interest, since an increase of powder's specific surface improves many end-user properties.

The discrete nature of powders makes their flow difficult to model, since particles interact with each others through friction and cohesion forces. Models of powder mixing can be built using the Discrete Element Method (DEM), which applies fundamental principle of the dynamics on each particle. The DEM allows simulations of powder flow accounting for the interactions with mechanical parts of convective blenders such as impellers and walls. Recent studies focused on the simulation of powder mixing using a single blade, for a better understanding of particles flow around the impellers of convective mixers (Chandratilleke et al., 2012; Siraj, 2014). These two studies dealt with the impact of different blade parameters on mixing rates, such as blade rake angle or blade shape. In another study, the mixing of particles in convective blenders with rotating blades is simulated (Remy et al., 2011). This study focuses on the impact of polydisperse materials on mixing mechanisms, void fraction and stresses. It has been found that stresses decrease with an increase of polydisperity. An advantage of DEM simulation lies in its ability to generate data, such as velocity fields or contact number between particles, inside the powder bed during the mixing simulation, which is almost impossible experimentally. The Positron Emission Particle Tracking is the only experimental technique to picture detailed particles flow inside a powder bed (Laurent and Bridgwater, 2002). This is not enough to have detailed information on velocity fields of fine powders in most of mixing processes, where particle speeds can be ten times higher. The duration of DEM calculations increases when the particle size decreases (DEM Solutions, 2011), which is not adapted for fine powders that are numerous at a process scale. For instance, in 301 mixer there could be more than 10^{10} particles of 50 µm. Markov chain models go over these limitations: this is an Eularian approach calculating concentrations of particles, rather than a Lagrangian approach which follows the flow of every particles.

Markov chain modelling is a mathematical tool typically applied to make financial previsions (Gialampoukidis et al., 2014) or to solve queuing problems (Clegg, 2010). It has been also employed in various domains, such as aerodynamics (Tagliaferri et al., 2016) or chemistry (Georgiev et al., 2005) for instance. This way of modelling has been growing during the last two decades and has been applied in Chemical Engineering (Guo et al., 2008; Gutsche and Hartmann, 1995; Tamir, 1998) and to model different unit operations implying powders: mixing, fluidization, grinding and classification (Berthiaux and Mizonov, 2004). These models generally consist in separating spatially the process into states exchanging matter after successive time steps. In some case, states can represent different material properties changing during time.

Markov chains have been applied for different kinds of blending technologies such as a hoop mixers (Aoun-Habbache et al., 2002), static mixers (Ponomarev et al., 2009a; Ponomarev et al.,

2009b) and continuous convective mixers (Ammarcha, 2010; Marikh et al., 2006). In some of these studies, the transition probabilities, that are at the heart of the markovian models, have been introduced through the help of mixing or mass transport mechanisms. In the case of powder mixing, the typical mechanisms that have been experimentally identified are convection, diffusion and shearing (Lacey, 1954). The convection is a movement of a block made of many particles, whereas diffusion is a displacement at a scale close to that of the particles. Shearing is a hybrid mechanism of convection and diffusion where different planes of powders slip on each other. In a previous study (Legoix et al., 2016a), observation of mixing kinetics led to the identification of 3 main mechanisms: convection, a diffusion mechanism and an avalanching mechanism, close to a shear mechanism.

The objective of this work is to assess the potential of Markov chain modelling for the description of a batch convective mixer. First, a model based on different flow mechanisms is presented. Different set of parameters are then obtained though fitting experimental data for free-flowing and cohesive powders. Finally, a theoretical study of the model is carried out to investigate its sensibility to the values of the parameters.

2. Markov chain model of powder flow in a convective blender

The prototypal convective blender considered has already been studied in two previous works (Legoix et al. 2016a; 2016b). The first one focuses on rheology and the second one on mixing kinetics. Both studied a free-flowing and a cohesive powder in order to highlight the impact of cohesion on the overall behavior of the blender.

2.1. Blender studied

This prototypal convective blender has several parameters that can be adjusted, such as the vessel or the blades inclination. Here the configuration chosen for the model is the same as in the study on homogenization cited before (Legoix et al., 2016b): the vessel is horizontal, there are four straight blades and the distance between lateral walls is about 13 cm (Figure 1). Six zones have been defined to perform powder sampling during stirring operations: these zones also define the structure of the blender's Markov chain model.



Figure 1: Front view of the prototype and definition of the six zones (Legoix et al., 2016b).

2.2. Model description

Applied to powder blending operations, Markov chains are based on a separation of the mixer into several parts called cells. The Markov chain model proposed is made of 6 cells of equal volume, which are similar to the zones defined in (Legoix et al., 2016b) (see Figure 1). The cells 1 and 4 are separated from the cells 2 and 5 by the horizontal plane crossing the blender shaft, and the cells 1, 2 and 3 are separated from the cells 4, 5 and 6 by the vertical plane separating the vessel into two equal volumes. This structure originates from the observations of avalanching mechanisms taking place at the surface of the powder bed, this phenomenon being particularly active in the upper half of the blender: zones 1 and 4 are thus supposed to behave differently from the other ones where this mechanism is not observed. As well, a vertical separation seems appropriate to describe the convection mechanism present in zones occupied by blades: zones 4, 5 and 6 may exchange higher amounts of powder than zones 1, 2 and 3 for which blades are not passing through.

The amount of material in each cell is supposed to remain constant, i.e. the model describes mass transfer in the system for a steady-state operation. Thus, it can simulate either the evolution of quantities or concentrations of a given material in the system.

These cells can exchange powder and the proportion of powder in cells *j* that goes to cells *i* is denoted p_{ij} . This transport of powder between cells takes place after every transition, that is representing one blade pass (a quarter of shaft rotation). A matrix notation of the different proportions of tracer in different cells S_n after *n* transitions, and of the transition probabilities *P*, with p_{ij} coefficients placed in line *i* and row *j*, allows the calculations of the proportion of tracer present in cells after the n+1 transition (eq. 1). Since *P* is supposed to be linear and homogenous in this work,

which means that the transition probabilities do not depend on the cells compositions and on the time, S_{n+1} can be calculated directly with the initial vector of cells S_0 .

$$S_{n+1} = PS_n = P^n S_0 \qquad \qquad \text{eq. 1}$$

The matrix of transition probabilities P is based on the three main flow mechanisms that have been identified in this mixer, namely convection, avalanches and diffusion.

The mechanism of convection is directly induced by the blades. It is predominant in cells 4, 5 and 6 (Figure 2) that are in direct contact with the blades. This mechanism stands for the transport of powder by blades. It can be represented by a transition coefficient c linking these cells. In the present model, we will consider that this mechanism doesn't take place between other cells.



Figure 2: Convection mechanism transitions between cells occupied by blades.

The mechanism of avalanching can be observed at the surface of the powder bed. It is actually composed of two distinct powder flows: one from cell 4 to cell 1 where the blades are uplifting the powder bed, and another from cell 1 to cell 4 where the blades and the powder are going downwards. It can be modeled as an exchange of powder between the cells 1 and 4 (Figure 3). In addition, we postulate that both mechanisms have the same magnitude and are thus represented by the same coefficient a that represents the proportion of powder transiting from cell 1 to cell 4 due to this avalanching mechanism at each transition.



Figure 3: Avalanching mechanism transitions between cells on the free-surface.

Diffusion gathers all powder movement that cannot be observed easily during agitation. It is characterized by small amounts of powder that move from a cell to its neighboring cell (Figure 4). This mechanism has been evaluated experimentally by the slow evolution of tracer content in cells 2 and 3, that are not directly in contact with the blades, and for which no avalanching mechanism can be observed. As vertical and horizontal mass transports are probably independent, it is chosen to represent the diffusion with two distinct coefficients: d_v for vertical diffusion and d_h for horizontal diffusion.



Figure 4: Diffusion mechanism transitions between zones without convection or avalanches.

The matrix of transition probabilities P is constructed with these different coefficients (eq. 2). Diagonal coefficients (the proportion of powder remaining in its current cell) are calculated to ensure that the sum of each row is equal to 1. Coefficients c, a, d_v and d_h have to be positive values ensuring that diagonal coefficients of *P* are not negative. The parameters should not be greater than 0.5. This is obvious for coefficient *c* because it would imply a negative coefficient in the matrix *P*. Concerning *a*, d_h and d_v , it is assumed -based on experimental observations- that these mechanisms involve less material than the convection mechanism.

$$P = \begin{pmatrix} 1 - d_v - a & d_v & 0 & a & 0 & 0 \\ d_v & 1 - 2d_v - d_h & d_v & 0 & d_h & 0 \\ 0 & d_v & 1 - d_v - d_h & 0 & 0 & d_h \\ a & 0 & 0 & 1 - a - c & c & 0 \\ 0 & d_h & 0 & c & 1 - d_h - 2c & c \\ 0 & 0 & d_h & 0 & c & 1 - d_h - c \end{pmatrix}$$
eq. 2

3. Determination of model parameters for free-flowing and cohesive powders

3.1. Fitting method

3.1.1. Experimental data fitting procedure

Model parameters will be determined thanks to experimental data from experiments of a previous work (Legoix et al., 2016b): the corresponding operating conditions are presented in table 1. For both powders, homogenization was determined with a tracer initially placed in zone 1, 3 and 4. These homogenizations have been represented with the evolution of the tracer quantities in the 6 cells of the blender as a function of agitation time. The result of each experiment is a cells vector X_n , describing the distribution of tracer concentration in the 6 cells at the transition *n*. Transition number *n* is deduced from the speed ω [rad.s-1] and the stirring time *t* [s] (eq. 3). In this case, the agitation speed is about 6 rad.s⁻¹, which is associated to Froude numbers lower to 1 and to a rolling flow regime of the powder (Legoix et al., 2016a).

Powder	Semolina			Fine lactose			
ω (rad.s ⁻¹)	6			6			
t (s)	4	10	60	300	4	10	300
n	15	38	229	1146	15	38	1146

Table 1: Operating conditions applied for mixing kinetics determination.

3.1.2. Minimization criterion

The parameters c, a, d_v and d_h for these flow models are obtained by fitting all experimental data, for every initial position of the tracer, for each powder. For a given set of parameters, a criterion Δ is calculated (eq. 4): this criterion is minimized thanks to an optimization routine described in appendix, it consists in a Matlab[®] program that scans the parameters space several time with narrowing intervals at each iteration.

$$\Delta = \sum_{y=1,3,4} \left(\sum_{k=1}^{1146} (S_k(i) - X_k(i))^2 \right)$$
 eq. 4

An accuracy of the order of 10^{-4} on parameters values is obtained in three iterations: calculation duration for one set of parameters is about 10 min, with a processor Intel[®] CoreTM i5 of 2.4 GHz and a Random Access Memory DDR3 8 Go of 1.6 GHz.

3.2. Model parameters for free-flowing powder

The four parameters of the model for semolina have been evaluated (Table 2). The value of *c* is very close to 0.5: this means that cells 4 and 6 are supposed to exchange an amount of powder representing half of their volume with cell 5 at each transition by convection alone. Cell 5 sees almost of its powder content exchanged at each transition. Coefficient *a* shows that about 3.5 % of the material present at the surface of the powder bed is exchanged between cells 1 and 4 at each transition step, which is realistic. The diffusion is here only represented by d_v , model optimization suggesting that horizontal diffusion does not exist. The value of d_v represents an exchange of 0.7 % of the powder between zones 1, 2 and 3 that are not in direct contact with blades.

Table 2: Model parameters for free-flowing powder, at 6 rad.s⁻¹.

с	a	$d_{\rm v}$	d_h
0.4999	0.0347	0.0071	0

A detailed comparison between model and experimental mixing kinetics is presented in the following part. The charts are plotted in a semi-logarithmic scale concerning the x-axis (transition number n), for a better illustration of the evolution of S for short mixing times. For a better view of the kinetics, the initial state for n=0 has been added to these charts.

3.2.1. Tracer initially in cell 4

This model applied to semolina agitated, at 6 rad.s⁻¹, with tracer initially placed in zone 4, fits well the tracer repartition kinetics in different cells of the blender (Figure 5). Its concentration in cells 4, 5 and 6 is oscillating during the first transitions. This is due to the convection mechanism that moves important amounts of tracer from cell to cell after each transition. Half of the initial tracer quantity goes from cell 4 to 5 and 1 at the first transition, and most of it goes to cell 5 by convection. Then at the second transition, half of the tracer quantity presents in cell 5 goes back to cell 4 and the other half goes to cell 6. The tracer goes slowly to the cells 1, 2 and 3 that are not in direct contact with the blades, thanks to the avalanching and vertical diffusion mechanisms. In spite of the important difference in magnitude between convection and diffusion, tracer concentrations in agitated cells 4, 5 and 6 still decrease and reach a similar concentration than cells 1, 2 and 3 after 5 min of stirring.



Figure 5: Tracer proportion evolution in each cell for semolina at 6 rad.s⁻¹ with initial placement of tracer in cell 4, experimental values (points) and model (lines).

3.2.2. Tracer initially in cell 1

When the tracer initial position is cell 1, its experimental content decreases slowly and is stabilized after 229 transition steps (Figure 6). The model suggests a close tendency, but it still decreases after these 299 transitions. Blades that are stirring cells 4, 5 and 6 are fed in tracer from the cell 1 with the avalanching mechanism, which is taken into account by the model. Once the tracer is in cell 4, it is quickly distributed to the cells 5 and 6 by convection since the evolution of the tracer content in these cells is similar to that in cell 4. The experimental evolution of tracer in cell 2 is well fitted. However, the experimental low content in cell 3 is not well described by the model, suggesting a slow increase of the concentration in this cell. The avalanching mechanism traduced by an exchange of tracer between cells 1 and 4 seems to be a good approximation of the circulation of powder from cell 1 to the "agitated" cells. The diffusion mechanism chosen for the model is good enough to predict the evolution of concentration in cell 2, but is not so accurate to predict the evolution of tracer content in cell 3.



Figure 6: Tracer proportion evolution in each cell for semolina at 6 rad.s⁻¹ with initial placement of tracer in cell 1, experimental values (points) and model (lines).

3.2.3. Tracer initially in cell 3

A placement of tracer in cell 3 leads to a slower repartition of this key component over other cells, as compared with previous experiments and simulations (Figure 7). This is due to the small value of the vertical diffusion factor, which is the only mechanism connecting cell 3 with the rest of the powder bed in the model. The model does not fit well the slow decrease of the tracer in cell 3 and the increase in cell 2. Experimentally, the tracer present in cell 3 decreases quickly during the first transitions and decreases slowly afterwards. Instead of this, the model suggests a slow decrease of tracer content in cell 3 for the smaller and the greater values of the transition numbers, with a more important decrease in between. A placement of tracer in cell 3 shows the limits of the model proposed in this work: the diffusion mechanism allows modelling tendencies of tracer evolution into each cell, but it does not allow a more precise quantification.



Figure 7: Tracer proportion evolution in each cell for semolina at 6 rad.s⁻¹ with initial placement of tracer in cell 3, experimental values (points) and model (lines).

3.3. Model parameters for cohesive powder

The model parameters have been also calculated for fine lactose. The same rotational speed and the same initial positions than for semolina of the tracer are investigated. Experimental kinetics were determined at the same operational times than with semolina, except a lack of experimental data for t=60s. The coefficient of convection calculated is also close to 0.5, but is smaller than the c value obtained with semolina (Table 3). This means that the convection mechanism due to blade's movement is less efficient for cohesive powders. There is a similar trend for the coefficient a: 2.8 % of the material contained in cells 1 and 4 is exchanged at each transition. Contrarily to semolina, the only diffusion supposed to be acting is the horizontal diffusion. The value of this coefficient is about 70 times less important than for the diffusion coefficient of semolina and close to the optimization uncertainty. The smaller mobility of the tracer in the lactose bed is certainly due to the presence of cohesion forces gathering particles that cannot move individually. The compressibility of fine lactose is more important than that of semolina and 22.5% for fine lactose. This can explain the smaller mobility of powder in "non-agitated cells" (1, 2 and 3) as compared to the agitated ones (4, 5 and 6). In non-agitated cells, the powder may be slightly packed, whereas in agitated cells the powder may be aerated by the blades.

Table 3: Model parameters for the cohesive powder, at 6 rad.s⁻¹.

с	a	d_v	d_h
0.4511	0.0279	0	0.0001

3.3.1. Tracer initially in cell 4

When the lactose's tracer is initially in cell 4, the kinetic evolution is similar to that of semolina: tracer concentrations in agitated cells 4, 5 and 6 are close to each other after few transitions (Figure 8). In these zones, the model gives results that are very close to experimental data. The model suggests that in cell 1 the concentration increases slowly and reaches a limiting value after 100 transitions. Cells 2 and 3 are almost stagnant since the diffusion coefficient is very small for this powder. This is also well described by the model.



Figure 8: Tracer proportion evolution in each cell for fine lactose at 6 rad.s⁻¹ with initial placement of tracer in cell 4, experimental values (points) and model (lines).

3.3.2. Tracer initially in cell 1

The tracer has been placed in cell 1 first, and experimental and model kinetics are represented the same way as for semolina (Figure 9). A simple mechanism of avalanching as for semolina might not be accurate enough for cohesive powders in this situation. It has been observed previously (Legoix et al., 2016a) and in other studies (Alexander et al., 2006), that the avalanching of cohesive powders cannot be described as a continuous flow of powder, but rather as a discontinuous falling of consolidated blocks. The experiments suggests that the tracer concentration in cell 1 reaches an asymptotic value close to 0.5 after the first transition, whereas the model suggests a slower decrease leading to half of this value, after about 100 transitions. A fraction of the powder in cell 1 cannot be dispersed over other cells, and the simulation does not consider that, since every cells of the model suggested are in connection. Indeed, every transition probabilities going from a considered cell to a neighboring one is the same as the transition of the powder that could increase in non-agitated cells. A non-linear model, where P is time-dependent, may therefore seem more appropriate for cohesive powders.



Figure 9: Tracer proportion evolution in each cell for fine lactose at 6 rad.s⁻¹ with initial placement of tracer in cell 1, experimental values (points) and model (lines).

3.3.3. Tracer initially in cell 3

The model shows its limits when applied to the cohesive powder when the tracer is placed in cell 3 (Figure 10). In simulation results, most of the tracer remains in cell 3, which behaves as a dead zone, except for a small decrease seen for the longest agitation times. Two experimental points, which are smaller than 1, seems out of this tendency, after about 15 and 36 transitions. Inside the other cells, the experimental tracer content is slightly greater than zero, while the simulations results remain closer to zero. The diffusion mechanism suggested does not allow modelling this sharp decrease of tracer in zone 3, followed by a slow increase.



Figure 10: Tracer proportion evolution in each cell for fine lactose at 6 rad.s⁻¹ with initial placement of tracer in cell 3, experimental values (points) and model (lines).

4. Model sensitivity analysis

The relative influences of each parameter on tracer repartition, quantified by the Relative Standard Deviation (RSD), is investigated in this part. The *RSD* after *n* transitions of each vector S_n is calculated and can be figured as a function of *n*, so that the *RSD* is defined here as the ratio between the standard deviation of S_n with the mean value of S_n . The closer to zero is the *RSD*, the better is the tracer repartition over cells.

For this study, each model parameter has been decreased and increased by 10^{-4} and the associated *RSD* kinetic is calculated. This value of 10^{-4} is chosen since it represents the limit of precision of the parameter values. It also allows the respect of mass balance in cell 5, where two coefficients of convection are linking cells 4 and 6, of a value of 0.4999 for semolina and the sum of these coefficients should not be greater than 1. d_{RSD} represents the *RSD* deviation after an increase and a decrease of a given parameter, relatively to the deviation of this parameter. Knowing the value RSD_{x-} calculated with a parameter x decreased by 10^{-4} , and the value RSD_{x+} calculated with a

parameter x increased with 10^{-4} , d_{RSD} can be evaluated with eq. 5. The influence of each parameter is studied for both powders, with an initial placement of tracer in cell 1.

$$d_{RSD} = x \frac{|RSD_{x+} - RSD_{x-}|}{2.10^{-4}}$$
 eq. 5

4.1. Free-flowing powder model

For an initial placement of tracer in cell 1, the *RSD* kinetic is influenced differently by each parameter (Figure 11). The diffusion coefficient d_v influence does not depend significantly on the transition number, whereas the influence of *c* and *a* coefficients depends on it and globally decreases with the number of transitions. The diffusion has more relative influence on the RSD than the two others mechanisms, the convection coefficient being the one with the less impact on the *RSD*.



Figure 11: Influence of each semolina model parameters on the RSD, tracer initially placed in cell 1.

4.2. Cohesive powder model

For the cohesive powder, the influence of each parameters c, a and d_h depends on the transition numbers (Figure 12). For few transitions, the coefficient a has more impact on the RSD than c and d_h . The avalanching coefficient is the less impacting parameter in this case. After 200 transitions, aand c parameters influence do not depend anymore on the number of transitions, and c impact on RSD is still smaller than a's impact. In these conditions, the impact of diffusion increases with the number of transitions and is the more influent parameter on RSD.



Figure 12: Influence of each fine lactose model parameters on the RSD, tracer initially placed in cell 1.

For both powders, the global ranking of the parameters influence is similar. The diffusion coefficient d_v or d_h are more influent on the *RSD* and the less influent is the convection *c*. This could be explained by the important value of the diffusion coefficient as compared to convection. For long stirring times (or high transition number) and when the tracer is present in one of the three directly agitated cells (4, 5 and 6), the convection homogenizes the tracer quickly between these cells. On the contrary, cells 1, 2 and 3 are connected to other cells through a diffusion coefficient, of much smaller value than the convection coefficient. This is the reason why a small change in diffusion coefficient will have more impact on the *RSD* comparing to the convection coefficient for important transition numbers: this is the parameter that drives a wide tracer repartition for the higher stirring times.

5. Concluding remarks

A model of powder mixing in a convective prototypal blender has been established thanks to a Markov chain modelling scheme. This model is implemented with the three main flow mechanisms that have been established experimentally, namely convection, avalanches and diffusion. It concerns stirring times smaller than five minutes and a rotational speed of the impeller of 6 rad.s⁻¹. These mechanisms are traduced as coefficients, such as *c* for convection, *a* for avalanche and d_v and d_h for vertical and horizontal diffusion respectively. Experimental data have been used to fit these parameters for two "pure" powders corresponding to different cases of particulate flow (free-flowing and cohesive).

For both products, the convection coefficient value is the higher, followed by the avalanching coefficient. For free-flowing mixtures, the diffusion is only vertical, whereas for cohesive mixtures, the diffusion is only horizontal. Convection, avalanche and diffusion coefficients are always smaller for cohesive material as compared to coefficients for the free-flowing powder. This is due to cohesive forces between particles and powder bed compaction that counteract the movement of the powder, especially in cells for which blades are not passing through. Model simulations have been performed to look at the model's sensibility to parameters with the example of a variation of each parameters and its impact on tracer repartition kinetics.

As a perspective to this work, a non-homogenous and non-linear (where the matrix P depends on time and S vectors) Markov chain modelling should be suggested to provide a model that fits better the experimental kinetic data, especially for cohesive powders where the actual model shows difficulties. Also more experimental data are required to describe more precisely the evolution of tracer concentrations. This can lead to a model for more complex convective blenders, such as planetary blenders.

Appendix: Minimization algorithm



References

- Alexander, A.W., Chaudhuri, B., Faqih, A., Muzzio, F.J., Davies, C., Tomassone, M.S., 2006. Avalanching flow of cohesive powders. Powder Technol. 164, 13–21.
- Ammarcha, C., 2010. Mélange des poudres en continu: modèles dynamiques et caractérisation des mélanges en ligne (Thèse de doctorat). Institut national polytechnique, Toulouse, France.
- Aoun-Habbache, M., Aoun, M., Berthiaux, H., Mizonov, V., 2002. An experimental method and a Markov chain model to describe axial and radial mixing in a hoop mixer. Powder Technol., 3rd French Colloquium on Powder Science & Technology 128, 159–167.
- Berthiaux, H., Mizonov, V., Applications of Markov Chains in Particulate Process Engineering: A Review, Can. J. Chem. Eng. 82 (2004) 1143–1168.
- Chandratilleke, G.R., Yu, A.B., Bridgwater, J., 2012. A DEM study of the mixing of particles induced by a flat blade. Chem. Eng. Sci. 79, 54–74.
- Clegg, R.G., 2010. A discrete-time Markov-modulated queuing system with batched arrivals. Performance evaluation. 67, 376-385.
- DEM_Solutions, 2011. EDEM 2.4 User Guide. DEM Sol Solutions Limited, Edinburgh, Appendix A
- Georgiev, G.S., Georgieva, V.T., Plieth, W., 2005. Markov chain model of electrochemical alloy deposition. Electrochemica Acta. 51, 870-876.
- Gialampoukidis, I., Gustafson, K., Antoniou, I., 2014. Time operator of Markov chains and mixing times. Application to financial data. Physica A. 415, 141-155.
- Guo, Q., Liang, Q., Ni, J., Xu, S., Yu, G., Yu, Z., 2008. Markov chain model of residence time distribution in a new type entrained-flow gasifier. Chemical Engineering and Processing. 47, 2061-2065.
- Gutsche, R., Hartmann, K., 1995. Application of Markov chains in deriving criteria for predicting the dynamic behaviour of chemical engineering processes. Computers and Chemical Engineering. 19, 729-734.
- Henein, H., Brimacombe, J., Watkinson, A., 1983. Experimental study of transverse bed motion in rotary kilns. Metall. Trans. B 14B, 191–205.
- Lacey, P.M.C., 1954. Developments in the theory of particle mixing. Journal of Applied Chemistry, 4, 257-268.
- Laurent, B.F.C., Bridgwater, J., 2002. Influence of agitator design on powder flow. Chem. Eng. Sci. 57, 3781–3793.
- Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux, H., 2016a. Analysis of powder flow and in-system rheology in a horizontal convective mixer with reclining blades. Not published (see Chapter IV.1 of this thesis manuscript).

- Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux, H., 2016b. Powder flow dynamics in a horizontal convective blender: tracer experiments. Not published (see Chapter IV.2 of this thesis manuscript).
- Legoix, L., Gatumel, C., Milhé, M., Berthiaux H., 2017. Rheology of cohesive powders in a pilot scale planetary blender, Powder Technol., 305, 609-619.
- Marikh, K., Berthiaux, H., Mizonov, V., Barantseva, E., Ponomarev, D., 2006. Flow Analysis and Markov Chain Modelling to Quantify the Agitation Effect in a Continuous Powder Mixer. Chem. Eng. Res. Des. 84, 1059-1074.
- Ponomarev, D., Mizonov, V., Berthiaux, H., Gatumel, C., Gyenis, J., Barantseva, E., 2009a. A 2D Markov chain for modelling powder mixing in alternately revolving static mixers of Sysmix® type. Chem. Eng. Process. Process Intensif. 48, 1495–1505.
- Ponomarev, D., Mizonov, V., Gatumel, C., Berthiaux, H., Barantseva, E., 2009b. Markov-chain modelling and experimental investigation of powder-mixing kinetics in static revolving mixers. Chem. Eng. Process. Process Intensif. 48, 828–836.
- Remy, B., Khinast, J.G., Glasser, B.J., 2011. Polydisperse granular flows in a bladed mixer: Experiments and simulations of cohesionless spheres. Chem. Eng. Sci. 66, 1811–1824.
- Siraj, M.S., 2014. Single-blade convective powder mixing: The effect of the blade shape and angle. Powder Technol. 267, 289–301.
- Tagliaferri, F., Hayes, B.P., Viola, I.M., Djokic, S.Z., 2016. Wind modeling with nested Markov chains. Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics. 157, 118-124.
- Tamir, A., 1998. Applications of Markov Chains in Chemical Engineering. Elsevier. ISBN: 978-0-444-82356-4.

Afin de mieux comprendre l'écoulement des poudres dans les mélangeurs convectifs, des études de rhéologie systémique ainsi que des caractérisations à l'échelle laboratoire ont été réalisées. Pour un procédé aussi complexe que le mélangeur Triaxe[®], de par les deux mouvements rotatifs de son mobile d'agitation, des connaissances plus approfondies des régimes d'écoulements et des mécanismes de mélanges induits par les pales sont nécessaires. C'est pour cela qu'un mélangeur prototype convectif a été conçu, développé et en grande partie étudié au cours de cette thèse.

Dans ce travail, il a été mis en évidence que la coulabilité d'une poudre exerce une influence sur la puissance mécanique nécessaire pour l'agiter : à masse égale, les poudres cohésives nécessitent moins de puissance que les poudres à écoulement libre. Ceci a été observé dans le mélangeur Triaxe[®] ainsi que dans le mélangeur prototype convectif. Une corrélation entre le nombre de puissance et le nombre de Froude a été établie : $N_p=a.F_r^b$ et permet d'estimer la puissance mécanique d'agitation à partir de paramètres dépendant du procédé (dimensions géométriques, vitesse d'agitation, taux de remplissage) et de la cohésion de la poudre. Les résultats cohérents obtenus sur les deux mélangeurs montrent la validité de l'approche. La coulabilité de la poudre influence la valeur du coefficient *a*, alors que le régime d'écoulement impacte le coefficient *b*.

Ces phénomènes rhéologiques à l'échelle du procédé d'agitation peuvent être expliqués par des caractérisations effectuées à plus petite échelle : à l'échelle des particules (microscopique) et du laboratoire (mésoscopique). Les contacts entre les particules d'un mélange de poudres ainsi que l'état de consolidation du milieu influencent la puissance à fournir pour agiter celui-ci.

L'écoulement des poudres induit par le mouvement des pales dans un mélangeur convectif peut être décrit selon deux régimes d'écoulements : le roulement et la cataracte. Le premier, présent pour les nombres de Froude inférieurs à un, est caractérisé par des avalanches de poudres, alors que le second se traduit par la projection de particules. Ces régimes d'écoulement peuvent avoir une influence non négligeable sur le mélange des poudres et doivent être considérés lors d'une telle opération, notamment dans le cas d'une agitation avec des pales inclinées.

L'écoulement des poudres en mélangeur convectif peut être aussi décrit selon trois mécanismes : la convection par les pales, l'avalanche et la diffusion. Les expériences d'agitation ainsi que le modèle stochastique établi dans ce travail suggèrent que ces mécanismes transportent de

plus faibles quantités de matières pour les poudres plus cohésives. Les forces d'attractions particulaires et la compressibilité plus importante de ces milieux en sont certainement la cause.

Une perspective immédiate à cette thèse serait d'améliorer le modèle établi, qui a montré des difficultés pour modéliser l'agitation des poudres cohésives, notamment dans les zones éloignées des pales. En effet, le modèle d'écoulement pour les poudres, dont les paramètres sont calculés à partir d'expériences de traçage, est limité par le nombre de cellules échantillonnées dans le prototype. Cela peut être amélioré en proposant un protocole expérimental permettant de prélever de plus petites quantités de poudre dans le mélangeur. Par ailleurs, le modèle est basé sur des mécanismes observés (convection et avalanche) et sur un mécanisme supposé (diffusion). Cela peut être aussi amélioré en effectuant des observations plus précises des écoulements présents dans le mélangeur. Une technique de vélocimétrie par analyse d'images (PIV) ou la tomographie d'émission de positrons (PEPT) peuvent permettre de faire cela. Puis, l'établissement d'une chaîne de Markov non-linéaire permettrait d'améliorer ce modèle. Un tel modèle permettrait de prendre en compte l'état du milieu lors de l'agitation, mais aussi d'effectuer des mélanges de constituants avec des propriétés différentes, comme la taille des particules, connue pour favoriser la ségrégation.

Une deuxième perspective envisageable serait d'étudier l'agitation des poudres dans le mélangeur prototype pour une inclinaison verticale de la cuve. Dans ce cas, la force de gravité jouerait un rôle différent que pour un positionnement horizontal et les régimes d'écoulements ainsi que les mécanismes impliqués seront différents. Une telle étude serait intéressante car de nombreux agitateurs industriels sont basés sur un mouvement des pales dans un plan horizontal, comme les mélangeurs à haut cisaillement.

Enfin, pour une perspective sur un plus long terme, un modèle d'écoulement des poudres dans le mélangeur Triaxe[®] pourrait être mis en place. Il peut s'agir d'une seule chaine de Markov basée sur un découpage en trois dimensions de ce mélangeur et inspiré des paramètres évalués sur un modèle du mélangeur prototype. Il peut aussi s'agir de la combinaison de deux chaînes de Markov, avec par exemple, l'une établie sur la base du mélangeur prototype placé en position horizontale, et l'autre établie à partir d'une position verticale du mélangeur. Une combinaison de telles chaînes est possible en les faisant agir alternativement sur le vecteur d'état. Un ajustement de l'importance des paramètres d'une chaîne par rapport à ceux de l'autre pourrait permettre de simuler l'agitation selon différentes trajectoires de pales, comme il peut en exister dans les mélangeurs planétaires.

Résumé

Etude expérimentale et modélisation de mélangeurs convectifs : agitation de poudres de différentes coulabilités

Les étapes de mélange sont souvent délicates à appréhender, car il subsiste encore des lacunes sur les lois dynamiques qui régissent ces opérations. De ce fait, la prédiction de l'homogénéité d'un mélange de poudres nécessite encore de nombreux essais. Dans ce travail de thèse, nous nous attachons à développer une méthodologie qui permet de contribuer au développement de modèles prédictifs dans les mélangeurs de poudres tout en mettant en évidence des invariants possibles pour les changements d'échelle sur ces procédés. Ainsi nous avons étudié l'agitation de poudres, avec différentes résistances à l'écoulement, dans un mélangeur convectif planétaire de type Triaxe[®] d'une contenance de 48 L. Des mesures de propriétés rhéologiques à l'échelle du laboratoire (rhéomètre FT4, voluménomètre) sont effectuées afin de mieux comprendre le comportement des poudres à l'échelle du mélangeur. Un mélangeur convectif prototype a été conçu dans le cadre de cette thèse. Cet appareil polyvalent constitué d'une cuve cylindrique transparente et agité par un mobile constitué de quatre pales, permet de visualiser les régimes et les mécanismes d'écoulement tout en effectuant des mesures rhéologiques. Deux régimes d'écoulement ont été identifiés (roulement, cataracte), ainsi que trois mécanismes (convection, diffusion et avalanche). Ces mécanismes ont permis d'établir un modèle stochastique, dont les paramètres ont été évalués expérimentalement pour une poudre à écoulement libre et pour une poudre cohésive.

Mots clés : Mélangeur convectif, Agitation, Poudres cohésives, Rhéologie, Chaînes de Markov

Abstract

Experimental study and modeling of convective mixers: agitation of powders of different flowabilies

Mixing systems are usually difficult to understand, because there is a lack of knowledge concerning dynamic laws ruling these operations. Thus, nowadays, several tests are needed to predict properly the homogeneity of a powder mix. Throughout this PhD work, a method is developed to build predictive models for powder mixers and to bring out possible invariants for scale switching on these processes. Thus the stirring of powders is studied using different flow resistances within a 48L capacity Triaxe[®], a convective planetary mixer. Rheological properties measurements are done at labscale (FT4 rheometer, volumenometer) for a better understanding of powder behavior at a wider mixer scale. A prototype blender has been built for this work. This polyvalent device, made of four blades and of a transparent vessel, allows to observe flow regimes and mechanisms, and to do rheological measurements. Two flow regimes have been identified (rolling, cataracting) and three flow mechanisms (convection, diffusion and avalanching). These mechanisms allowed to do stochastic modelling, for which parameters have been evaluated with experiments for free-flowing and cohesive powders.

Keywords : Convective blender, Agitation, Cohesive powders, Rheology, Markov chains