Université de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

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

Discipline ou spécialité :

Génie des procédés et de l'environnement

Présentée et soutenue par :
Chawki AMMARCHA

le : jeudi 9 décembre 2010

Titre :

MÉLANGE DES POUDRES EN CONTINU :
MODÈLES DYNAMIQUES ET
CARACTÉRISATION DES MELANGES EN LIGNE

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

Unité de recherche :
RAPSODEE

Directeur(s) de Thèse :
Henri BERTHIAUX
Michel CABASSUD

Rapporteurs :

Jamal CHAOUKI
Pierre GUIGON

Membre(s) du jury :

Jamal CHAOUKI
Pierre GUIGON
Thierry RUIZ
Nadine LE BOLAY

REMERCIEMENTS

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

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

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

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

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

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

Table des matières

Introduction générale **1**

1 Etat de l'art en mélange des poudres : synthèse bibliographique **6**

Introduction 6

1.1 Mécanismes de mélange et de ségrégation 8

1.1.1 Mécanismes de mélange 8

1.1.2 Mécanismes de ségrégation 10

1.1.3 Les différents types de mélanges 13

1.2 Facteurs influençant l'équilibre mélange-ségrégation 16

1.2.1 Influence de la distribution granulométrique 16

1.2.2 Influence des forces inter-particulaires 17

1.2.3 Influence de la composition et de la formulation 19

1.3 Caractérisation de l'état de mélange : application au mélange en continu . . . 20

1.3.1 Intensité et échelle de ségrégation 20

1.3.2 Caractérisation de la qualité de mélange en continu 25

1.4 Critère d'acceptation de l'homogénéité 27

1.5 Techniques de mesure de l'homogénéité des mélanges en ligne et en temps réel 29

1.5.1 Les méthodes spectroscopiques 29

1.5.2 Technique d'analyse d'image 40

1.5.3 Autres techniques analytiques 45

1.6 Régulation d'un procédé mettant en jeu un écoulement granulaire 49

1.7 Modèles dynamiques 54

1.7.1 Cinétique de mélange 54

1.7.2 Modèle de mélange par diffusion et convection 56

1.7.3 Méthodes des éléments discrets DEM 60

1.7.4 Modèle stochastique d'une chaîne de Markov 64
Conclusion 74

2 Matériels et méthodes 76
2.1 Dispositif expérimental 76
2.1.1 Système de dosage 77
2.1.2 Système de mélange 79
2.2 Caractérisation des produits utilisés 81
2.2.1 Distribution granulométrique 81
2.2.2 Masse volumique 83
2.2.3 Compressibilité et coulabilité 84
2.2.4 Attrition 85
2.3 Mesures des masses et des débits massiques 86
2.3.1 Masse retenue et débit de sortie 86
2.3.2 Répartition des particules et des débits internes 89
2.4 Mesure de la qualité des mélanges en ligne 92
2.4.1 dispositif d'analyse d'images 93
2.4.2 Calibrage et validation de la technique d'analyse d'image 101
2.4.3 Mesure en continu de la variance et du coefficient de variation 104

3 Étude de l'agitation en régime transitoire 106
Introduction 106
3.1 Étude de l'agitation lors de la vidange 106
3.1.1 Effet de la vitesse d'agitation et de la masse initiale 107
3.1.2 Différents régimes d'écoulement lors de la vidange 109
3.2 Étude de l'agitation lors du démarrage 115
3.2.1 Évolution de la masse retenue et du débit de sortie 115
3.2.2 Détermination des masses retenues limites 118
3.2.3 Différents régimes d'écoulement 120
3.2.4 Analyse du temps de passage lors du démarrage et en régime permanent 124
3.3 Analyse de l'écoulement à une échelle moindre 126
3.3.1 Répartition internes des masses retenues 127
3.3.2 Nouvelles corrélations et cohérence des mesures 129

3.3.3 Détermination des débits internes 130
Conclusion 133

4 Modélisation du procédé par une approche Markovienne 135
Introduction 135
4.1 Développement d'un modèle "Macroscopique" 135
4.1.1 Application du modèle en vidange de mélangeur 137
4.1.2 Application du modèle lors du démarrage du procédé et en régime permanent 143
4.2 Modélisation mésoscopique 149
4.2.1 Principe et structure du modèle 149
4.2.2 Méthodologie pour la détermination de la matrice des probabilités de transition 151
4.2.3 Exemple d'application n°1 : impulsion de traceur 154
4.2.4 Exemple d'application n°2 : simulation de l'écoulement des particules en régime transitoire 157
4.3 Application du modèle mésoscopique au cas étudié 164
4.3.1 Modèle markovien homogène 166
4.3.2 Modèle markovien non homogène 171
Conclusion 179

5 Étude des mélanges 180
Introduction 180
5.1 Caractérisation du mélange à l'intérieur du mélangeur 181
5.1.1 Répartition massique 181
5.1.2 Temps de passage des produits purs et du mélange 183
5.1.3 Composition du mélange à l'intérieur du mélangeur 184
5.1.4 Détermination des masses retenues limites 186
5.2 Effets de la l'agitation, de l'échelle d'observation et de la composition sur l'homogénéité d'un mélange binaire 189
5.2.1 Étude d'un mélange binaire de 50% de composition (Mélange 1) 190
5.2.2 Étude d'un mélange binaire de 12,5% de composition (Mélange 2) . . . 201
5.3 Modélisation markovienne du mélange binaire 207

5.3.1 Élaboration du modèle de mélange 207
5.3.2 Détermination des matrices de transition 209
5.3.3 Démarrage du procédé et régime permanent 212
5.3.4 Effet d'un échelon appliqué sur la vitesse d'agitation N 218
5.3.5 Conclusion 222

Conclusion générale **224**

Bibliographie **228**

Annexes **239**
.1 Annexe 1 239
.2 Annexe 2 240
.3 Annexe 3 241
.4 Annexe 4 245
.5 Annexe 5 247
.6 Annexe 6 248
.7 Annexe 7 253
.8 Annexe 8 255
.9 Annexe 9 256
.10 Annexe 10 257
.11 Annexe 11 261

Résumé **264**

Abstract **265**

Nomenclature **266**

Introduction générale

Le mélange de poudres est une opération essentielle dans plusieurs secteurs d'activités industriels tels que la pharmacie, la chimie fine, l'agro-alimentaire, le ciment...
Quel que soit le domaine d'application, l'objectif de cette opération est d'obtenir des produits intermédiaires ou finis avec la répartition la plus homogène possible des différents constituants. Dans l'industrie pharmaceutique par exemple, un comprimé est obtenu à partir du mélange de plusieurs constituants granulaires. Etant donné que le mélange final sera réparti en plusieurs unités qui devront contenir à une certaine tolérance près la même quantité d'excipients et de produits actifs, la qualité du mélange réalisé va conditionner d'emblée la qualité du produit fini. Un autre exemple est celui de l'industrie agroalimentaire, qui cherche, à partir de l'opération de mélange des solides, à produire des substances alimentaires dont les proportions en chaque constituant sont les plus proches possibles de la composition du lot total (voir figure1).



FIGURE 1 – Mélange multiconstituant d'un produit alimentaire

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

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

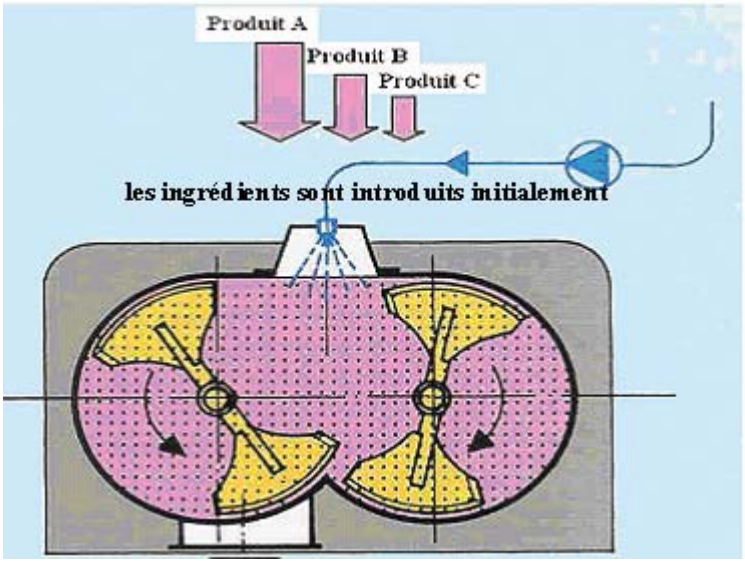


FIGURE 2 – Le mélange des poudres est souvent réalisé en fonctionnement batch

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

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

Cette thèse est la continuité des travaux effectués dans notre laboratoire sur le mélange des poudres en continu [2, 3], l'enjeu étant d'optimiser la conception et le fonctionnement de ce type de mélangeurs en regard d'un critère de qualité des mélanges. En particulier, on s'intéresse au développement d'une méthodologie pour le contrôle en ligne et en temps réel de l'homogénéité des mélanges de poudres en continu.
Comme le montre la figure 3, pour pouvoir contrôler le procédé de mélange des poudres en continu, nous devrons être capable de mesurer en temps réel la qualité du produit final, pour utiliser ensuite cette mesure dans la régulation du procédé.

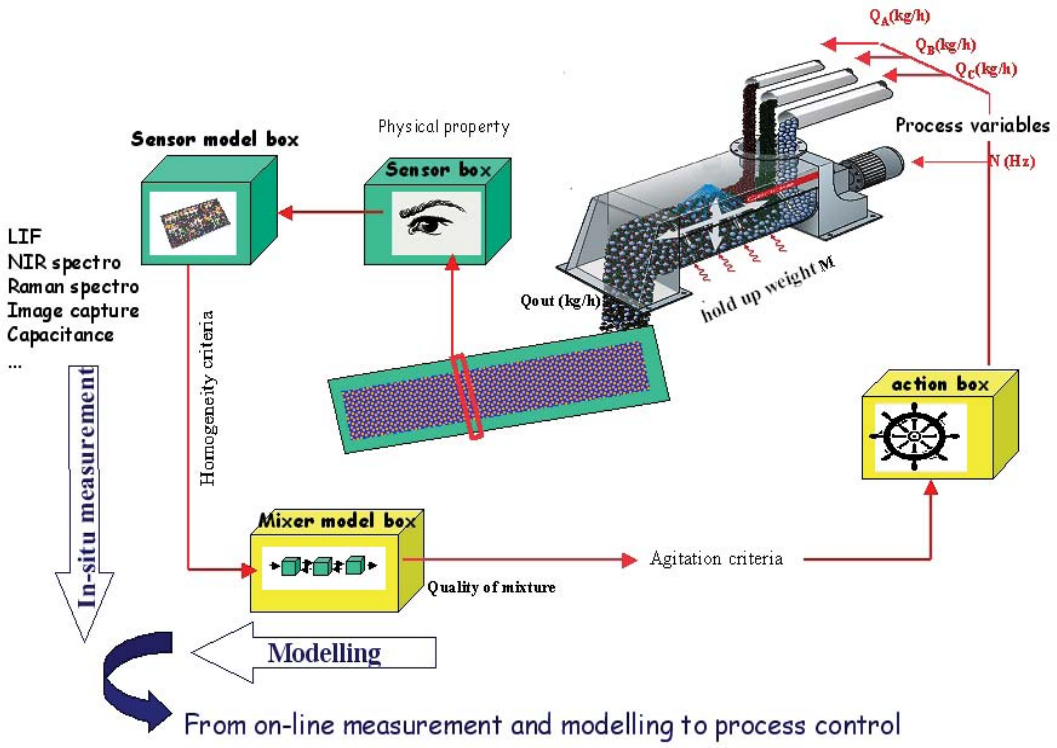


FIGURE 3 – De la mesure en ligne, en passant par la modélisation, au contrôle-commande de procédé [4]

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

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

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

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

Finalement, dans le chapitre 5 nous étudierons l'effet de l'action de l'agitation et de la composition du mélange sur le degré d'homogénéité obtenu dans le cas d'un mélange binaire. En particulier, nous chercherons, à travers cette étude, à savoir à quel point la vitesse d'agitation peut être utilisée pour ajuster et réguler la qualité du mélange (dans le cas d'une formulation donnée). Ceci doit nous permettre d'établir un lien entre la dynamique de l'écoulement des particules et la qualité du mélange.
L'approche de modélisation Markovienne sera sollicitée à nouveau dans ce chapitre. Cette fois-ci, le modèle développé servira à décrire l'évolution de la composition du mélange (et par conséquent sa qualité) sous différentes conditions d'agitation. Ceci est un point important dans la perspective de développer une stratégie de contrôle commande de ce procédé.

1

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

Introduction

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

Bien que le mélange de poudres soit une opération très courante, son approche reste très empirique ; les études consacrées à ce type de mélange semblent relativement insuffisantes par rapport à toute l'attention scientifique consacrée aux mélanges des fluides.
Plus spécifiquement, les écoulements granulaires dans les différents mélangeurs continus (industriels) ne sont pas simples à maitriser. Leurs comportements sont loin d'être compris et aucune approche ne permet à l'heure actuelle de décrire la complexité des phénomènes observés. Une première difficulté fondamentale de cette opération est qu'elle est réalisée à partir d'un grand nombre de particules, de différentes propriétés d'écoulement, pour lesquelles les mouvements sont caractérisés par un aspect fluctuant et aléatoire. Ceci entraine souvent une forte instabilité de composition de mélange liée principalement aux conditions

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

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

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

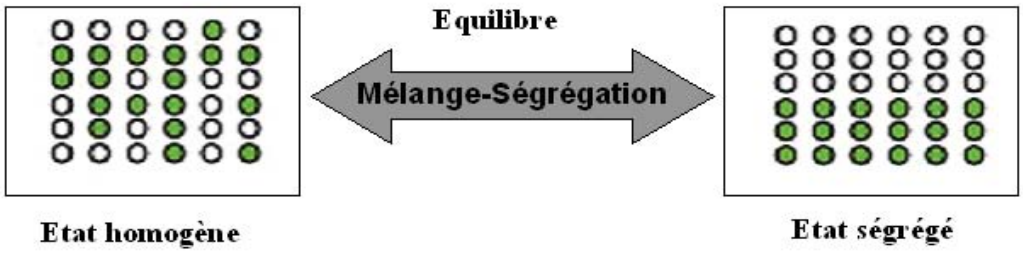


FIGURE 1.1 – Equilibre entre mélange et démélange

1.1 Mécanismes de mélange et de ségrégation

1.1.1 Mécanismes de mélange

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

– **Le mélange par diffusion :** il s'agit d'un déplacement individuel des particules dans des directions aléatoires, les amenant à se positionner les unes par rapport aux autres, ce qui conduit à des réarrangements à l'échelle de quelques particules (voir figure1.2). A la différence de la diffusion des liquides qui est créée naturellement suite à un gradient de concentration, la diffusion des solides nécessite un apport d'énergie qui permet le mouvement, la collision entre grains, et la dispersion des particules.

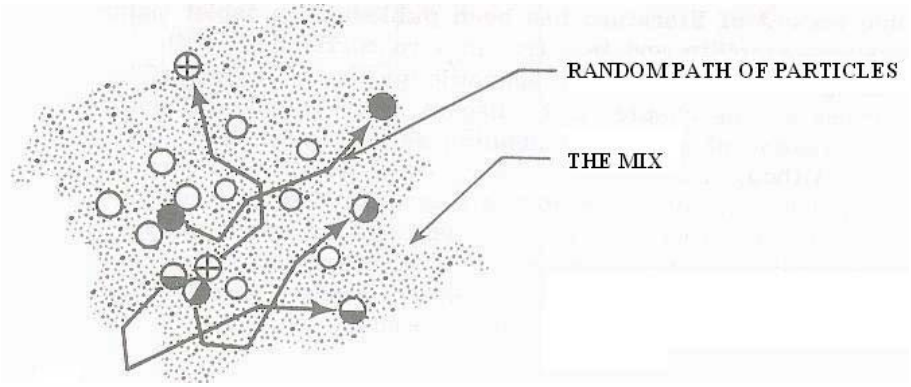


FIGURE 1.2 – Mélange par difusion d'après Lantz et Schwartz.,1990[13]

– **Le mélange par convection :** il s'agit du déplacement des particules par blocs (voir figure1.3). Ceci nécessite le plus souvent l'intervention d'une force extérieure (une pale d'agitation par exemple) pour amener une énergie suffisante au système, conduisant à des réarrangements à l'échelle de l'appareil. Ce mécanisme seul ne permet ainsi qu'une

homogénéité à grande échelle.

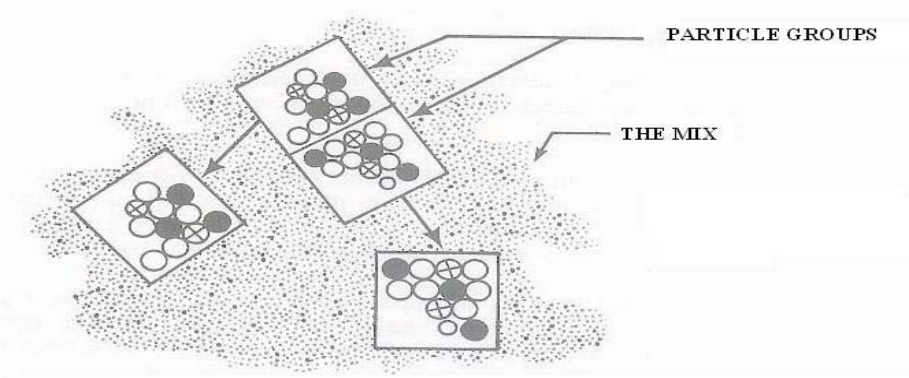


FIGURE 1.3 – Mélange par convection d'après Lantz et Schwartz.,1990[13]

– **Le mélange par cisaillement :** il s'agit d'un déplacement des particules en couches (voir figure1.4). Il apparaît des plans de déplacement de particules au sein du mélange. Le mouvement des particules est considéré comme une sorte de « convection de surface », ce mécanisme nécessite une énergie intermédiaire par rapport aux deux autres.

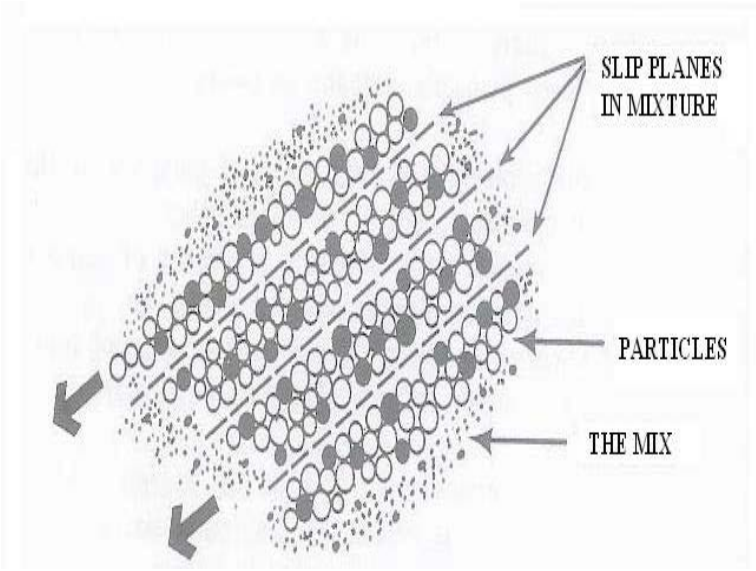


FIGURE 1.4 – Mélange par cisaillement d'après Lantz et Schwartz.,1990[13]

Généralement les mécanismes de mélange par convection et par cisaillement permettent d'atteindre rapidement un bon degré de mélange à l'échelle macroscopique, tandis que le mécanisme de dispersion (diffusion) permet de mélanger à une échelle plus petite (voir figure1.5). La prépondérance de l'un ou l'autre de ces mécanismes est imposée par le type de mélangeur utilisé, mais aussi par la nature des particules.

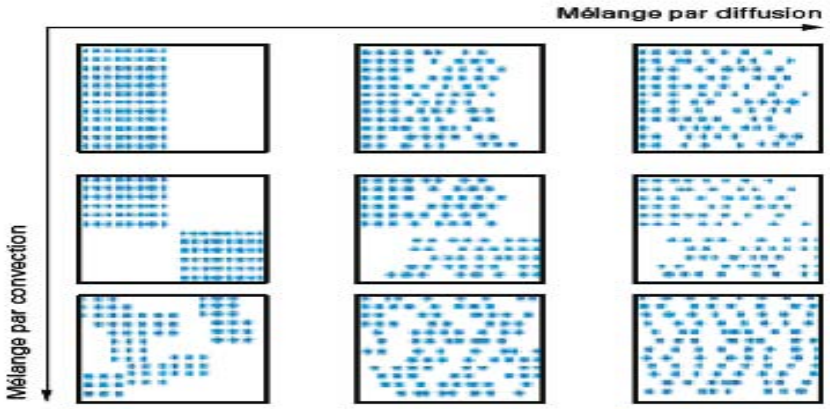


FIGURE 1.5 – Mélange par convection et diffusion (Schofield 1970) [14]

1.1.2 Mécanismes de ségrégation

L'opération de mélange des solides divisés est toujours accompagnée d'un processus compétitif de démélange appelé ségrégation. Ce processus aboutit généralement à une répartition spatiale non homogène des différentes espèces de grains. Dans le cas des liquides, la ségrégation est due aux éléments de fluides de concentrations différentes, mais disparaît lorsqu'on atteint une distribution uniforme. En revanche, dans le cas d'un mélange des solides divisés, les causes de ségrégation sont nombreuses et liées principalement à des différences de propriétés physiques des produits, telles que l'écart de taille, les différences de densité, de forme ou de coefficient de frottement des espèces du mélange. D'autres facteurs secondaire peuvent également induire une ségrégation. Ici, on peut citer : l'humidité, les charges électrostatiques, les effets de surface....Selon Harnby [10], parmi tous ces facteurs, la taille des particule est la variable la plus importante dans la détermination des caractéristiques d'un mélange des poudres en écoulement :
(a) si le mélange est composé de particules de tailles $> 75\mu m$, la ségrégation est obtenue rapidement.
(b) si la taille des particules est réduite en dessous de $75\mu m$, on peut observer une diminution de la ségrégation.
(c) en dessous de $10\mu m$, il n'y a presque plus de ségrégation.

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

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

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

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

Ségrégation par percolation des fines

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

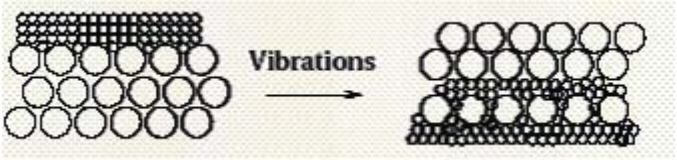


FIGURE 1.6 – Ségrégation par percolation des fines sous l'effet de la vibration Campbell & Bridgwater.,1973[19]

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

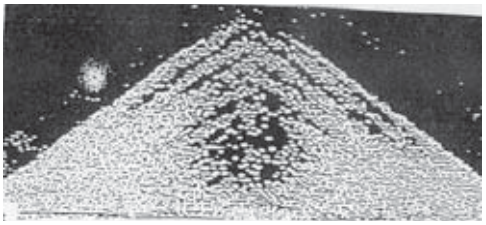


FIGURE 1.7 – Ségrégation par percolation des particules de différente taille sous l'effet d'un déversement en tas (particules blanches (3,1 mm) & particules noires (1,1 mm))

Ségrégation due aux trajectoires

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

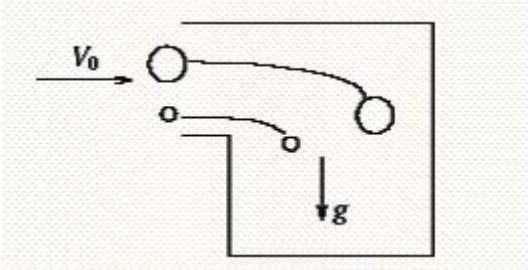


FIGURE 1.8 – Ségrégation due aux trajectoires (d'après Harnby[10])

Ségrégation par élutriation

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

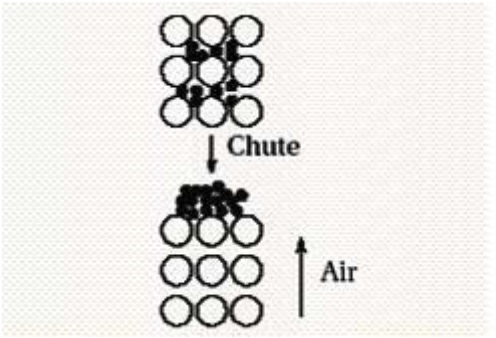


FIGURE 1.9 – Ségrégation par élutriation (d'après Massol-Chaudeur[17])

Pour limiter le phénomène de ségrégation, les industriels ajoutent des additifs, appelés excipients anti-ségrégant, qui permettent de réduire l'écart entre les propriétés des poudres et d'accroître l'homogénéité de mélange. A titre d'exemple, nous citons ici le Métakaolin qui est un matériaux finement divisé à caractère inorganique (silicate d'alumine), et qui peut être incorporé au béton afin d'en améliorer certaines propriétés. Du fait de sa texture, il participe activement à l'homogénéité du mélange.
Il est également possible de réduire la ségrégation en jouant sur la taille des particules, car les produits de taille inférieure à $10\mu m$ ne connaissent pas de ségrégation, et le broyage préalable de l'un des constituants peut être alors souhaitable. Ainsi, Yalkowsky et Bolton.,1990[20] ont montré que, pour satisfaire aux normes d'homogénéité, un principe actif présentant une distribution granulométrique étalée devait subir une réduction de celle-ci pour limiter les phénomènes de ségrégation.
Il existe également d'autres éléments importants qui peuvent favoriser ou limiter ce phénomène de ségrégation, comme le choix judicieux du mélangeur et de ses conditions opératoires. En effet, dans le cas des poudres à écoulement libre, il faut choisir un mélangeur qui privilégie le déplacement de groupes de particules en limitant leurs mouvements individuels.

1.1.3 Les différents types de mélanges

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



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

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

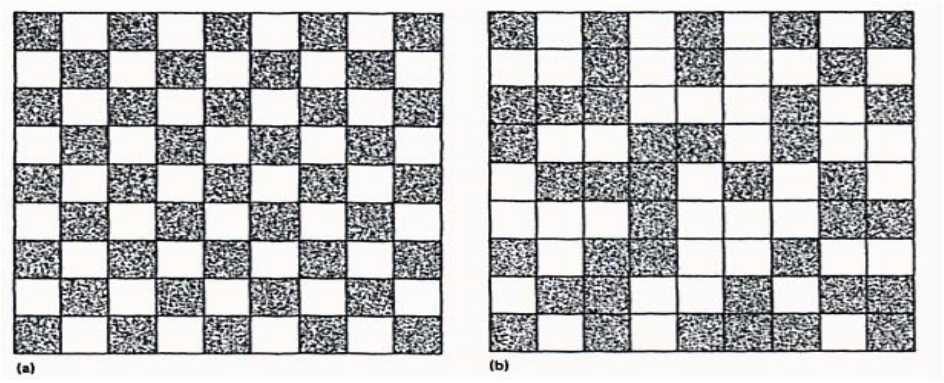


FIGURE 1.11 – (a) mélange binaire parfait ; (b)mélange binaire aléatoire (d'après Lantz et Schwartz [13]

Si à chaque échantillonnage, nous prélevons deux carrés adjacents on obtiendrait une composition identique à celui du lot total. Dans le cas d'un mélange binaire de 50 :50, chaque particule d'un constituant n'a pour voisin que des particules de l'autre constituant. Les échantillons prélevés contiennent le même nombre de particules de chaque constituant ; ce qui signifie que la variance de ce mélange est nulle. Industriellement, l'obtention d'un tel mélange ne semble pas réalisable.
Comme le mélange parfait ne peut pas être assuré, d'autres alternatives peuvent être envisagées afin obtenir un mélange acceptable pour une formulation donnée. C'est le cas du mélange aléatoire « randomisé », et du mélange ordonné.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

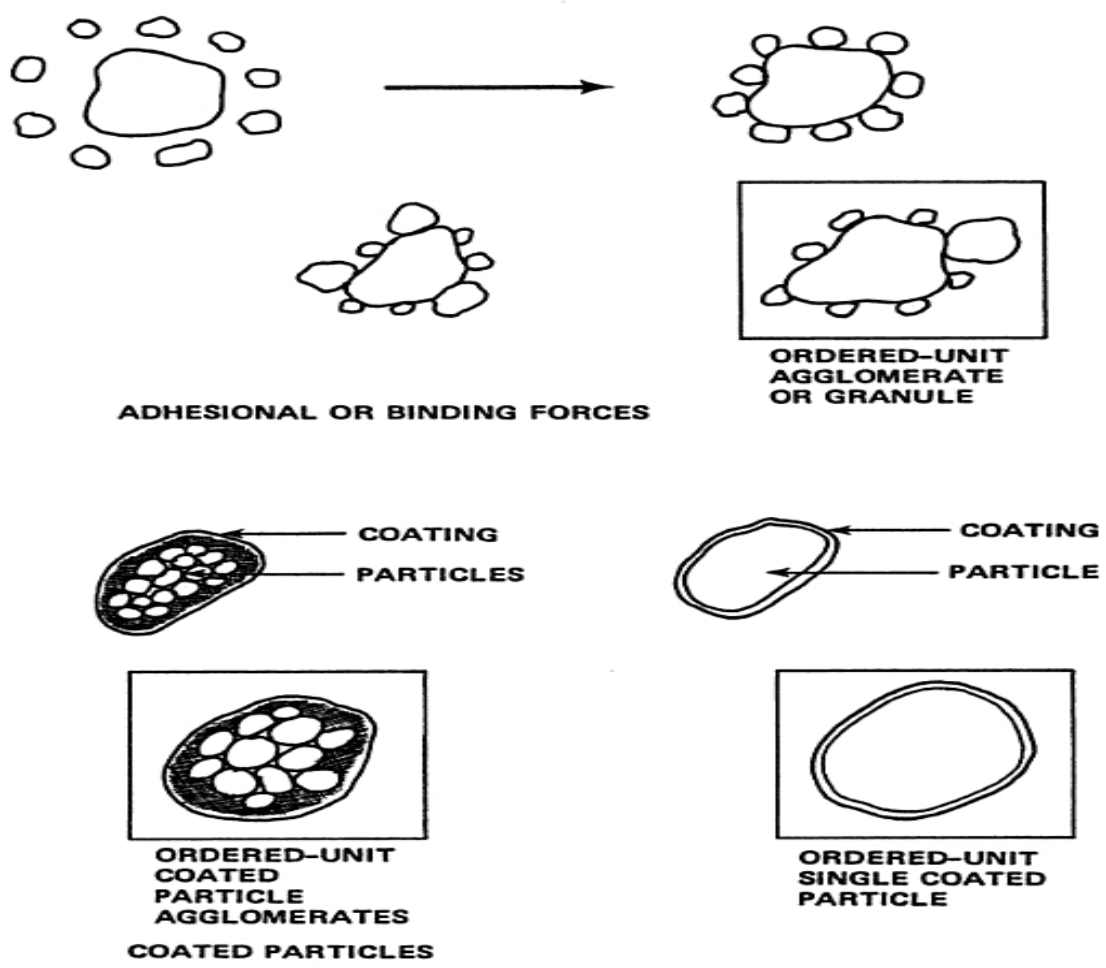


FIGURE 1.12 – Mélange ordonné par adhesion et enrobage[13]

1.2 Facteurs influençant l'équilibre mélange-ségrégation

1.2.1 Influence de la distribution granulométrique

Taille des particules

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

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

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

Forme des particules :

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

Densité des particules :

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

1.2.2 Influence des forces inter-particulaires

Influence des charges électrostatiques :

Lors de l'opération de mélange, des charges électrostatiques peuvent se concentrer à la surface des particules suite à divers contacts avec les parois du mélangeur ou entre elles.
Pour qu'il y ait formation de cette électricité statique, il faut qu'il y ait un contact de deux matériaux de natures différentes, un échange de charges et une séparation des deux matériaux.
Les forces électrostatiques de cohésion entre particules sont d'autant plus grandes que les dimensions de ces dernières sont faibles.
Sous l'effet de ces charges électrostatiques, certaines particules peuvent adhérer préférentiellement à la paroi du mélangeur, d'autres se regrouper entre elles (voir figure1.13), ce qui favorise un mouvement non aléatoire pouvant impliquer une ségrégation (Rowley[31]).

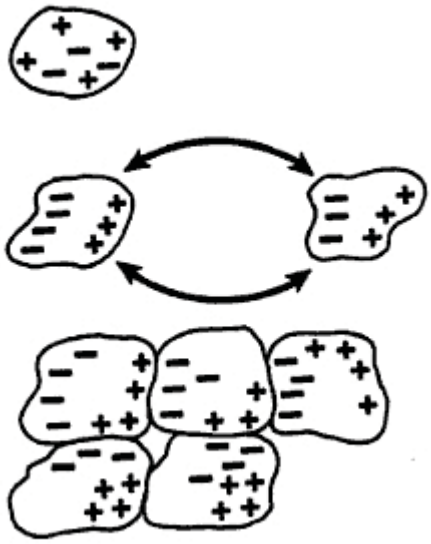


FIGURE 1.13 – Effet des forces inter-particulaires dans le cas des poudres fines : charges électrostatique et force de Van der Waals [13]

Influence des forces de Van der Waals :

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

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

R_1 et R_2 sont ici les rayons respectifs de chaque sphère ; Z_0 est la distance entre les deux particules ; h_w est une constante du système qui dépend de sa densité optique.
Les forces d'attraction diminuent avec la distance qui sépare les deux particules.
La relation 1.1 peut s'étendre à l'interaction entre une sphère et la paroi :

$$F = \frac{h_w}{8\pi Z_0^2} R \tag{1.2}$$

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

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

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

1.2.3 Influence de la composition et de la formulation

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

Le choix de la nature des excipients utilisés dans une formulation donnée peut favoriser et contribuer à l'obtention d'un mélange homogène. C'est le cas notamment des agents régulateurs d'écoulement. Les effets produits par les différents régulateurs d'écoulement dépendent d'une part de leur nature chimique (ex : possibilité de ponts hydrogène avec les autres constituants) et d'autre part, de propriétés physiques de leurs particules comme la taille et la forme. La silice colloïdale anhydre est ainsi l'un des régulateurs d'écoulement les plus utilisés (Jonat et al., 2004 ; Jonat et al., 2006[35, 36]).
D'après Sheth et al,1980[37], il existe deux théories concernant le mode d'action de ces excipients. La première décrit le recouvrement des particules de poudres par les fines particules de l'agent régulateur d'écoulement. La formation de cette couche augmente la distance entre les différentes particules de poudre réduisant ainsi les forces d'attraction entre elles ce qui améliore leurs propriétés d'écoulement. La seconde théorie décrit un recouvrement identique qui permet une possibilité pour les différentes particules de rouler les unes sur les autres et favorise ainsi l'écoulement.

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

1.3.1 Intensité et échelle de ségrégation

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

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

Intensité de ségrégation

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

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

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

La concentration moyenne est donné par :

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

la variance de distribution est :

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

Pour N échantillons prélevés, nous pouvons écrire :

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

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

$$\frac{\sigma^2}{\sigma_i^2} \tag{1.6}$$

σ_i^2 est la variance de système à l'état initial.

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

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

$$Cv = \frac{\sigma}{\bar{C}} \tag{1.7}$$

Un bon mélange doit avoir le plus petit Cv possible.

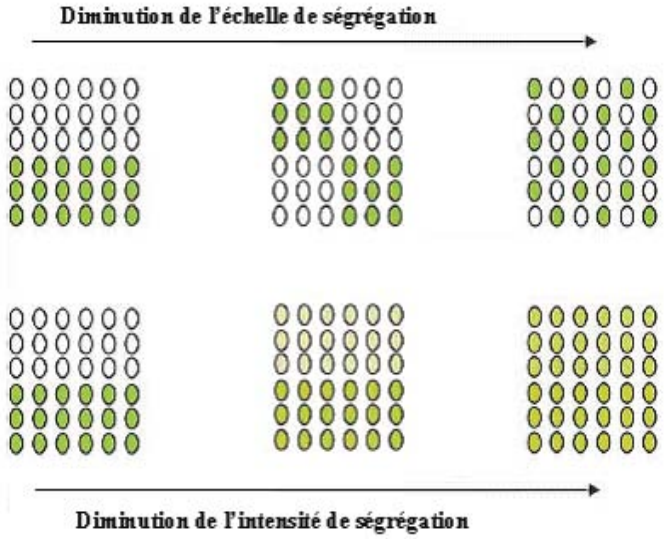


FIGURE 1.14 – Echelle et intensité de ségrégation selon Poux et al.,1991[21]

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

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

$$\sigma_0^2 = p(1-p) \tag{1.8}$$

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

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

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

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

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

l'utilisation de la variance du mélange aléatoire σ_0 et ségrégé σ_r, ainsi que la variance expérimentale de distribution des compositions σ permet de calculer les indices de mélange qui sont en fait des combinaisons mathématiques des trois variances (Harnby[10]).
Le tableau 1.1 donne une idée sur les nombreuses formules utilisées dans la littérature pour calculer ces indices de mélange. Ces formules sont valables pour les systèmes binaires monodispersés et sur la base des fractions en nombre de particules.

TABLE 1.1 – Quelques indices de mélange classiquement utilisés

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

Dans le cas d'un mélange multiconstituants, ces indices peuvent être utilisés en raisonnant par rapport à un composé clé, qui est généralement l'élément minoritaire dans le mélange (comme par exemple le principe actif dans les produits pharmaceutiques).
Dans la pratique, on peut se contenter de la seule donnée de la variance car l'état d'un mélange aléatoire n'est souvent pas atteint. Dans ce cas, il n'est pas nécessaire de raisonner sur la base des fractions en nombre de particules. En effet, on peut tout simplement exprimer la variance à partir des teneurs massiques qui sont plus simples à déterminer.

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

Échelle de ségrégation

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

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

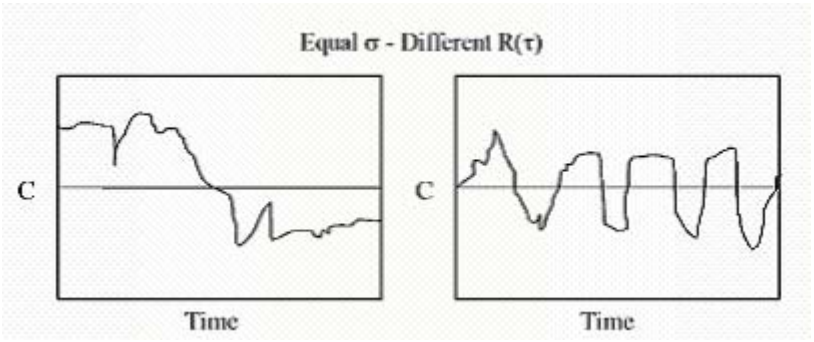


FIGURE 1.15 – Deux mélanges, en sortie du mélangeur continu, de mêmes variances et de différentes tailles de ségrégations, d'après Weinekötter et Gericke.,2000, et Weinekötter et Reh. 1995[40, 26].

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

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

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

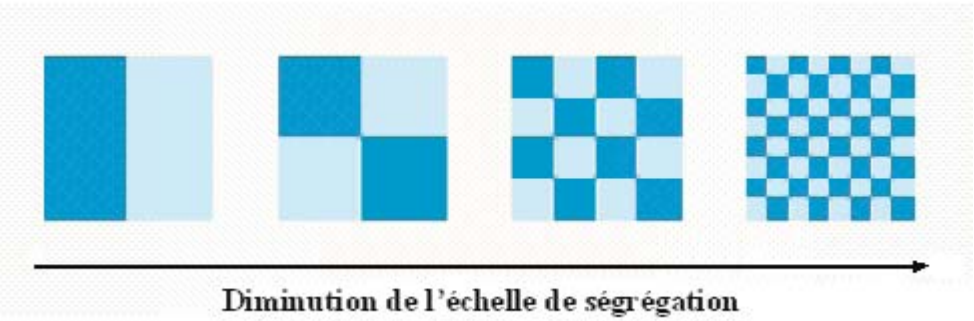
D'après Danckwerts et Sellers.,1951[39], dans le cas d'un mélangeur continu, l'échelle de ségrégation (L_0) est définie par la relation suivante :

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

τ : temps de passage moyen.

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

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



)

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

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

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

1.3.2 Caractérisation de la qualité de mélange en continu

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

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

$$VRR = \frac{\sigma^2_{entree}}{\sigma^2_{sortie}} \tag{1.12}$$

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

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

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

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

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

$$VRR = \frac{\sigma^2_i}{\sigma^2_o} = 1 - \tau log(a) \tag{1.13}$$

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

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

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

Ce modèle considère que la distribution des temps de séjour dans un mélangeur parfait peut être décrite par une décomposition exponentielle ou par la loi de Poisson.
En 1995, Weinekötter[26] a proposé une relation générale entre le VRR et la fonction de distribution des temps de séjours $E(t)$:

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

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

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

$G_f(f)$ est la transformé de Fourier appliquée sur $R(t)$.
- L'intensité de ségrégation peut se calculer à partir de la fonction G_f en domaine fréquentiel selon la formule suivante :

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

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

(Pour une fréquence $f = o$)

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

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

1.4 Critère d'acceptation de l'homogénéité

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

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

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

Récemment, La FDA a introduit un nouveau concept appelé PAT (Process Analytical Technology) dont le rôle est d'augmenter l'efficacité des procédés de mélange, d'améliorer la qualité du produit et de réduire la quantité des rejets.
La FDA a défini le PAT [47, 34] comme étant : « un système de modélisation, d'analyse et de contrôle en temps réel des procédés de fabrication par le biais de mesures effectuées aussi bien sur les matières premières que sur les procédés de fabrication, dans le but de s'assurer de la bonne qualité des produits finis ».

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

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

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

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

1.5.1 Les méthodes spectroscopiques

Les méthodes spectroscopiques (Raman, proche infrarouge . . .) sont des techniques d'analyse qui permettent de connaître quantitativement et qualitativement la composition chimique d'un mélange. Elles permettent des analyses simultanées de divers composants avec une grande rapidité. Elles ne sont pas destructives ni invasives.
L'inconvénient principal de ces techniques réside dans la quantité d'informations renfermées dans un seul spectre (information chimique et physique). Il est souvent difficile d'interpréter ces spectres à cause du manque de corrélation structurale entre l'information pertinente et les données physico-chimiques.
Afin d'extraire les informations souhaitées, les spectres sont traités par la chimiométrie qui consiste à appliquer des méthodes mathématiques en vue du traitement, de l'évaluation et de l'interprétation d'une grande quantité de données [48, 49].

Spectroscopie proche infra rouge

La spectroscopie proche infrarouge (SPIR) est une méthode physicochimique d'analyse basée sur l'interaction entre un rayonnement lumineux dans le domaine proche infrarouge (10.000-4000 cm^{-1} ou 1000-2500 nm) et les molécules de l'échantillon. Le principe de la SPIR repose sur l'absorption de la lumière à des longueurs d'onde du spectre électromagnétique qui sont spécifiques aux molécules constitutives de l'échantillon. Lorsqu'un faisceau lumineux atteint la surface d'un échantillon, il peut être absorbé, transmis ou réfléchi. Selon le principe de la conservation de l'énergie, l'intensité totale du rayonnement incident doit être égale à la somme de l'intensité des rayons absorbés, transmis et réfléchis. Cette absorption sélective de l'énergie lumineuse fournit donc un spectre caractéristique de la nature et des quantités de molécules en interaction. Avec un modèle adéquat (calibration), une analyse quantitative est donc possible. L'absorption de la lumière par l'échantillon est sous la dépendance non seulement de sa composition chimique mais aussi de critères physiques, qui peuvent donc être estimés à partir du spectre, comme la granulométrie dans le cas des poudres.
Les avantages généralement attribués à cette technique sont la rapidité, l'absence de solvant, la simplicité de la mesure, l'aspect non destructif, l'excellente répétabilité des mesures atteinte par la génération actuelle d' instruments et la possibilité d'automatiser l'ensemble des étapes de l'analyse, puisque cette technique peut facilement jouer le rôle d'un capteur dans un procédé industriel continu (mélangeur, réacteur ...).
Il existe deux grands modes de mesure en spectroscopie PIR : la réflexion et la transmission : La nature de l'échantillon influencera le choix de l'une par rapport à l'autre. Prenons, par exemple, le cas de l'analyse de comprimés, l'utilisation de l'analyse en réflexion ne concerne que la surface du comprimé tandis que la transmission permet une analyse sur toute l'épaisseur du comprimé (Thosar et al., 2001 [50]).

– **Mesure en réflexion**

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

d'intensité : $\frac{I_R}{I_0}$

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

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

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

$$A = log(\frac{1}{R}) = log(\frac{I_0 1}{I_R}) \tag{1.18}$$

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

- Une composante, dite de réflexion spéculaire qui correspond à la lumière réfléchie directement en surface de l'échantillon sans pénétrer à l'intérieur de celui-ci. Elle est porteuse d'informations physiques sur l'échantillon comme la taille ou la forme des particules de poudre (Berntsson 2001 [51]).

-Une composante de réflexion diffuse correspondant à la lumière qui pénètre à l'intérieur de l'échantillon, y subit l'absorption moléculaire ainsi que le processus de réfraction, diffraction et réflexion multiple entraînant sa dispersion dans toutes les directions et notamment son retour en arrière vers le détecteur de réflexion.

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

– **Mesure en transmission**

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

L'absorbance est définie comme étant le logarithme décimal de l'inverse de la transmittance T, selon les équations :

$$A = log(\frac{1}{T}) = log(\frac{I_0}{I_T}) \tag{1.19}$$

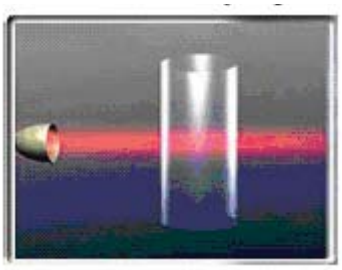


FIGURE 1.17 – Illustration de la mesure par transmission (Bruker® ; manuel d'utilisation MPA)

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

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

En recherche, la SPIR reste la technique la plus largement adoptée par les chercheurs dans le domaine des poudres. A titre d'exemple, Hailey et al.,1995 [52] ont employé un capteur SPIR couplé avec une interface graphique développée sous Labview pour pouvoir suivre en temps réel l'homogénéité d'un mélange de poudres.
Puis en 2001, Berntsson [51] a utilisé cette méthode pour suivre quantitativement en temps réel le mélange d'une poudre fine avec une poudre brute, en couplant un spectromètre proche infrarouge avec une sonde à fibre optique. Le rôle de cette fibre optique est de diffuser (et laisser passer) le rayonnement proche infrarouge envoyé par le spectromètre. La sonde à fibre optique est plongée dans un mélangeur de type Nauta® (voir 1.18).

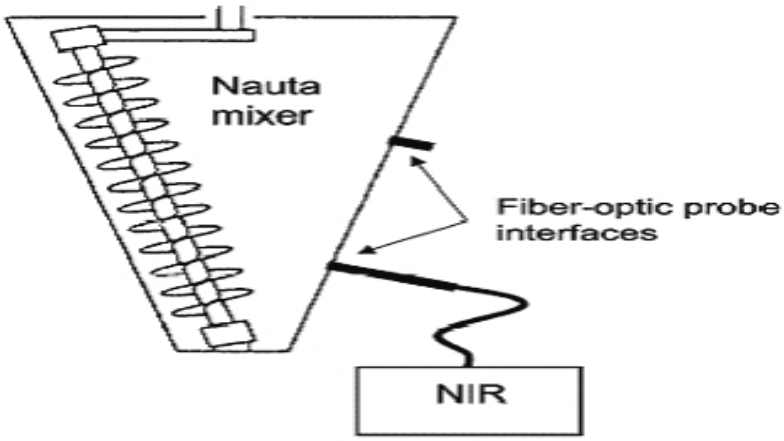


FIGURE 1.18 – Mélangeur de type Nauta couplé avec un spectromètre PIR et une fibre optique insérée en position basse du mélangeur (d'après Berntsson.,2002 [55])

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

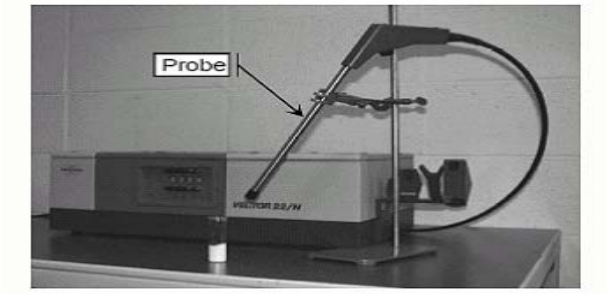


FIGURE 1.19 – Spectromètre FT-NIR de "Bruker Optik" d'après Kehlenbeck et Sommer.,2003[53]

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

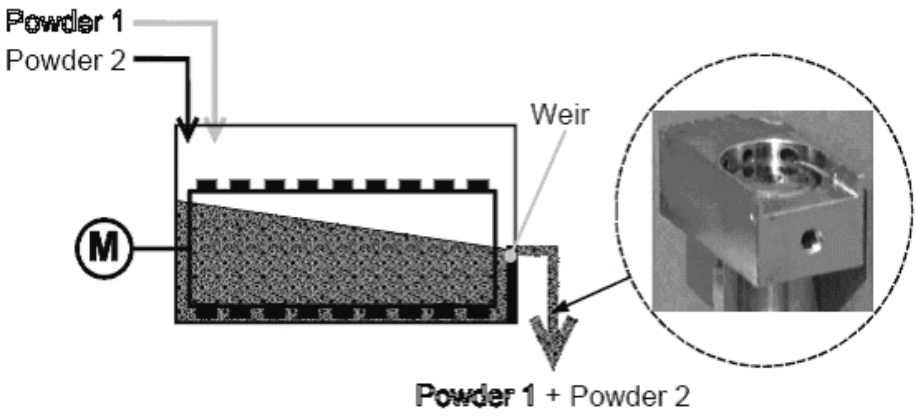


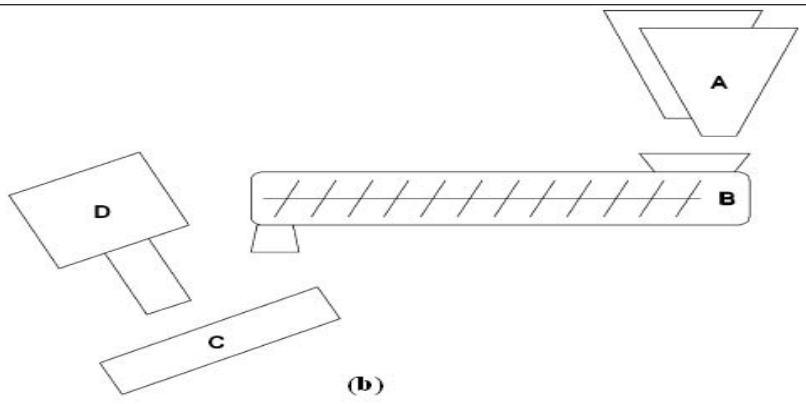
FIGURE 1.20 – Mesure en ligne de l'homogénéité de poudres en sortie d'un mélangeur continu d'après Kehlenbeck et Sommer.,[53]

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

Dans un autre exemple,Vanarase et al.,2010[59] ont installé un analyseur, de type SPIR, en sortie d'un mélangeur continu. L'objectif est d'analyser en temps réel la qualité d'un mélange composé des particules de cellulose (Avicel-PH 102, FMC BioPolymer) et d'un ingrédient actif appelé l'acetaminophen (APAP). Ce dernier a été pré-mélangé avec le dioxyde de silicium. Toutes les expériences ont été réalisées avec un débit total de dosage de 30kg/h. Les différents mélanges qui ont été étudiés sont présentés sur la figure 1.21(a).
Le dispositif expérimental utilisé par Vanarase et al. est un mélangeur de type Gericke GCM250 qui est équipé de deux doseurs permettant d'alimenter le mélangeur en mode continu (voir figure1.21(b)). En sortie de l'appareil de mélange, un spectromètre de type SPIR analyse en mode dynamique des échantillons de taille moyenne estimée à 0.26g.

APAP % (w/w)	APAP feed rate (kg/h)	Avicel feed rate (kg/h)
2	0.6	29.4
3	0.9	29.1
6	1.8	28.2
8	2.4	27.6
10	3	27.0

(a)



(b)

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

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

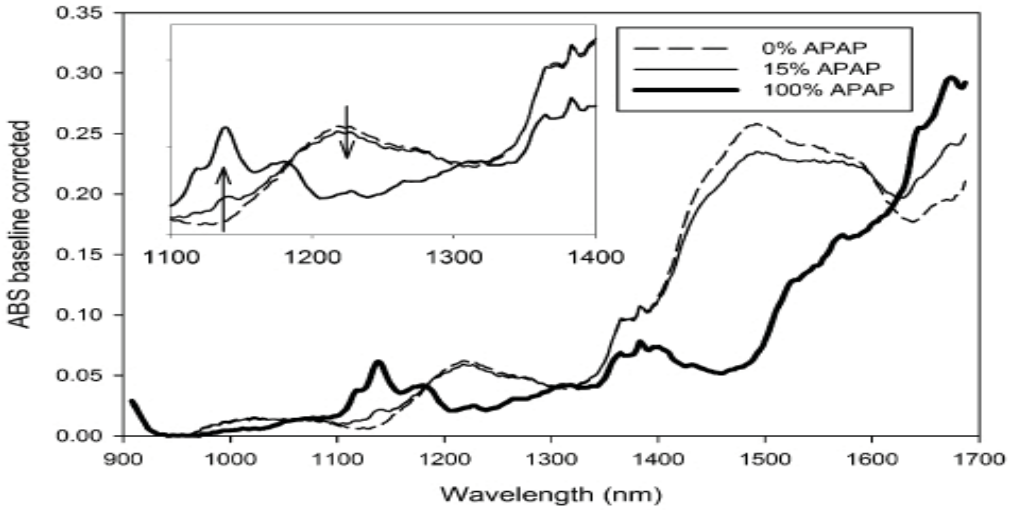


FIGURE 1.22 – Spectres proche infra-rouge obtenus par Vanarase et al.,2010 [59]

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

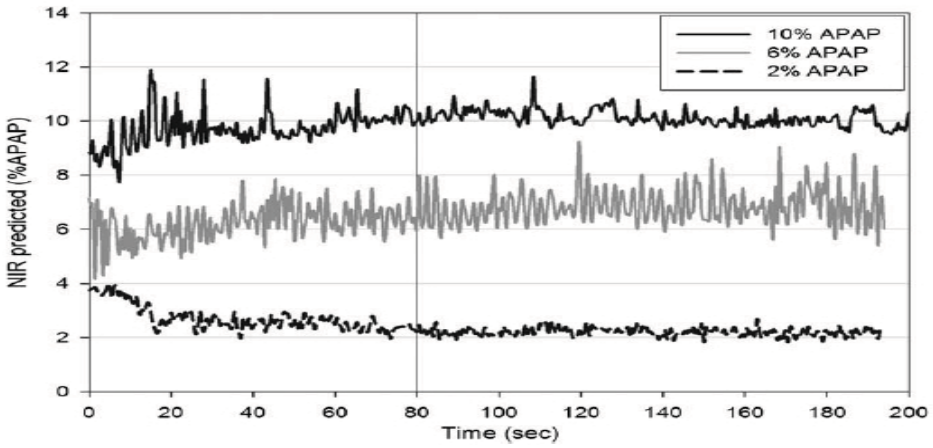


FIGURE 1.23 – Mesure en ligne de la concentration d'un ingrédient actif par la SPIR [59]

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

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

Spectroscopie Raman

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

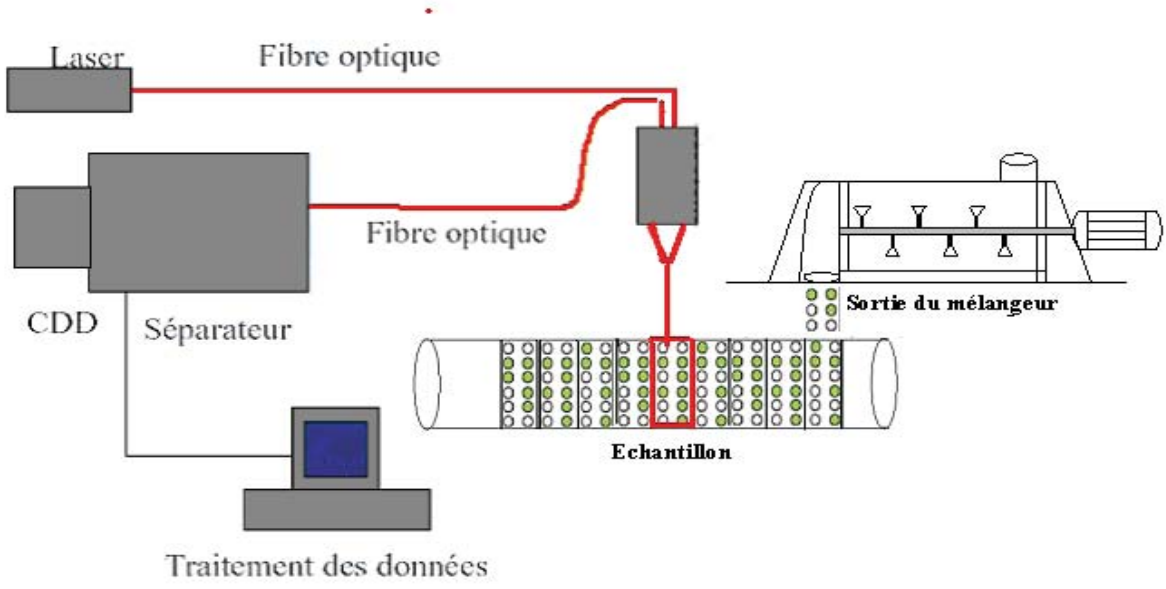


FIGURE 1.24 – Schéma de principe d'analyse des poudres en ligne par la spectroscopie Raman

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Comme le montrent les résultats obtenus par Kachrimanis et al. [70], le choix de la technique de prétraitement des spectres Raman joue un rôle primordial dans la détermination de la qualité des résultats obtenus par régressions PLS. Dans le cas de cet exemple, la technique OSC donne les meilleurs résultats sur toute la gamme des concentrations utilisées.
Un autre exemple récent (2007) est celui de De Beer et al.[74]. Ces auteurs ont développé un modèle de calibration pour l'analyse quantitative directe et non-destructive (sans préparation d'échantillon) d'un ingrédient pharmaceutique actif (acide salicylique) par la spectroscopie FT-Raman. Le mélange étudié est composé d'acide salicylique (particules de taille <180 μm) et de vaseline blanche. Ce mélange sert à produire des pommades standards.
Les spectres FT-Raman de la vaseline blanche et de l'acide salicylique, obtenus par De Beer et al, sont présentés dans la figure1.26.

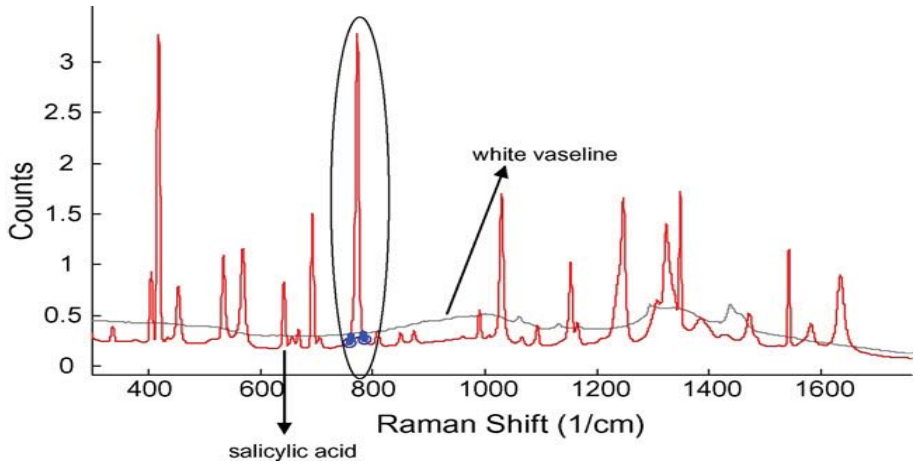


FIGURE 1.26 – Spectres del'acide salicylique et la vaseline blanche obtenus par la spectroscopie FT-Raman,d'après[74])

Ces résultats montrent que la vaseline ne produit aucun signal d'absorption dans la gamme spectrale de 100 à 1500 cm^{-1}, seul l'acide salicylique présente des signaux d'absorption dans cette zone spectrale. L'intensité maximale du signal, située entre 757 et 784 cm^{-1}, est choisie comme une référence d'étalonnage car dans cette gamme de petits changements spectraux seront bien détectés.
Les résultats d'étalonnage ont permis de développer modèle de régression du second ordre $y = ax^2 + bx + c$. Les coefficients de cette équation modèle ont été estimés avec un intervalle de confiance de 95%, comme le montre la figure 2.27. Par la suite, Beer et al.[74] ont comparé les résultats obtenus par la spectroscopie Raman avec la technique HPLC (technique de référence) qui nécessite de préparer soigneusement les échantillons. Au total, 25 mélanges

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

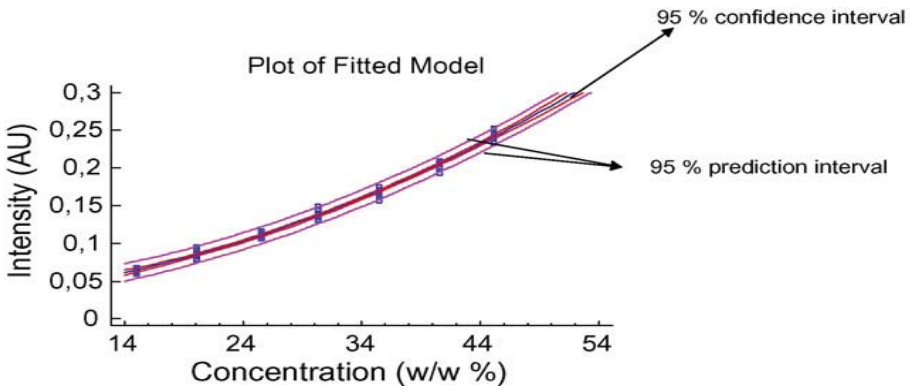


FIGURE 1.27 – Modèle de régression de second ordre obtenu par la spectrocopie FT-Raman avec une intervalle de confiance de 95%,d'après[74])

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

1.5.2 Technique d'analyse d'image

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

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

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

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

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

L'opération de seuillage permet de traiter l'image et de définir des grandeurs mesurables car c'est un passage obligatoire pour toute analyse morphologique ultérieure. Il permet de sélectionner les parties de l'image qui intéressent l'opérateur, par exemple 2 types de grains (blancs et sombres) dans un mélange de poudres. On peut donc, par exemple, attribuer la valeur 1 à tous les pixels de l'image numérique qui ont un niveau de gris compris entre deux valeurs i1 et i2, choisies par l'opérateur ; et attribuant à tous les autres pixels la valeur 0.

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

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

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

En 2002, Muerza et al.,[77] ont étudié un mélange binaire formé de grains d'aspirine et de semoule (voir figure1.28).

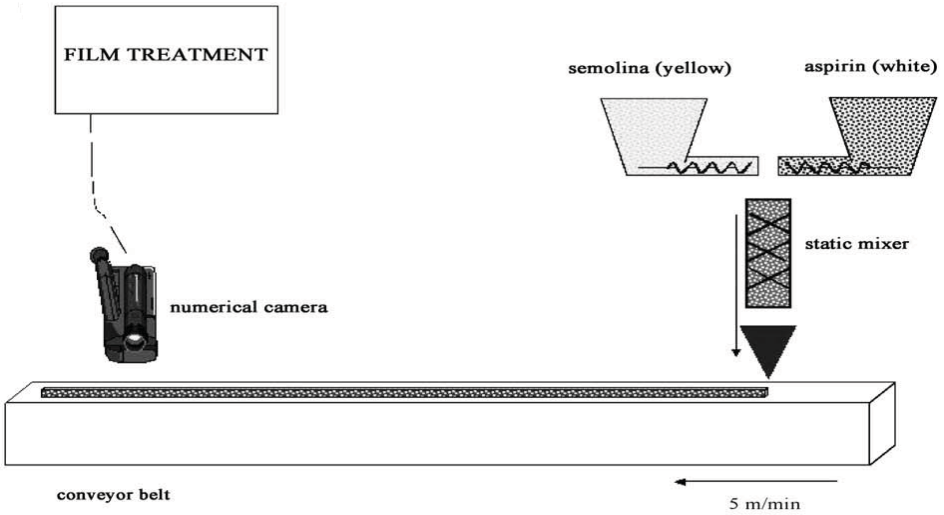


FIGURE 1.28 – Schéma du dispositif expérimental et méthodologie de traitement du film d'après Muerza et al.[77]

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

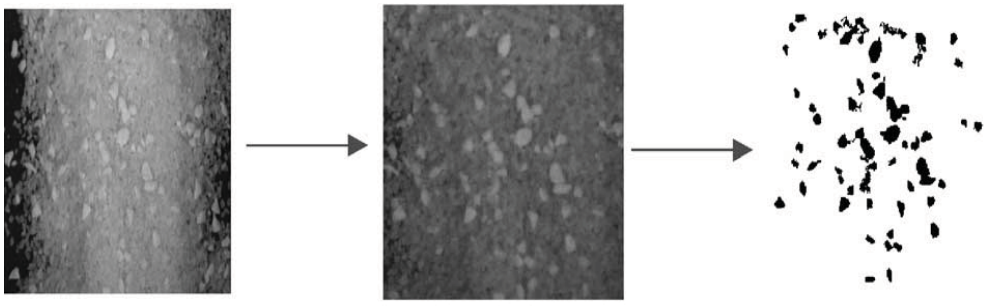


FIGURE 1.29 – Seuillage d'une image numérique montrant les grains d'aspirine d'après Muerza et al.[77]

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

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

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

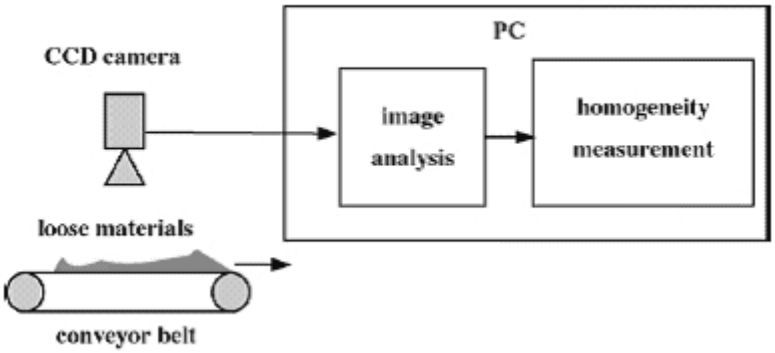


FIGURE 1.30 – Diagramme de mesure d'homogénéité d'un mélange de solides par analyse d'image [78]

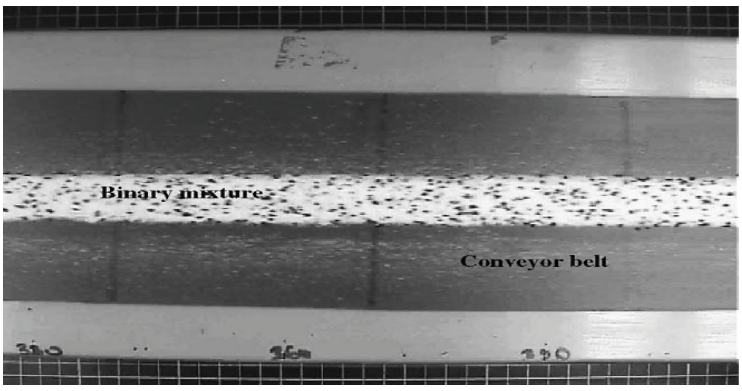


FIGURE 1.31 – Mélange binaire filmé par une caméra CCD [78]

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

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

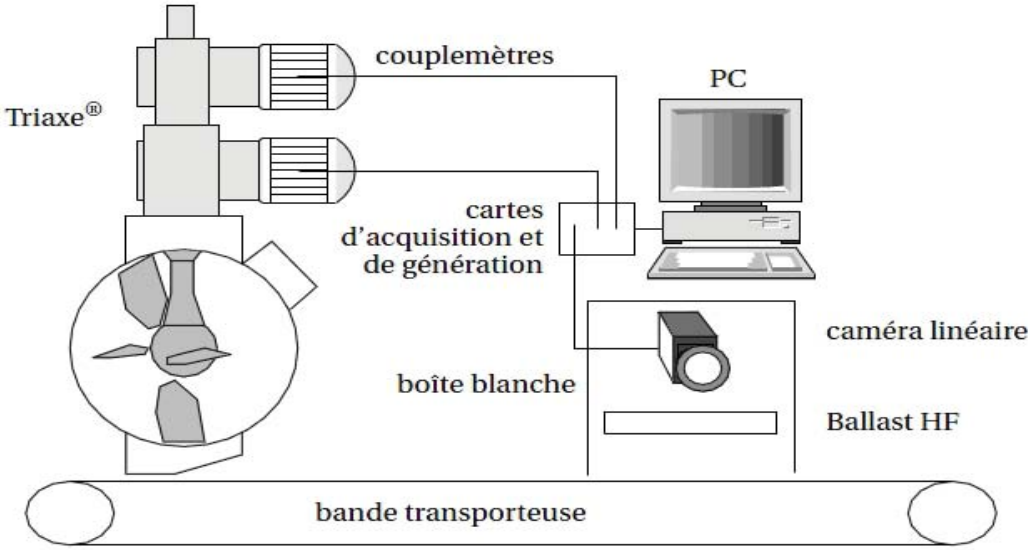


FIGURE 1.32 – Schéma général de la plate-forme expérimentale utilisée par Demeyre [11]

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



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

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

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

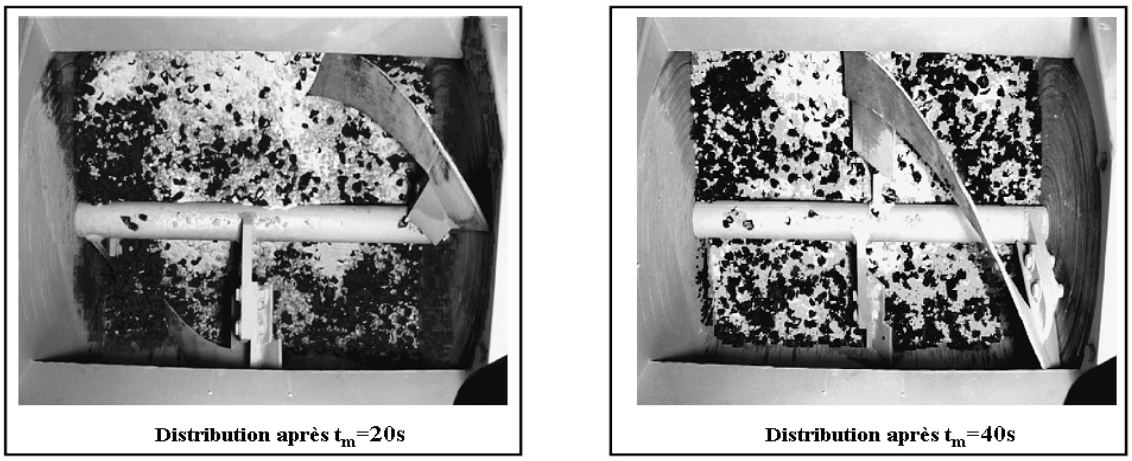


FIGURE 1.34 – Distribution des particules dans le mélangeur après différents temps de mélange t_m d'après Daumann et al., 2008[79]

L'avantage de la mesure en surface réside dans le fait qu'il n'existe (presque) plus d'erreur de découpe, c'est-à-dire plus d'ambiguïté pour les particules situées sur les frontières des images. Cependant, l'inconvénient majeur de cette technique est qu'elle ne permet d'observer le système qu'en surface, et fournit donc aucune information sur l'intérieur du lit de poudres (Bruel et Gouvre.,2000[81]). De plus, bien qu'il soit possible d'incorporer facilement cette technique d'analyse d'images dans une installation de mélange en continu, elle nécessite que les poudres utilisées soient de couleurs ou de tailles différentes. Excepté ces quelques inconvénients, la technique d'analyse d'images présente de nombreux avantages qui lui permettent d'être envisagée pour la surveillance et 1'asservissement d'un procédé de mélange de poudres en continu.

1.5.3 Autres techniques analytiques

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

Méthode capacitive

Dans le domaine des poudres, la technique capacitive est utilisée principalement pour analyser la qualité d'un mélange dont les constituants n'ont pas des permittivités électriques proches. Au milieu des années 1980, un projet sur la tomographie capacitive électrique (TCE) visant à la visualisation des écoulements multi-composant a débuté à l'UMIST[82]. Ceci a donné naissance à plusieurs dispositifs et instruments d'imagerie au début des années 1990. La méthode de TCE utilise plusieurs électrodes (en pratique 12) ce qui permet de reconstruire l'image du milieu et d'assurer le suivi des propriétés locales de mélange.
Contrairement à l'UMIST qui s'intéresse aux propriétés locales de mélange, le laboratoire de physique des systèmes désordonnés de l'EPUM a mis en place une méthode d'analyse (dalloz-dubrujeaud.,2000 [83]) qui se focalise sur les propriétés globales (composition) du mélange en écoulement. Cette méthode nécessite un nombre d'électrodes nettement plus faible (2 à 3 électrodes).

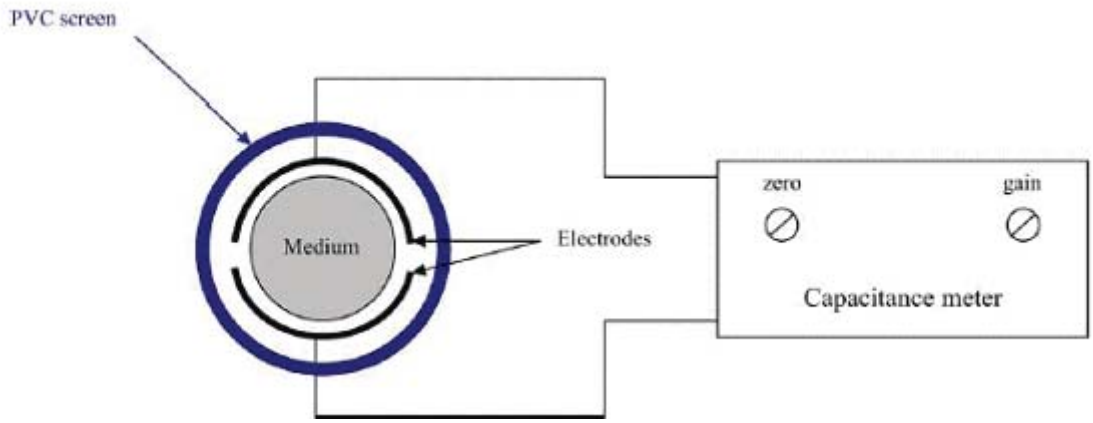


FIGURE 1.35 – Schéma de la technique capacitive d'après Ehrhardt.,2005[84]

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

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

Où P_i represente la fraction volumique de l'espèce ayant la permittivité relative ϵ_i et ϵ_m est la permittivité du mélange des espèces.

En 2005, Ehrhardt et al. [84] ont utilisé cette technique capacitive pour mesurer l'évolution de la permittivité d'un mélange de particules en écoulement dans un mélangeur statique (voir figure1.36). L'inconvénient de cette méthode que les produits utilisés doivent avoir des permittivités très différentes, c'est pour cela que Ehrhardt et al. ont choisi d'étudier un mélange de sucre commercial et de carbure de silicium.

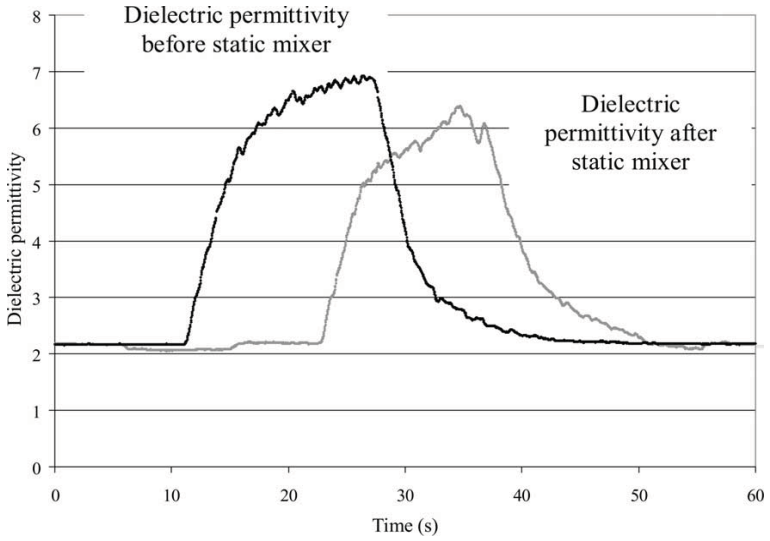


FIGURE 1.36 – Mesure en-ligne de la permittivité d'un mélange des particules traversant un mélangeur statique d'après Ehrhardt[84]

Méthodes à fibres optiques

Ces méthodes sont basées sur l'utilisation de fibres optiques qui permettent de coder optiquement 1'information liée à la grandeur à mesurer. Les caractéristiques optiques des fibres permettent de réaliser des capteurs avec d'excellentes performances. En pratique, ces capteurs sont généralement constitués de deux fibres optiques. La première fibre transmet la lumière alors que la deuxième recueille la lumière réfléchie et la transforme en un signal de tension. La grandeur physique à mesurer est l'intensité de lumière réfléchie, qui est liée à la composition du mélange, la relation entre les deux est établie par calibrage de la méthode. Cette technique optique a été appliquée pour la première fois sur des poudres en 1957 par Gray [86]. Celui-ci a utilisé une sonde équipée d'une source de lumière blanche et d'une cellule photo-électrique placée derrière une petite fenêtre en verre. La mesure de l'intensité de lumière réfléchie par une couche de particules permet de déterminer la composition de l'échantillon analysé, à partir d'une courbe d'étalonnage déterminée préalablement.
Dans un autre exemple, Schofield et al. [87] ont également développé un équipement similaire

à celui qui a été utilisé par Gray (voir figure1.37). Ce dispositif était destiné à l'étude d'un mélange de particules de mêmes tailles, 150 μm, avec deux couleurs différentes (rouge et blanc).

Par la suite, en 1971, Harwood [88] a utilisé cette même méthode pour analyser des mélanges de poudre de mêmes couleurs en utilisant l'ultraviolet au lieu de la lumière visible comme source de radiation (voir figure1.38)

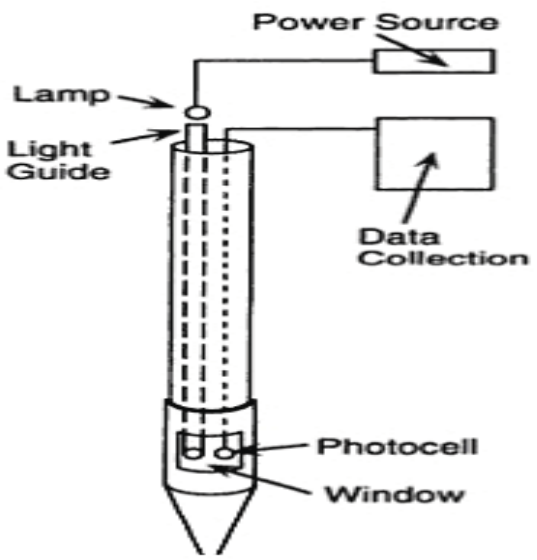


FIGURE 1.37 – Sonde optique développé par Schofield [87]

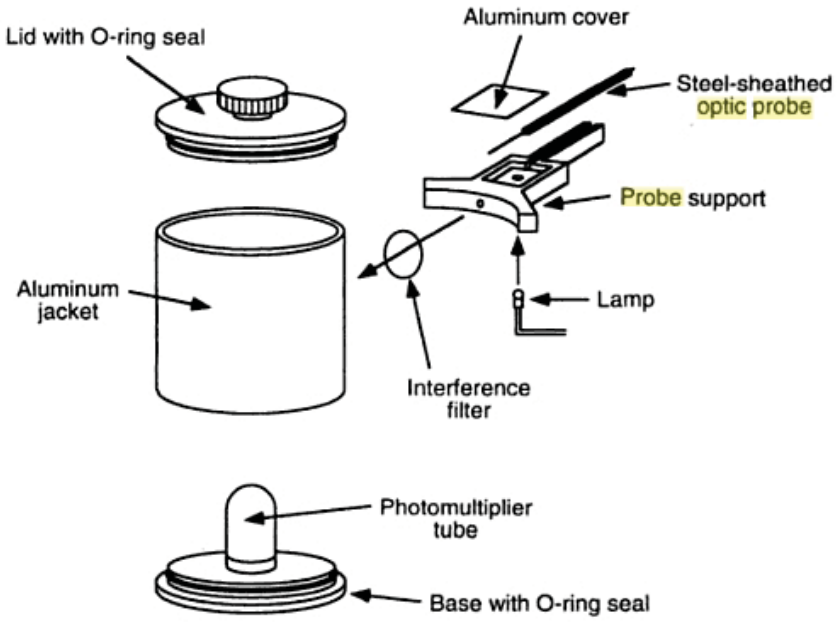


FIGURE 1.38 – Fibre optique développé par Harwood pour étudier le mélange des poudres[88]

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

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

Le but principal de la commande d'un mélangeur continu de poudres est de pouvoir satisfaire les objectifs définis par le cahier des charges en terme d'homogénéité de mélange final, de la manière la plus performante possible. La conduite et la commande d'un tel procédé pourrait garantir la résolution d'une multiplicité de problèmes de natures très différentes :
- réduire les instabilités observées en terme de composition du mélange final.
- assurer la stabilité du procédé.
- maintenir une reproductibilité en qualité et en quantité de la production.
- assurer la flexibilité des systèmes (changement de consigne dans le cas continu).
- procéder aux démarrages et aux arrêts dans les conditions optimales (minimisation des effets des étapes transitoires, optimisation des trajectoires).
- augmenter le gain de production en diminuant le volume du produit non-conforme.

Industriellement, la commande la plus fréquemment utilisée est le régulateur Proportionnel Intégral Dérivé (PID). C'est un organe de contrôle qui permet de calculer les paramètres d'entrée du procédé en prenant en compte la sortie mesurée. En particulier, le PID permet 3 actions simultanées sur l'erreur entre la consigne et la mesure :
-Une action Proportionnelle : l'erreur est multipliée par un gain C
-Une action Intégrale : l'erreur est intégrée sur un intervalle de temps Ti
-Une action Dérivée : l'erreur est dérivée suivant un temps Td

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

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

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

En 2006, Sanders et al. [90] ont en effet montré que dans le cas d'un procédé de granulation des poudres en continu, un régulateur PID reste incapable de contrôler la distribution de tailles des particules d_{50}. Dans ce cas, des techniques de commandes dites « avancées » peuvent être envisagées (adaptive, optimale, prédictive, quadratique...).
Puis en 2007, Glaser et al.[91] ont proposé la commande prédictive comme une technique alternative au PID, en pensant qu'une telle technique serait capable de contrôler le procédé de granulation en continu. Plus précisément, ils ont construit un système de commande prédictive (sous Matlb Control Tool Box), pour contrôler la distribution de tailles des particules en sortie d'un tambour continu de granulation.
Comme le montre la figure 1.39, le système de commande a été appliqué sur une installation de granulation en continu. Le pilote utilisé est composé d'un tambour rotatif horizontal (RD-101) qui sert à mélanger le liant de granulation avec des poudres de taille fine. Ce tambour est alimenté avec trois flux : flux de solide frais (S2), flux des particules recyclées (S9) et flux du liant de granulation (S3a et S3b).
En sortie de l'appareil, les particules en écoulement sont filmées et analysées par un OptiSizer (VC-101). La distribution des tailles de particules est déterminée par analyse d'image.

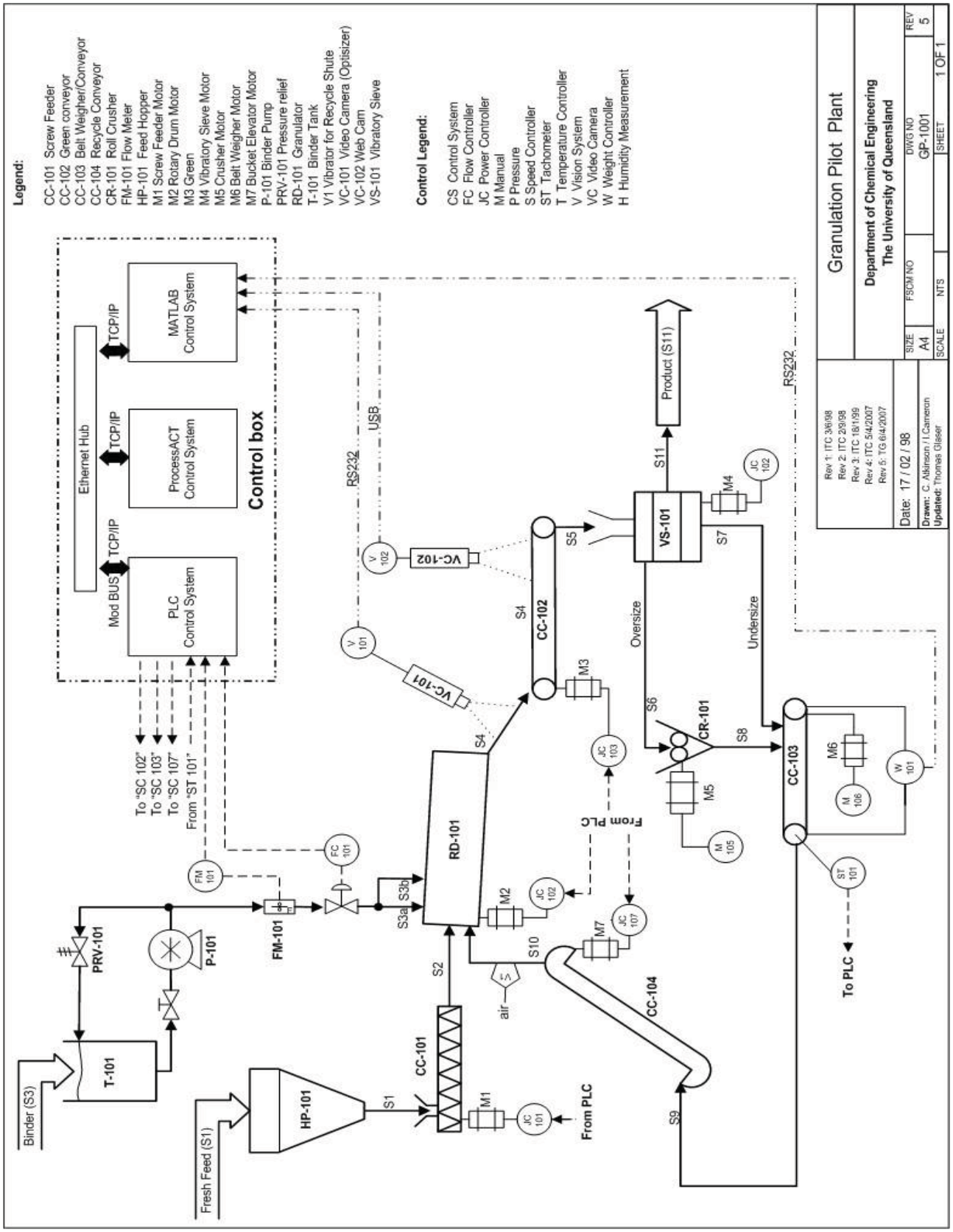


FIGURE 1.39 – Contrôle d'un pilote de granulation par la technique MPC d'après Glaser et al.,2007[91]

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

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

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

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

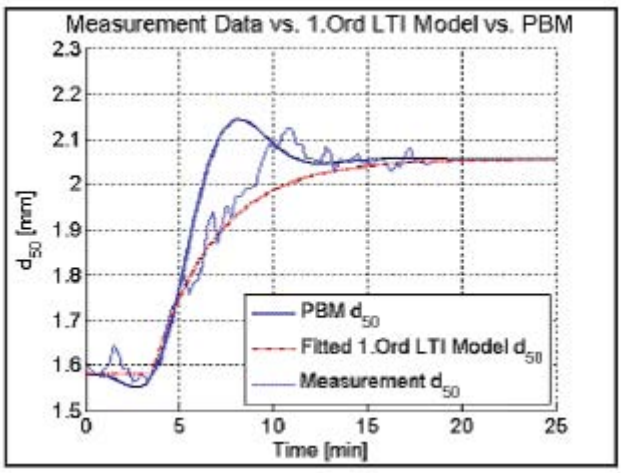


FIGURE 1.40 – Comparaison entre le bilan de population PBM, fonction de transfert, et les mesures expérimentales de la d_{50} : effet d'un échelon appliqué sur le débit d'alimentation de solides ; échelon de 151kg/h 141 kg/h à t=0 ; d'après Glaseret al., 2007[91]

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

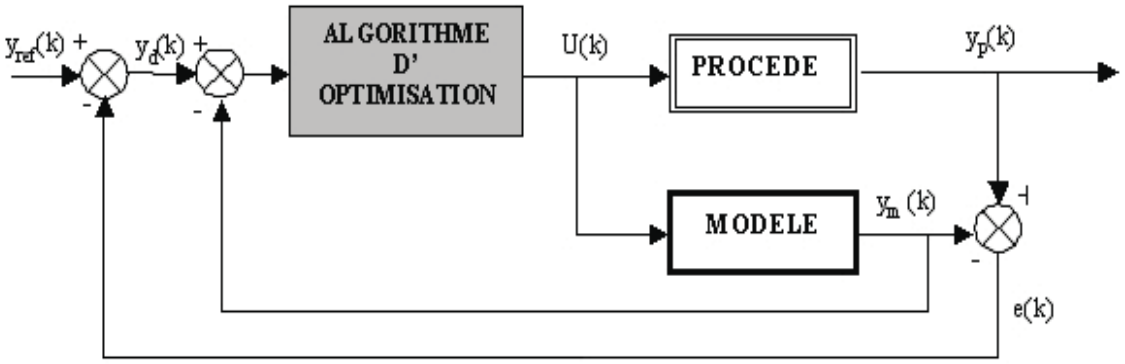


FIGURE 1.41 – Structure de la commande prédictive MPC

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

$$min_{U_k.....U_{k+N_{c-1}}} J(U) = \sum_{j=k+1}^{j=k+N_P} (y_{ref}(k) - y_P(k))^2 \tag{1.22}$$

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

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

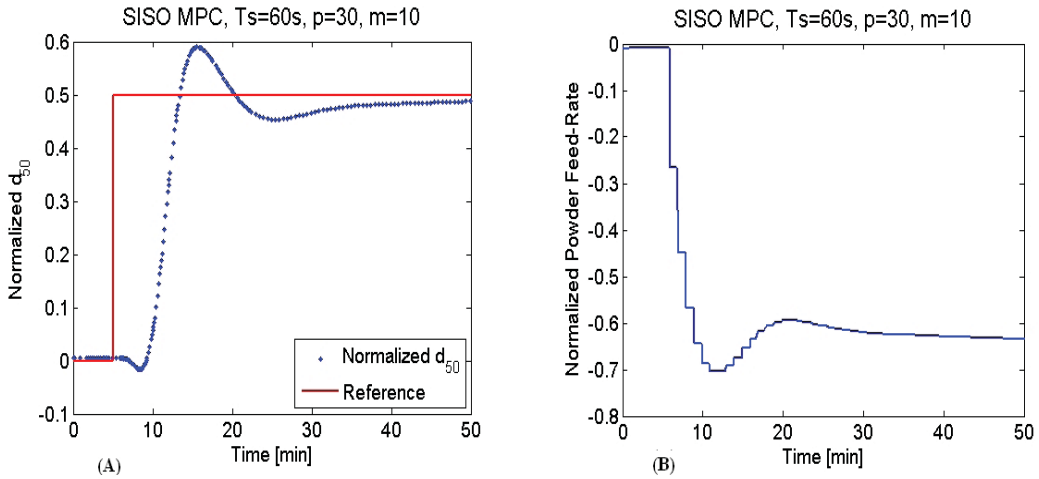


FIGURE 1.42 – (A)résultats de d_{50} « normalisée » obtenue par la commande prédictive ; (B)débit de solide « normalisé » appliqué pendant la régulation par la commande prédictive ; Temps d'échantillonnage Ts=60s ; horizon de prédiction $N_p = 30$, Horizon de commande$N_c = 10$; d'après Glaser et al.,2007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

La prédiction de la distribution de taille des particules d_{50}(sortie normalisée) est faite en calculant le vecteur des futures entrées (débit d'alimentation de solide normalisé (voir figure 1.42(B)) à travers l'optimisation de la fonction objectif 1.22. Cette optimisation force la sortie future d_{50} à se rapprocher de la trajectoire référence (sortie souhaitée d_{50}).
Les résultats obtenus par la MPC dans le domaine de granulation sont encourageants ; l'application de cette technique dans le cas d'un mélangeur des poudres peut être envisageable à condition d'avoir un modèle précis, et suffisamment rapide pour qu'il soit résolu en ligne. Le succès de cette technique en dépend dans une large mesure.

1.7 Modèles dynamiques

1.7.1 Cinétique de mélange

La dynamique de mélange dans les systèmes discontinus est caractérisée par l'évolution cinétique de l'homogénéité en suivant la variation de l'écart type ou d'un indice de mélange avec le temps de mélange. En pratique, cette étude cinétique de l'homogénéité permet d'identifier le temps nécessaire pour obtenir un bon degré de mélange (temps optimal). Le graphe de la figure1.43 présente la courbe cinétique la plus classique.

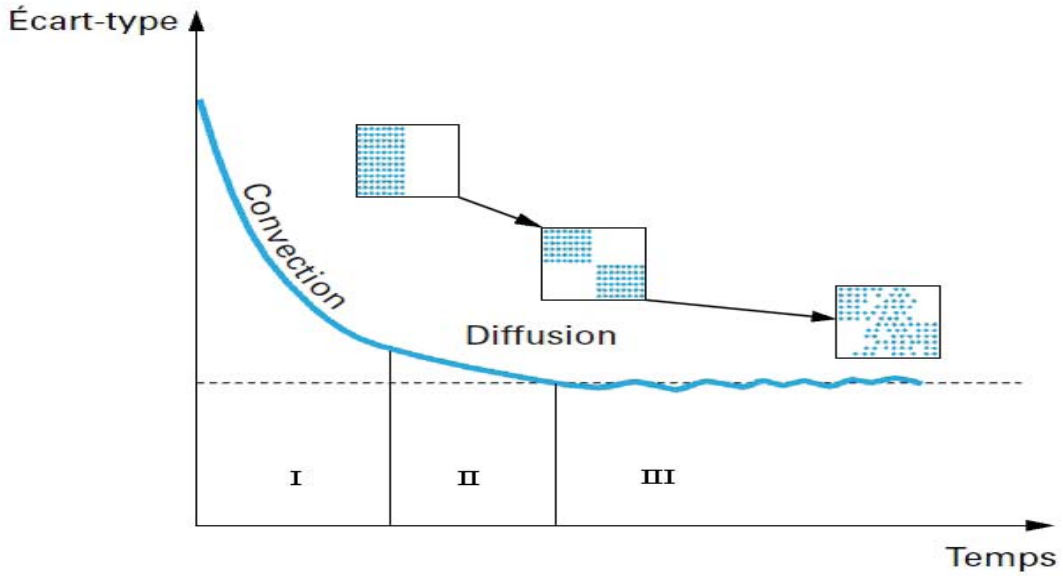


FIGURE 1.43 – Courbe cinétique caractéristique d'un procédé de mélange (batch)

Cette courbe cinétique peut être découpée en trois portions :

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

Modèle cinétique sans ségrégation

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

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

$$Avec \quad M = 1 - \frac{\sigma}{\sigma 0}$$

avec M indice de mélange de Rose [93].
Le coefficient A, appelé constante de vitesse du procédé, quantifie la pente de la droite obtenue à l'étape initiale. Cette constante est fortement dépendante des conditions opératoires et des propriétés des poudres.

Modèle cinétique avec ségrégation

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

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

$$M = 1 - \frac{\sigma}{\sigma 0} \quad et \quad \Phi = \sqrt{1-M}$$

M indice de mélange de Rose ; A constante cinétique s^{-1} ; B constante de ségrégation s^{-1}.
Le potentiel de ségrégation peut être positif ou négatif selon la distribution spatiale des constituants. Par exemple, si les constituants sont de densité différente, le potentiel est négatif si le composant le plus dense est placé au dessus, et réciproquement, le potentiel est positif si le composant le plus dense est initialement chargé au fond du mélangeur. La résolution de l'équation de Rose 1.24 et la recherche de l'optimum permet de déterminer les temps de mélange opérationnels.

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

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

t_m : temps optimal de mélange ; η : efficacité.

1.7.2 Modèle de mélange par diffusion et convection

Modèle de mélange par diffusion

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

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

$$J = -D.grad(C) \tag{1.27}$$

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

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

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \tag{1.28}$$

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

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

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

n_t =nombre de tours effectuées par le mélangeur.

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

L =longueur du mélangeur.

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

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

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

Le modèle de diffusion devient :

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

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

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

Modèle de mélange par diffusion et convection

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

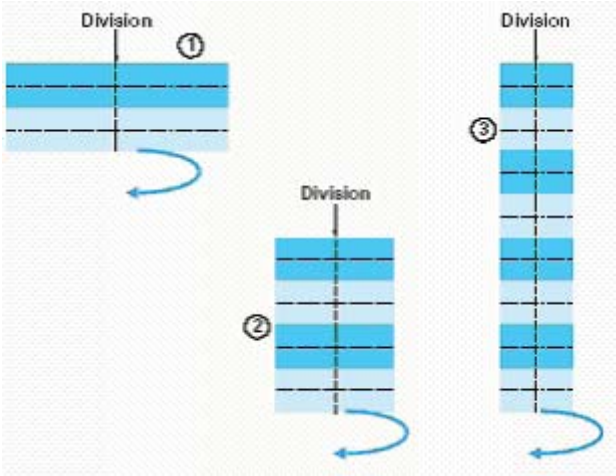


FIGURE 1.44 – Trois phases successives du mélange selon Lai et Col (d'après Lai et Fan 1978)

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

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

C : concentration locale en un des constituants ; z : coordonnée spatiale ; t coordonnée temporelle ; V : vitesse de transport local et D : coefficient de dispersion.
Cette équation représente les variations locales de composition dans le cas d'un mécanisme de mélange par diffusion couplé à la convection (figure 1.45).

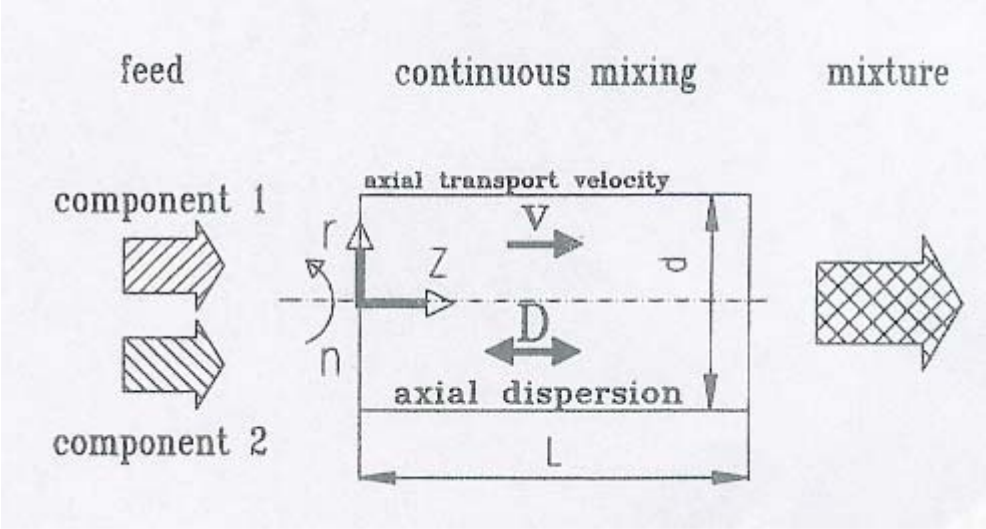


FIGURE 1.45 – Mélange par difusion couplé à la convection d'après Weinekotter.,1995 [26]

où Z est l'axe longitudinal du mélangeur ; et L est la longueur du mélangeur.
En régime permanent cette équation s'écrit sous la forme suivante :

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial z} = V\frac{\partial C}{\partial z} \tag{1.34}$$

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

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

On obtient ainsi :

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

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

$$\frac{\partial C}{\partial \theta} = N_D\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\partial C}{\partial z} \tag{1.37}$$

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

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

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

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

C_1 composé 1 et C_2 composé 2.

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

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

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

1.7.3 Méthodes des éléments discrets DEM

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

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

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

La méthode des éléments discrets est basée sur l'application de la relation fondamentale de la dynamique sur chaque grain pour déterminer sa position à un instant donné. Lors de chaque itération on étudie le contact de chaque grain avec son entourage. Ces contacts permettent de modéliser les efforts que reçoit chaque grain de son environnement. Plus précisément, ces efforts (ou forces extérieures) sont essentiellement la gravité, les forces dues aux contacts particule-particule et particule-paroi, sans oublier les forces de Van Der Waals qui peuvent être considérées comme relativement négligeables.
La figure1.46 montre le principe de l'algorithme utilisé par Cundal dans le cas de la méthode DEM.

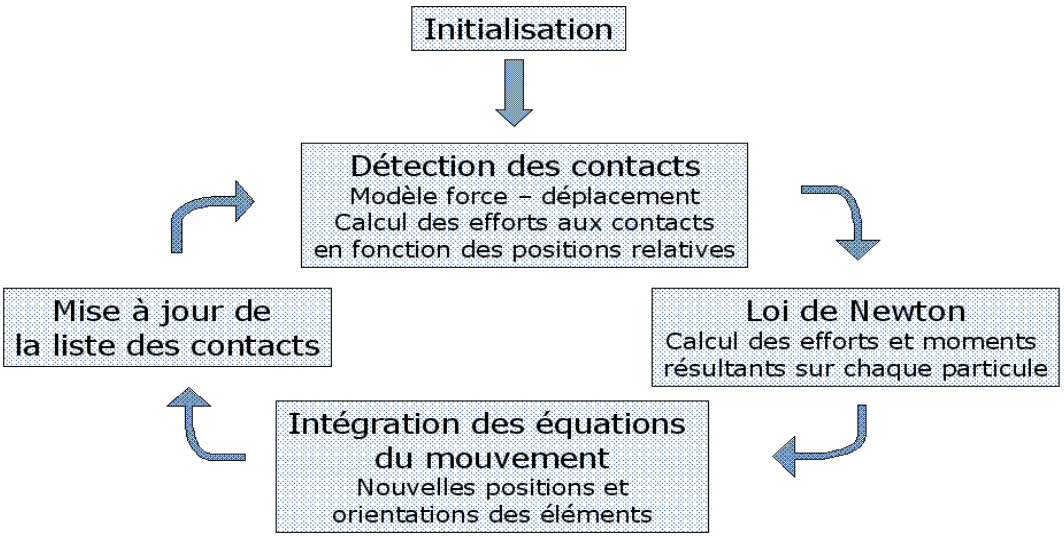


FIGURE 1.46 – Principe de la DEM

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

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

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

particules de billes de verre de 5mm de diamètre.

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

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

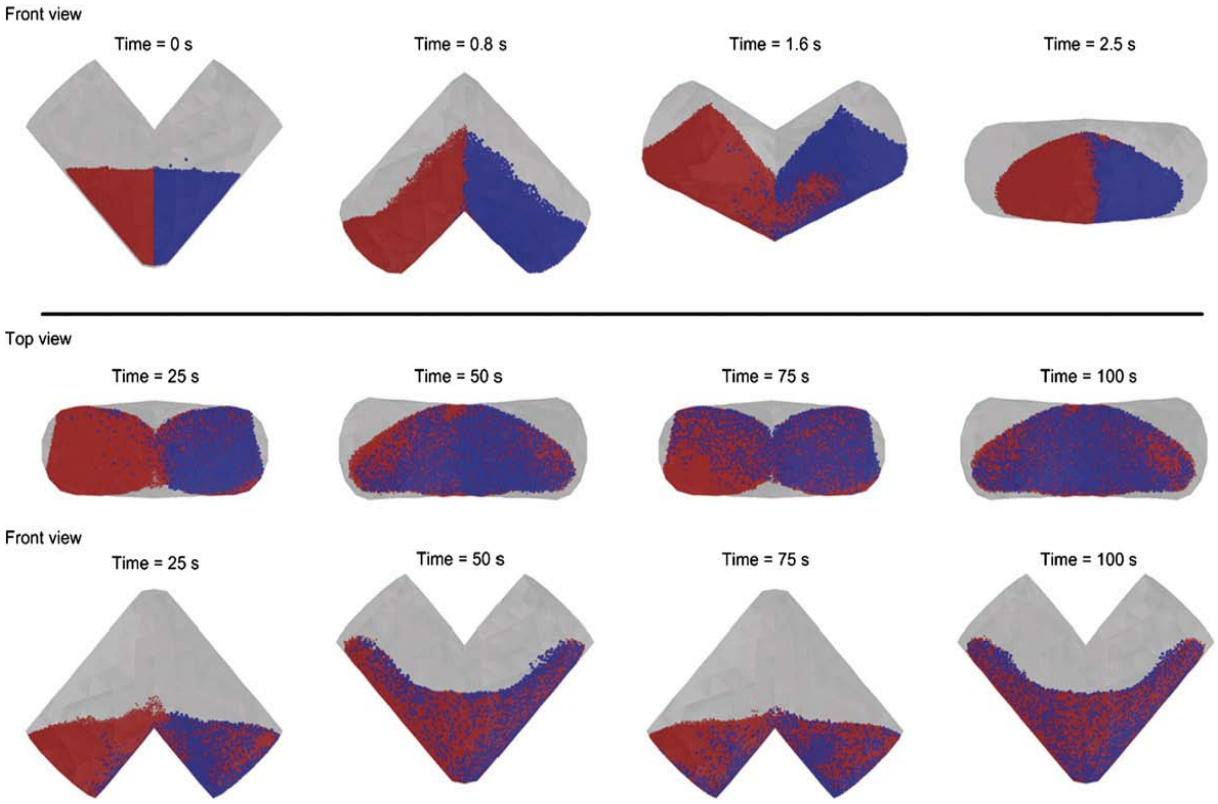


FIGURE 1.47 – Simulation DEM de l'écoulement des particules (rouges) de 3mm de diamètre mélangées avec des particules (bleues) de 6mm de diamètre ; Mélangeur à double cuve en V ; d'après Lemieux et al., 2008 [110]

Le tableau1.2 permet d'avoir une idée du temps nécessaire pour la simulation (DEM) en fonction de la puissance des ordinateurs [111]. On note ici que même avec un ordinateur de 64 processeurs, le temps de simulation reste très limitant (surtout dans une optique de contrôle).

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

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

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

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

1.7.4 Modèle stochastique d'une chaîne de Markov

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

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

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

où x est un état quelconque du processus.

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

Principe de chaîne de Markov

Le principe du modèle Markovien consiste à décomposer le système étudié en un nombre fini de cellules reliées entre elles par des flèches représentant les transitions entre ces cellules qui sont appelées les états du système.
Pour faciliter la compréhension de la théorie des chaînes de Markov, nous présentons dans la figure 1.48 un exemple d' un procédé (en fonctionnement continu) découpé en 3 cellules actives plus un état absorbant qui représente la sortie du système, et depuis lequel aucune transition n'est possible.

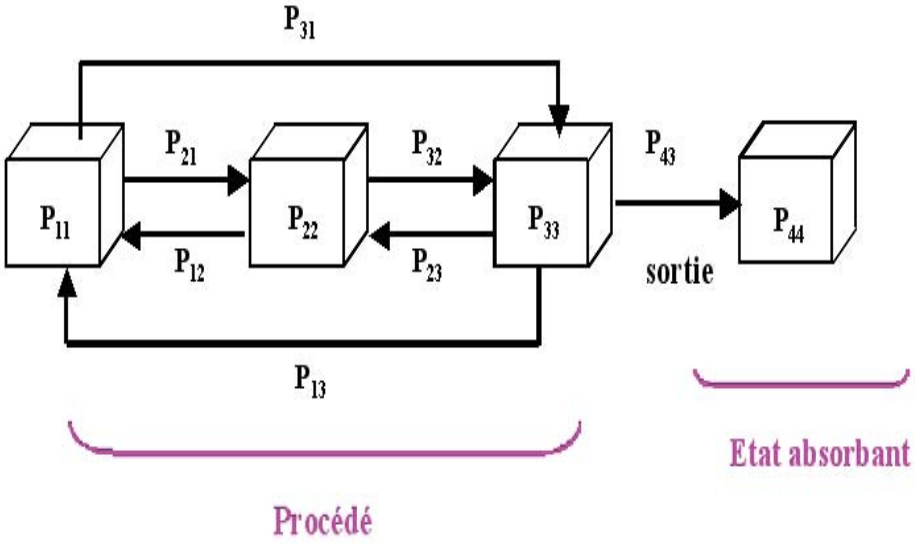


FIGURE 1.48 – Schéma de principe du modèle Markovien appliqué à un système continu

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

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

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

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

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

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

$$\sum_{i=1}^{i=n} P_{j,i} = 1 \tag{1.43}$$

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

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

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

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

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

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

$$S(n+1) = P^n * S(t=0) \tag{1.46}$$

Quelques exemples d'application de la chaîne de Markov

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

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

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

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

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

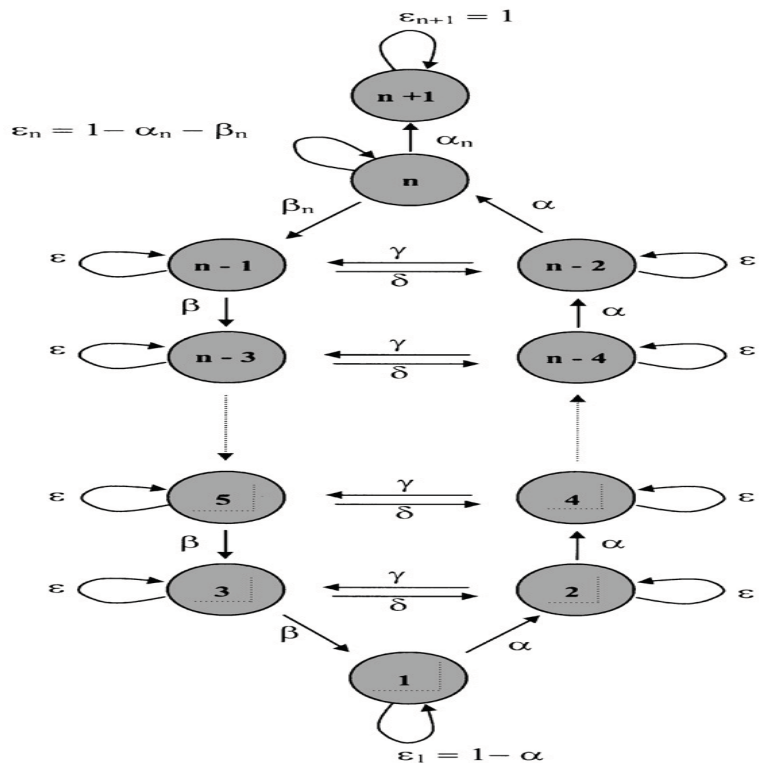


FIGURE 1.49 – Representation Markovienne du modèle des cœur-anneaux en lit fluidisé, Harris.,2002[115]

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

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

Pour chaque ligne la somme des probabilités est égale à 1. Cette matrice a 6 paramètres indépendants, leurs valeurs ont été déterminées à partir des données expérimentales.
En langage Markovien, la fonction de distribution des temps de séjour, notée $E(t)$, se déduit à partir de la variation de l'état absorbant (n+1) entre deux transitions :

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

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

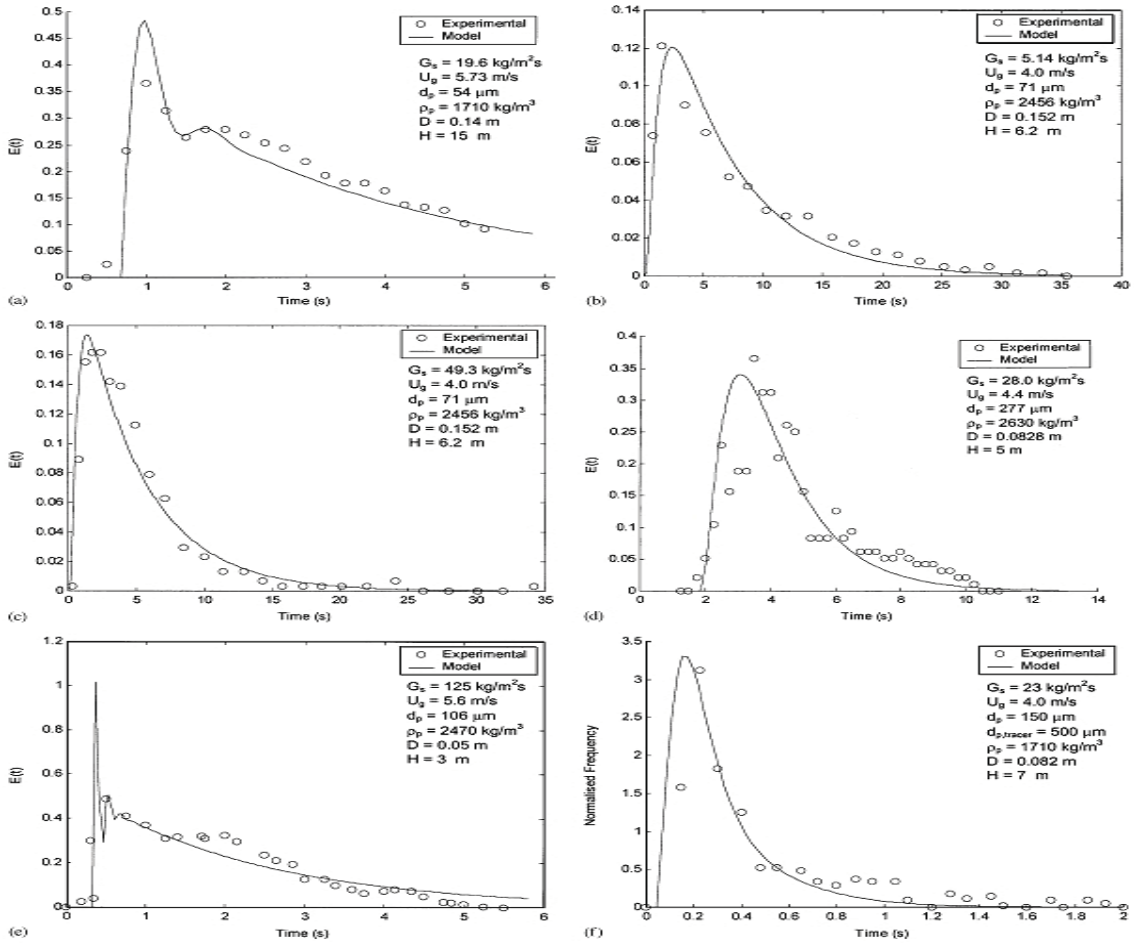


FIGURE 1.50 – Courbes de DTS simulées par modèle Markovien pour un lit fluidisé [115]

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

2- Exemples en mélange des poudres :

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

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

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

Parmi les chercheurs qui ont utilisé l'outil markovien pour modéliser l'écoulement des poudres dans les mélangeurs, nous citerons Inoue et Yamaguchi.,1970 [116] ; Chen et al.,1972[117] ; Lai et Fan.,1975 [118] ; Aoun et al.,2002[119], Berthiaux et Mizonov.,2004 [120]. En 1970, Inoue et Yamaguchi [116] ont utilisé les chaînes de Markov pour décrire l'écoulement de billes de verre dans un tambour de mélange discontinu. Une bille colorée a été ajoutée au mélange, et sa position a été enregistrée après chaque transition (rotation du tambour). Les résultats expérimentaux ont été utilisés pour déterminer la matrice de transition du modèle. Ce travail a permis de développer un modèle Markovien homogène et bidimensionnel.
Dans un autre exemple, Aoun et al. [119] ont appliqué ce type de modélisation sur un mélangeur batch à cerceaux. L'appareil a été divisé en 11 cellules axiales (voir figure1.51). A son tour, chaque cellule a été divisée en trois compartiments radiaux. Au total, le mélangeur a été représenté par 33 cellules permettant la description du mouvement des particules dans les deux sens axial et radial. Les résultats expérimentaux, obtenus à partir d'un traceur suivi par analyse d'images, ont permis à nouveau de diagnostiquer le flux des particules dans le mélangeur.
Récemment(2004), Berthiaux et al. [121] ont développé un modèle basé sur une chaîne de Markov pour décrire l'écoulement d'un mélange de deux systèmes granulaires (couscous et semoule). Le principe de ce modèle consiste à décomposer le volume d'un mélangeur continu (de type Gericke CM 500) en un nombre fini de cellules entre lesquelles le traceur peut transiter. Ces 14 cellules étaient supposées homogènes, le nombre de cellules correspondant au nombre de pales dans le mélangeur. Une quinzième cellule a été ajoutée à ce modèle pour représenter la sortie du mélangeur. Ces cellules sont reliées entre elles par flèches représentant la circulation dans le sens d'écoulement et la re-circulation dans le sens inverse. Ce modèle a été utilisé pour prédire la dynamique de l'écoulement des particules dans le mélangeur, ceci à travers des simulations de la distribution des temps de séjour dans le mélangeur.

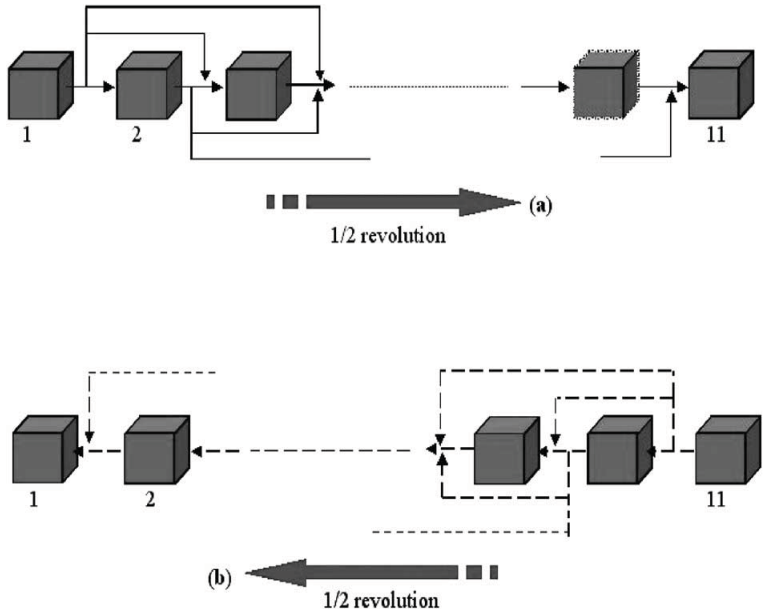


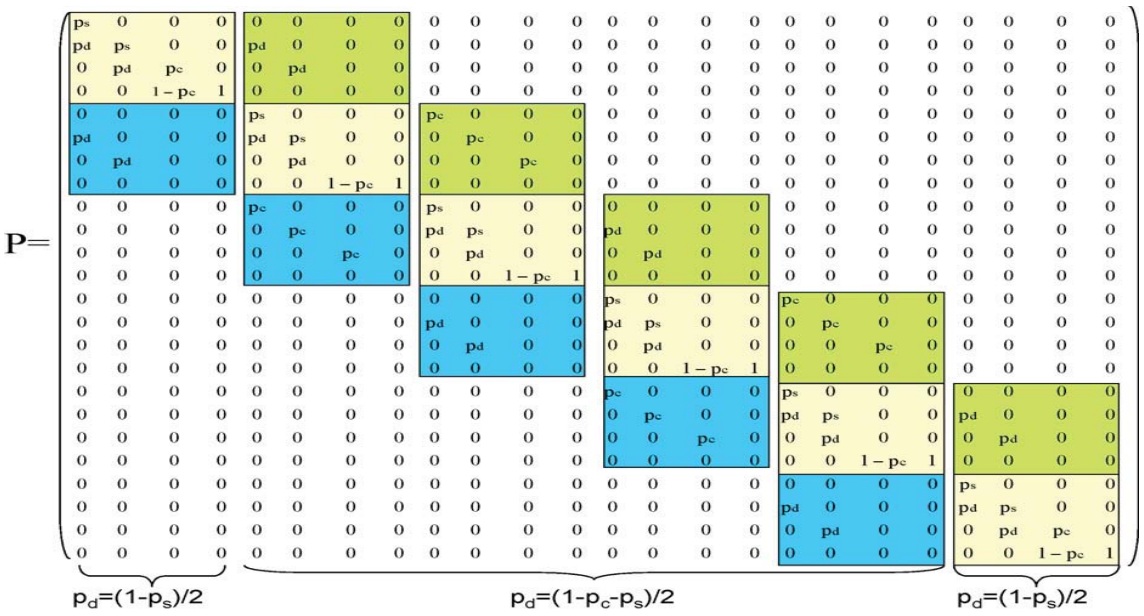
FIGURE 1.51 – Principe du modèle Markovien utilisé par Aoun et al. [119]

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

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

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

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



Pour utiliser cette matrice de transition, il suffît de connaître les deux probabilités suivantes :

P_s : la probabilité que les particules restent dans une cellule donnée.

P_c : la probabilité que les particules se déplacent horizontalement.

La troisième probabilité, appelée P_d, représente la probabilté que les particules avancent verticalement, elle est déterminée à partir de P_s et P_c. Plus précisément on écrit :

-pour toutes les cellules sauf la première et la dernière : $P_d = \frac{1-P_c-P_s}{2}$

-pour la première cellule : $P_d = \frac{1-P_s}{2}$

-pour l'état absorbant : $P_d = \frac{1-P_s}{2}$

A partir de ce modèle, plusieurs simulations ont été réalisées (Ponomarev et al., 2009 [126]) pour illustrer l'effet de la masse initiale de chaque composé sur l'écoulement, et en particulier son effet sur la matrice des probabilités de transition. Ce modèle montre qu'il est possible de prédire la distribution des composés du mélange dans les deux directions du mélangeur (horizontale et axiale).

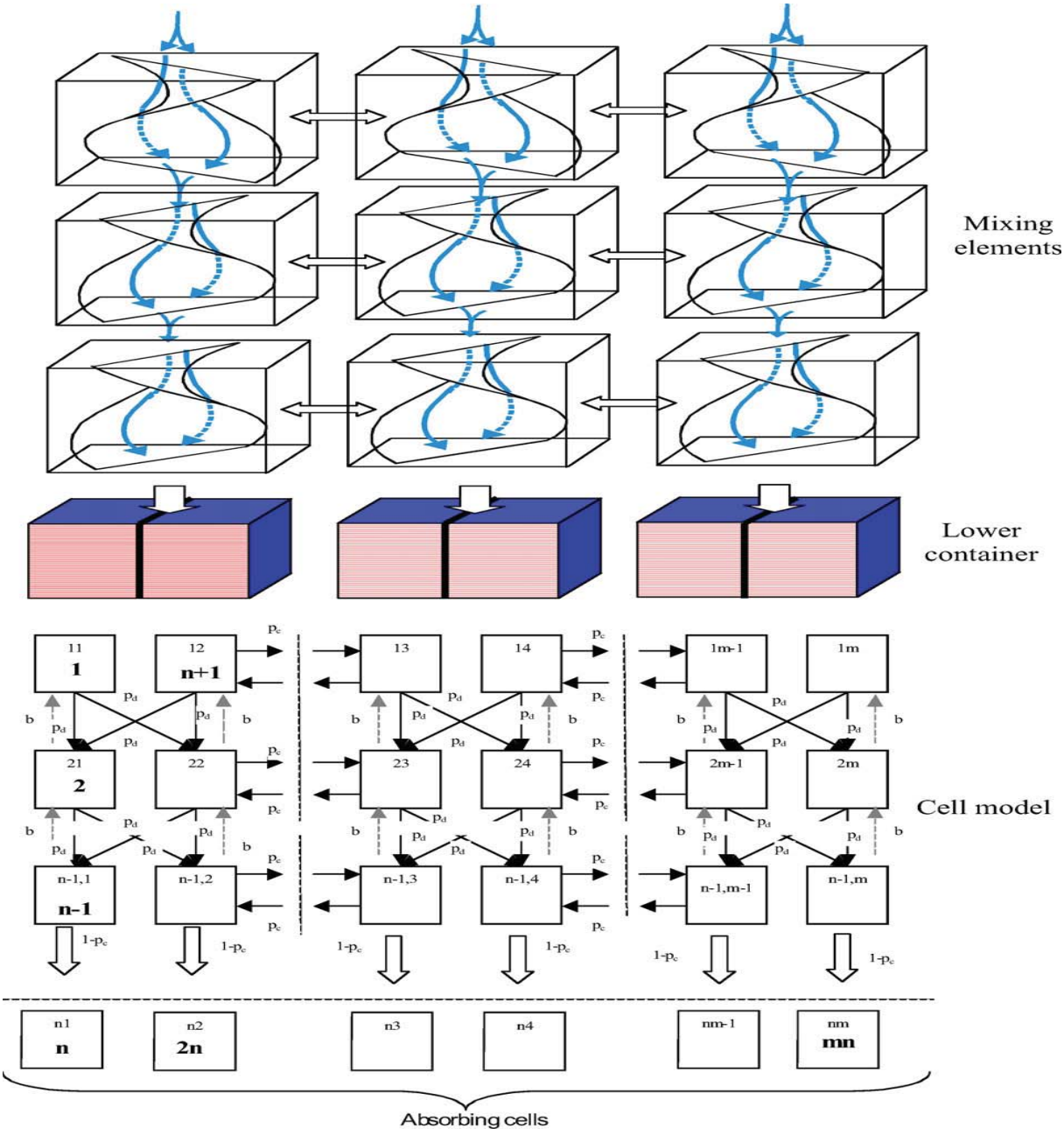


FIGURE 1.52 – Représentation Marovienne de l'écoulement de mélange des poudres dans un mélangeur statique de type Sysmix® d'après [126]

Conclusion

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

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

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

2 Matériels et méthodes

2.1 Dispositif expérimental

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

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

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

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

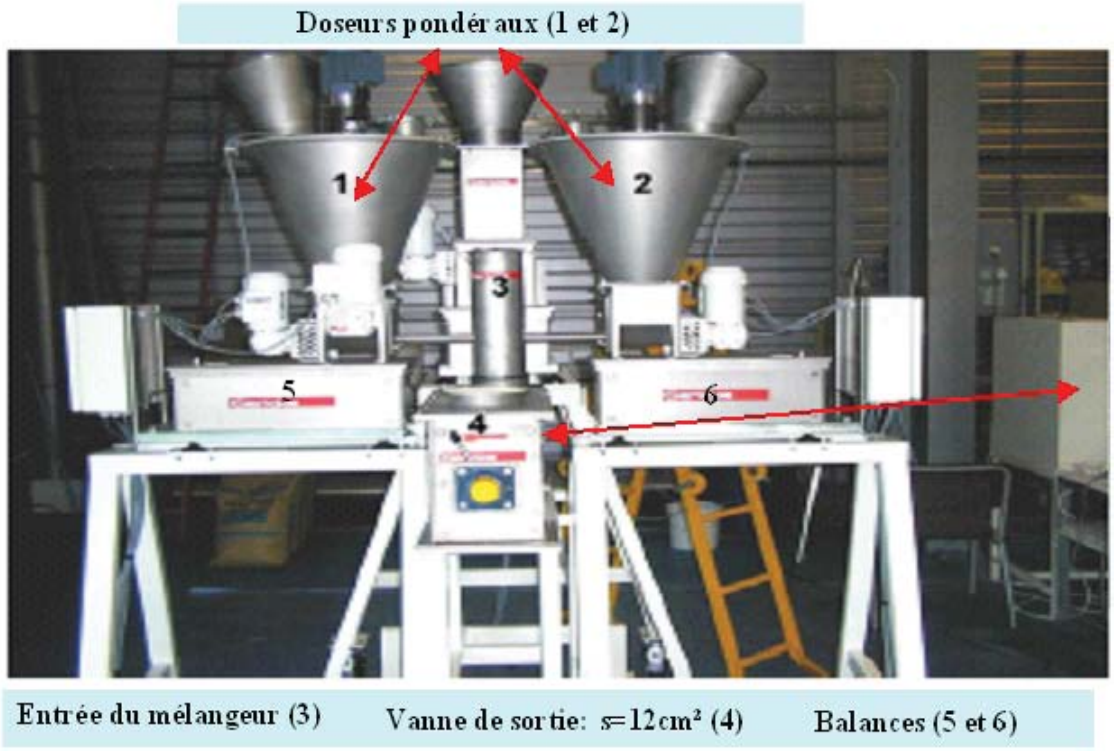


FIGURE 2.1 – Pilote de mélange de type Gericke CM500

2.1.1 Système de dosage

Le pilote de mélange Gericke GCM 500 est équipé d'un système de dosage qui assure le fonctionnement en parallèle de 3 doseurs débitant les produits nécessaires au procédé.
Pour les trois doseurs existants, le système de dosage de précision utilisé (appelé GLD87) est constitué d'une vis d'extraction sans fin placée au sein d'une auge équipée d'un homogénéisateur qui sert à éviter le tassement des poudres au fond de l'auge. Comme le montre la figure 2.2, cet instrument de dosage est entrainé par un moto-réducteur à engrenage (6) ; le changement de vitesse de l'électro-réducteur permet de modifier le débit du doseur. En ce qui concerne le dispositif de détassement, il est entrainé à vitesse constante par un deuxième moto-réducteur(7).
Ce système de dosage est positionné sur un capteur de poids, formant ainsi une balance doseuse à perte de poids (figure 2.3). Comme on peut le constater sur cette figure, la balance doseuse est composée principalement du doseur (A), du système de pesage (B), de la commande et du régulateur de dosage (C), de l'entrainement du doseur (D).

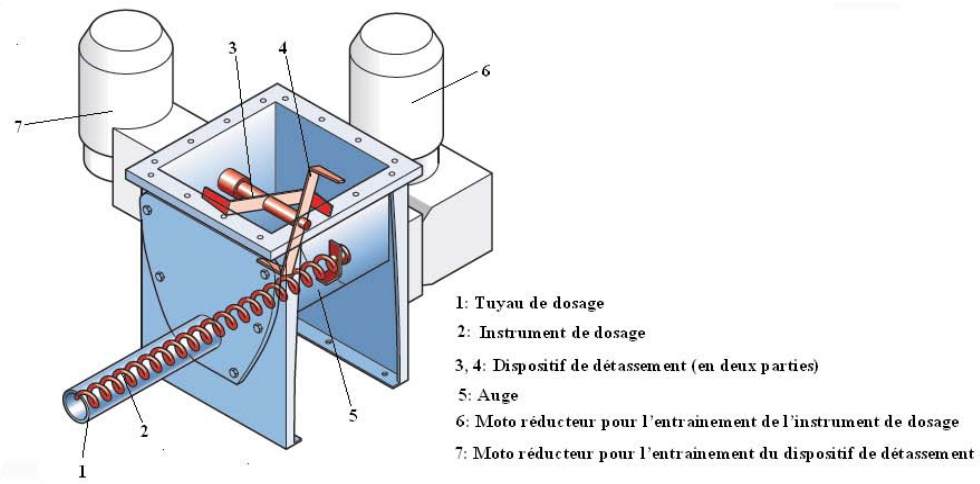


FIGURE 2.2 – Système de dosage GLD87

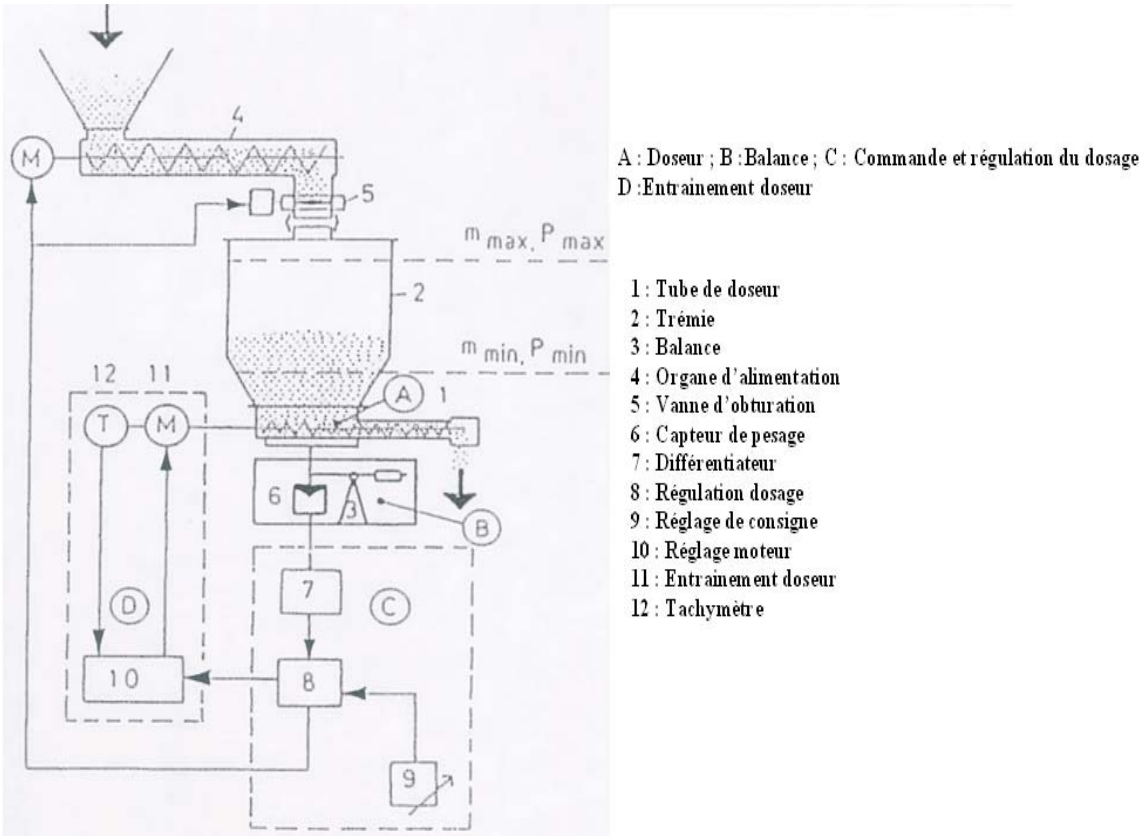


FIGURE 2.3 – Principe de la balance doseuse à perte de poids

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

constitue la grandeur de réglage pour la commande de dosage.
Le régulateur de dosage (8) compare le débit effectif avec la consigne sélectionnée au niveau du dispositif d'ajustage (9). Si une différence est constatée, la tension d'alimentation du moteur d'entrainement de vis d'extraction est adaptée à la nouvelle mesure, et le régulateur (10) agit alors sur l'entrainement du doseur (11) de manière à ce que le débit se rapproche de la consigne sélectionnée.
Dés que le niveau de remplissage de la trémie atteint le niveau minimal appelé Mmin ou Pmin (masse minimale Mmin ou poids minimal Pmin), l'entrainement du doseur (11) bascule vers un mode de fonctionnement volumétrique permettant ainsi de maintenir la vitesse du moteur constante pendant toute la phase de chargement de la trémie. Ce chargement peut être réalisé, soit automatiquement via l'organe d'alimentation (4), soit manuellement.

2.1.2 Système de mélange

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

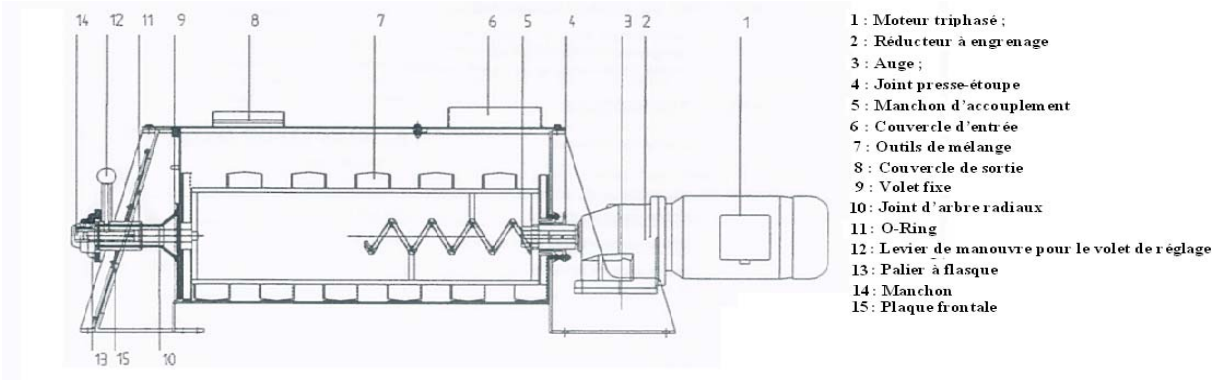


FIGURE 2.4 – Système de mélange

Le mélangeur est équipé d'une trappe de sortie dont on peut régler le positionnement. Les résultats présentés dans ce travail sont obtenus avec une ouverture maximale de cette trappe. La surface de passage correspondant à cette ouverture est $s = 12cm^2$.
L'outil de mélange (7) est entrainé par le moto-réducteur (1) qui est équipé d'un variateur de fréquence dont on peut modifier la vitesse du rotor et ainsi faire varier le temps de séjour moyen du produit dans le mélangeur.

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



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

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

$$\tau(s) = \frac{M_r(Q,N)}{Qout} \tag{2.1}$$

M_r : Masse retenue en régime permanent ; τ : temps de passage ; Q : débit d'alimentation ; N : vitesse de rotation du mobile d'agitation ; $Qout$: débit de sortie.

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

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

2.2 Caractérisation des produits utilisés

Le mélange étudié est constitué de deux types de couscous commercial appelés par la suite " couscous moyen" et "couscous fin". Ces deux produits sont composés de granules sphériques qui sont obtenues à partir de semoule de blé dur sélectionnée, humidifiée, agglomérée, soumise à une pré-cuisson à la vapeur puis séchée et calibrée.
La différence principale entre ces deux types de couscous est la taille des particules. Le couscous moyen est formé majoritairement des particules de tailles supérieures à $1250\mu m$ alors que le couscous fin a une taille moyenne de $800\mu m$. Cette deuxième partie de ce chapitre est dédiée principalement à la présentation des caractéristiques de ces deux poudres.

Comme on peut le constater, le système étudié est composé de poudres à libre écoulement (tailles de particules > $100\mu m$). Ce choix s'est fait principalement pour trois raisons :
- Le mobile d'agitation utilisé dans cette étude est destiné principalement à mélanger des particules de ce type.
- La caméra utilisée, pour caractériser le mélange par analyse d'images, ne permet pas de détecter et d'analyser des particules de tailles inférieures à $70\mu m$.
- Les poudres à libre écoulement ne sont pas susceptible de provoquer un mottage ou un tassement au niveau des auges du système de dosage et à la sortie du mélangeur. Ainsi, la régulation du débit effectif par rapport à la consigne d'entrée est plus précise et les fluctuations sont plus faibles qu'avec des poudres cohésives [2].

2.2.1 Distribution granulométrique

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

règle manuellement, le temps de tamisage choisi est de l'ordre de 3 minutes. Les résultats obtenus pour différents échantillons analysés sont présentés sur la figure 2.6.
Nous précisons ici que le couscous moyen a été prétamisé pour éliminer les particules de tailles inférieures à 1000μm. Ceci permettra de faciliter la séparation des deux produits lorsqu'on étudiera leur mélange.

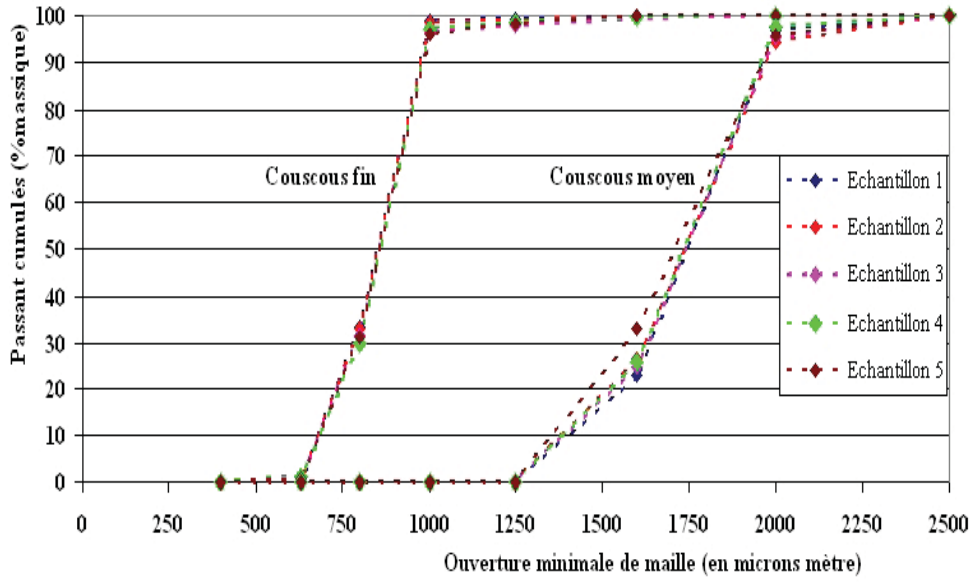


FIGURE 2.6 – Distribution granulométrique des produits utilisés (couscous moyen et fin)

Les diamètres caractéristiques de ces distributions ainsi que leur coefficient de resserrement et le Span sont présentés dans le tableau 2.1.
Notons que Le diamètre d_x est l'ouverture théorique du tamis telle que x% des particules, en masse, ont un diamètre inférieur et $(100-x)$% un diamètre supérieur.

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

d_x	Couscous moyen (μm)	couscous fin (μm)
d_{10}	1375	680
d_{50}	1700	860
d_{90}	1970	980
$Span = \frac{d_{50}-d_{10}}{d_{50}}$	0.35	0.35
$C_{ress} = \frac{(d_{90}-d10)}{2*d_{50}}$	0.175	0.17

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

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

2.2.2 Masse volumique

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

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

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

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

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

TABLE 2.2 – Différentes masses volumiques des produits utilisés

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

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

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

2.2.3 Compressibilité et coulabilité

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

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

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

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

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

TABLE 2.3 – Mesure d'indices de compressibilité

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

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

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

2.2.4 Attrition

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

.

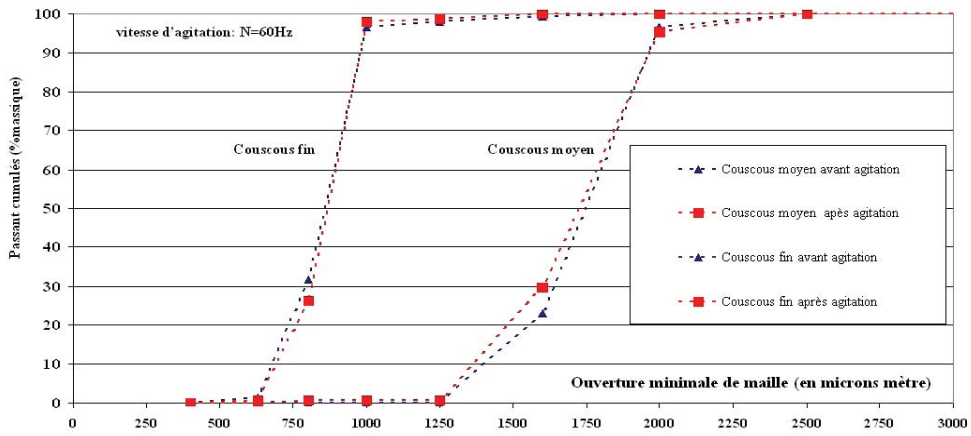


FIGURE 2.7 – Comparaison des distributions granulométriques des produits purs en entrée et en sortie du mélangeur continu (N=60Hz)

2.3 Mesures des masses et des débits massiques

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

2.3.1 Masse retenue et débit de sortie

Afin de pouvoir mesurer la masse retenue et le débit de sortie, une balance analytique a été installée en sortie du mélangeur, comme illustré sur la figure 2.8. L'interface graphique entre la sortie de la balance « port série RS232 » et un ordinateur de contrôle a été réalisée sous Matlab Control Toolbox. Une acquisition en continu de la masse totale sortante est réalisée toutes les 1600 millisecondes.
Par ailleurs, le système de dosage est commandé par un automate qui communique en temps réel avec l'ordinateur de contrôle. Ainsi , la masse de chaque trémie de dosage est mesurée en temps quasi réel.

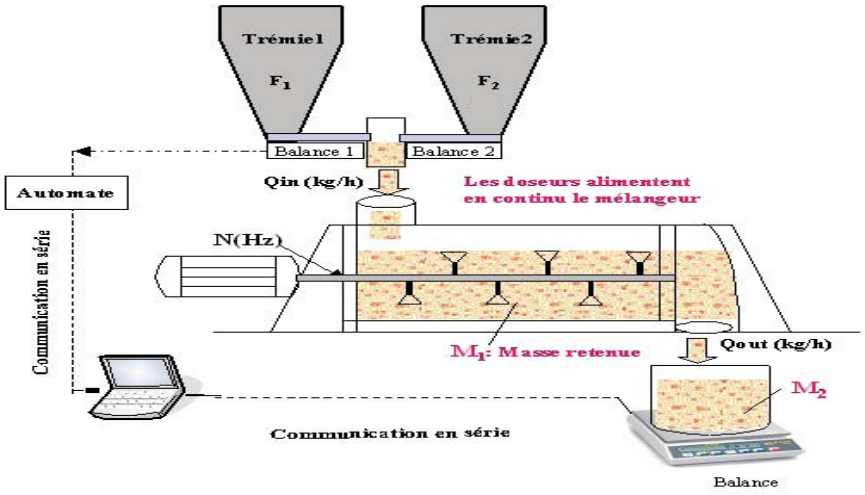


FIGURE 2.8 – Mesure de la masse retenue dans le mélangeur

On note M_1 la masse retenue dans le mélangeur, M_2 la masse totale sortante et F_i la masse des particules dans le doseur i.
La masse retenue dans le mélangeur est ainsi mesurée indirectement à partir de la différence entre la masse totale entrante dans le mélangeur et la masse sortante, en prenant en compte la masse des particules restantes dans chaque doseur (acquise en temps réel), et la masse des particules en sortie du mélangeur. A un instant donné t, la masse retenue dans le mélangeur peut en effet être calculée par l'équation suivante :

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

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

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

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

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

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

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

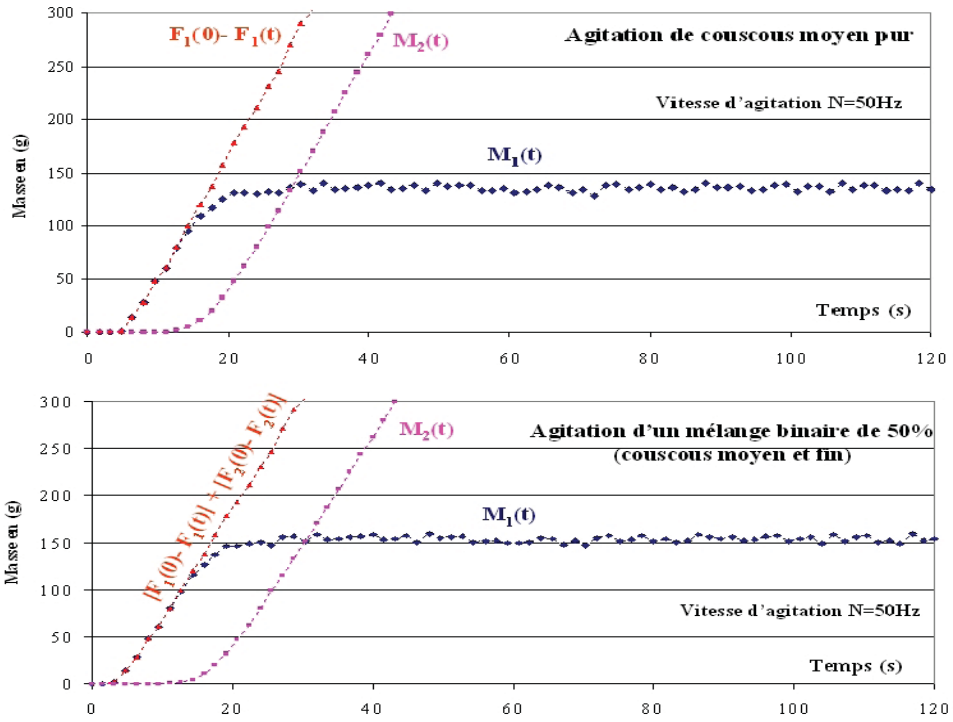


FIGURE 2.9 – Évolution expérimentale de la masse retenue pour Q=40kg/h et N=50Hz

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

$$Qout(t) = \frac{M_2(t+\Delta t) - M_2(t)}{\Delta t} \tag{2.4}$$

avec $\Delta t = 1,6$ s.

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

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

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

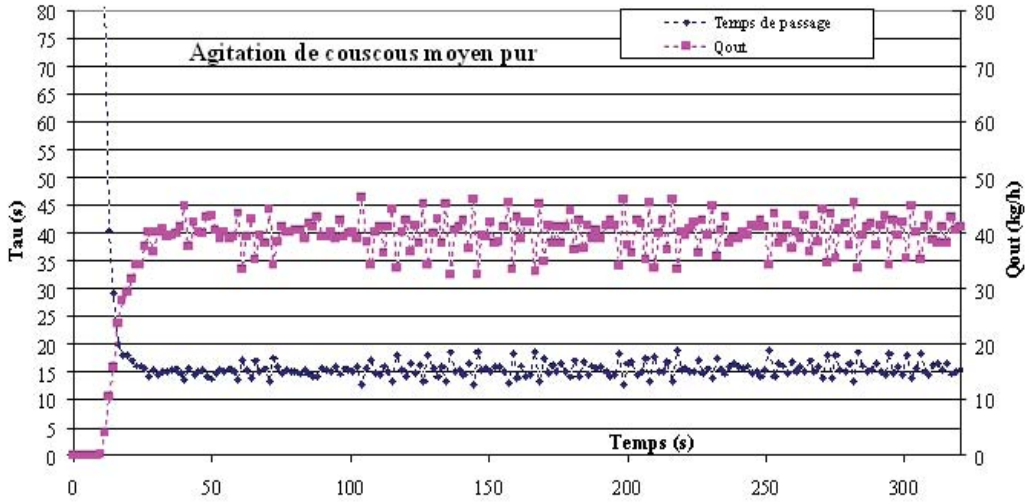


FIGURE 2.10 – Évolution du temps de passage et du débit de sortie instantané (Q=40kg/h ; N=40Hz ; alimentation : couscous moyen pur)

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

2.3.2 Répartition des particules et des débits internes

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

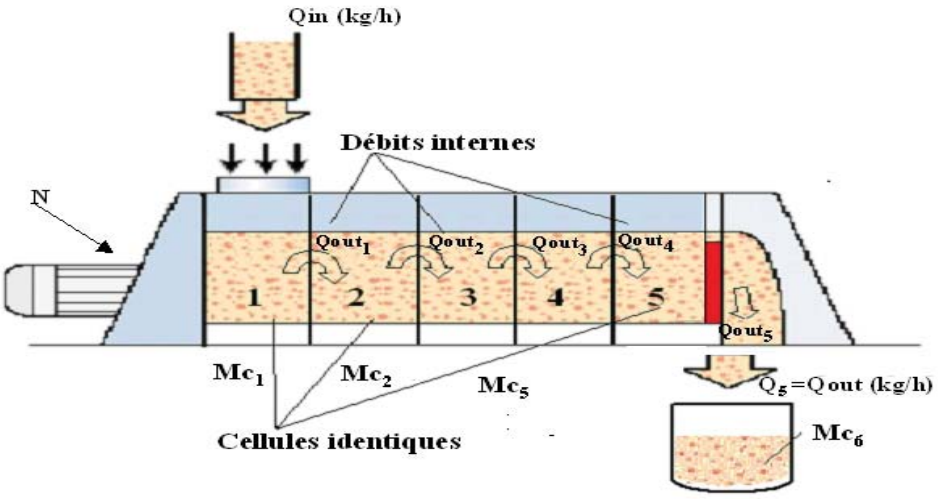


FIGURE 2.11 – Définition des cellules internes

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

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

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

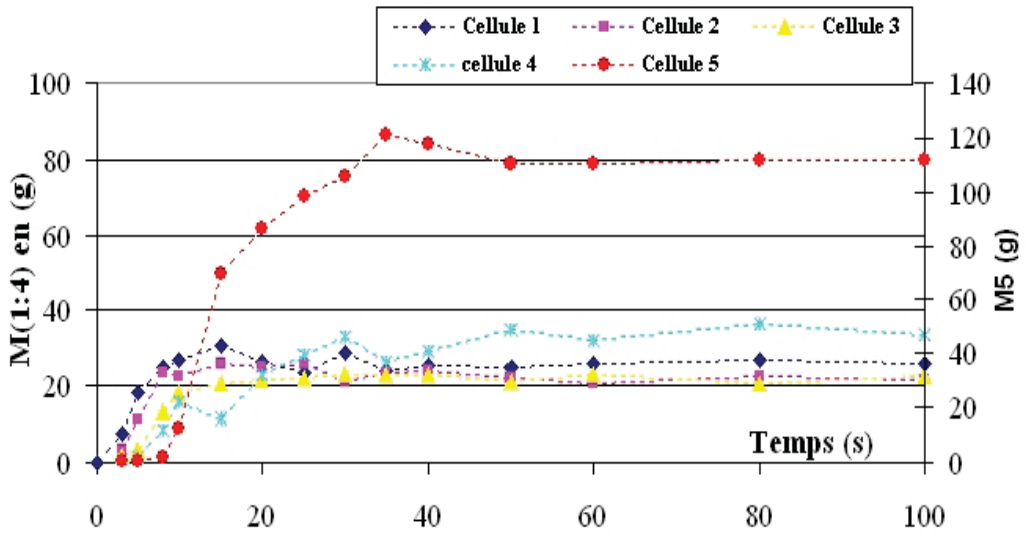


FIGURE 2.12 – Cinétique de remplissage des cellules du mélangeur (Q =40kg/h ; N=30Hz ; alimentation : couscous moyen ; Incertitude : $\pm 50mg$)

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

$$\tau_i(t) = \frac{Mc_i(t)}{Qout_i(t)} \tag{2.6}$$

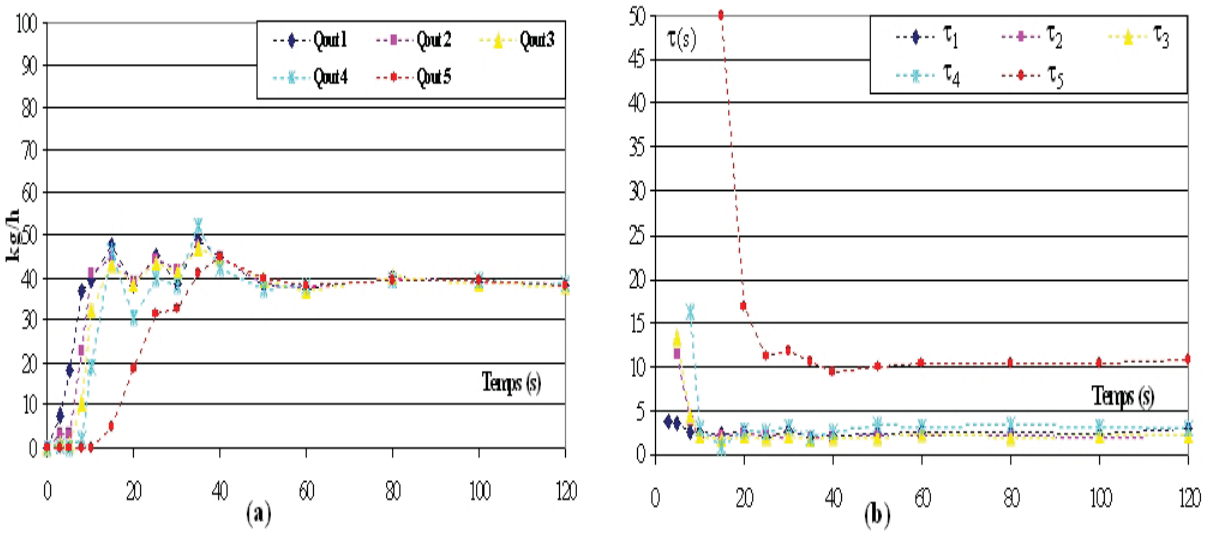


FIGURE 2.13 – (a) Évolution des débits internes ; (b) Évolution de taux de passage dans les différentes régions du mélangeur (Q =40kg/h ; N=30Hz ; alimentation : couscous moyen ; Incertitude de mesure $\pm 0.22kg/h$)

2.4 Mesure de la qualité des mélanges en ligne

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

Parmi les techniques analytiques en ligne qui sont en plein développement, nous avons choisi d'utiliser celle de l'analyse d'image en temps réel. La composition d'un mélange en sortie d'un mélangeur continu peut être définie grâce à l'analyse des couleurs des produits qui constituent ce mélange par analyse d'images. En pratique, une caméra linéaire (CCD) est installée en sortie du mélangeur pour filmer le mélange convoyé par une bande transporteuse (voir figure 2.14). Le mélange obtenu en sortie du mélangeur est filmé en continu, aussi bien en régime permanent qu'en régime transitoire.
La caméra utilisée possède une résolution de 16 bits permettant d'identifier 65536 niveaux gris. Ainsi il est possible de différencier deux poudres, même de couleurs très proches.

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

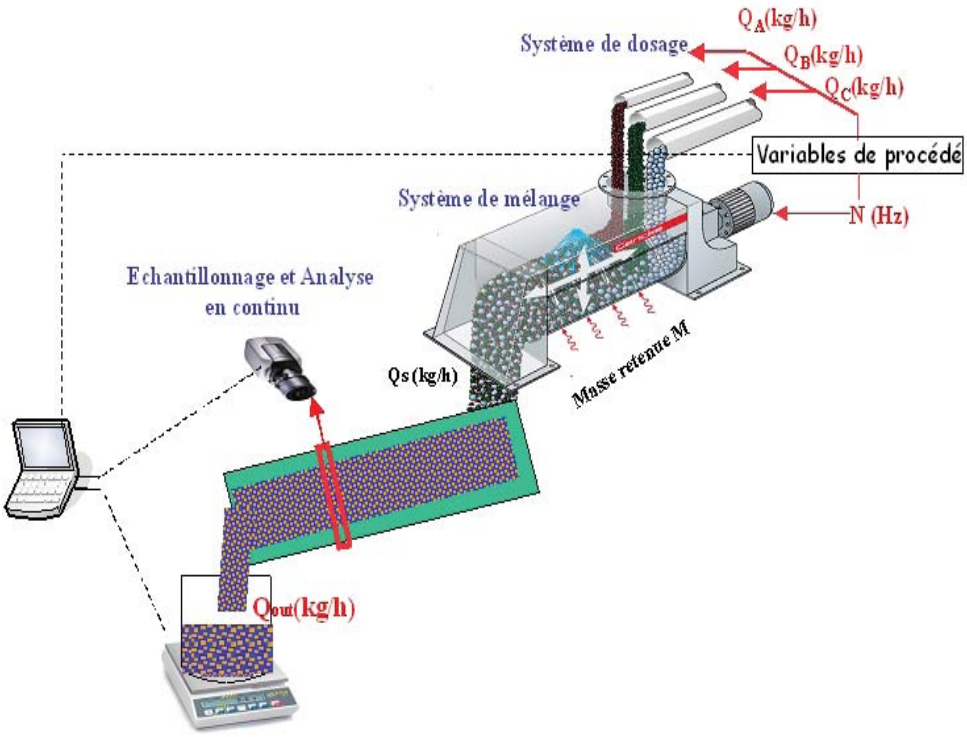


FIGURE 2.14 – Analyse en ligne de qualité de mélange

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

2.4.1 dispositif d'analyse d'images

Caractéristique de la camera linéaire

La camera utilisée « camera Lord DVL 5000 T» est une caméra CCD numérique linéaire conçue pour un usage intensif en milieu industriel. Une caméra est dite linéaire lorsque son capteur (CCD) a une dimension de 1xn capteurs. Ce type de caméra est largement utilisé en vision industrielle puisqu'il permet l'acquisition ligne à ligne d'un objet défilant devant la caméra. Comme illustré sur la figure 2.15, la caméra est placée au dessus de la bande transporteuse afin de filmer en continu les poudres sortant du mélangeur (figure2.15). La

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

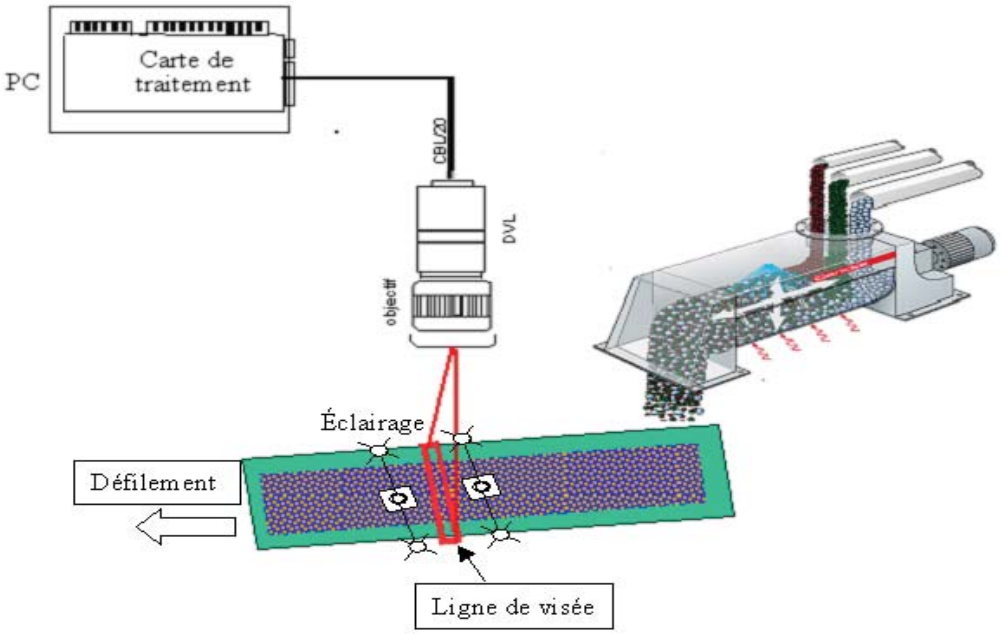


FIGURE 2.15 – Mesure en ligne de la composition du mélange par une caméra linéaire

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

- un capteur de technologie CCD avec une résolution de 5000 pixels de $7*7\mu m$ (figure2.16(b)).
- une fréquence pixel atteignant 20 MHz.
- une fréquence ligne jusqu'à 3,8 kHz.
- une interface logique RS232.
- une sortie vidéo numérique sur 16 bits en différentiel RS422.
- une alimentation monotension à large plage d'entrée de 10 VDC à 24 VDC.
- la possibilité de fixer la caméra sur les quatre faces, dont une est référencée mécaniquement par deux orifices de centrage (figure 2.16 (a)).



(a) (b)

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

Construction d'une image

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

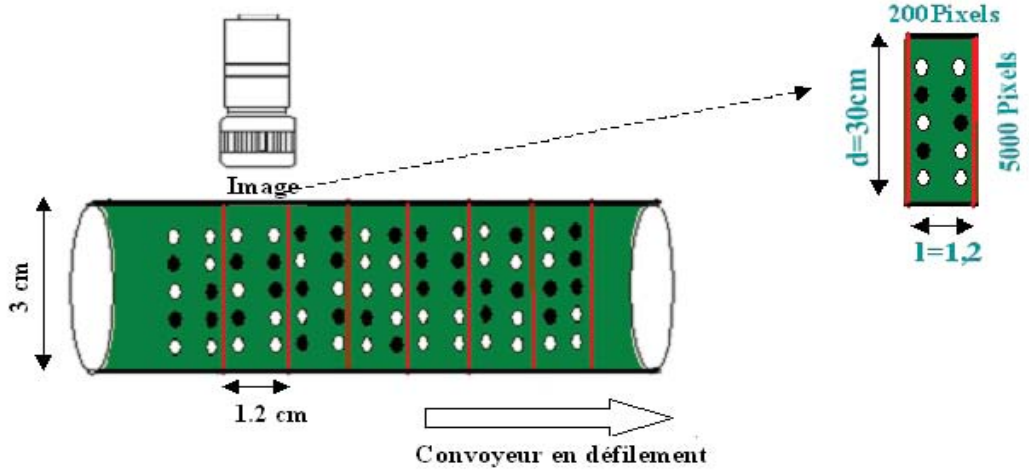


FIGURE 2.17 – Acquisition d'une image à partir de 200 lignes

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

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

Traitement de l'information contenue dans une image

Dans le cadre de ce travail, l'analyse des images numériques acquises est basée sur un programme développé à l'aide du logiciel Labview. La programmation a été faite en langage graphique. Les images acquises par la caméra sont numérisées et envoyées dans la mémoire du PC grace à une carte d'acquisition Imaq1408.
Nous utilisons également les fonctions d'acquisition du logiciel NI-IMAQ, développé par National instrument, qui permettent d'acquérir en continu des images en temps réel. C'est une acquisition asynchrone. La carte d'acquisition est programmée pour transférer en continu les images dans une mémoire tampon "buffer" unique qui est écrasée par le transfert de l'image suivante. Chaque image est retirée de ce "buffer" par le logiciel Labview qui s'occupe de son traitement. Pour réaliser le traitement d'image sous Labview, nous avons utilisé une bibliothèque appelée IMAQ Vision qui est une bibliothèque de traitement du signal destinée à plusieurs logiciels tels que Labview, BridgeVIEW, LabWindows/CVI, ComponentWorks et container ActiveX. Elle comprend un jeu de fonctions optimisé MMX pour les images à niveau de gris, couleurs et binaires. Elle intègre par exemple des fonctions de statistique, filtrage, transformations géométriques, détection de formes et de couleurs, analyse de particules.
Chaque pixel de l'image acquise par la caméra a une valeur comprise entre 0 et 255 suivant le niveau de gris perçu par le capteur (0 pour le noir et 255 pour le blanc).

Comme la bande transporteuse utilisée a une couleur verte, l'image filmée contient trois différentes couleurs : le blanc pour le couscous moyen, le noir pour le couscous fin et le vert pour la bande transporteuse. Ainsi, pour différencier les produits du mélange par couleurs, nous avons procédé à deux binarisations de chaque image acquise en donnant à chaque pixel la valeur 0 ou 1. Les pixels dont le niveau de gris est inférieur à la valeur choisie pour le seuillage prendront la valeur 0, les autres pixels prendront la valeur1 (voir figure 2.18).

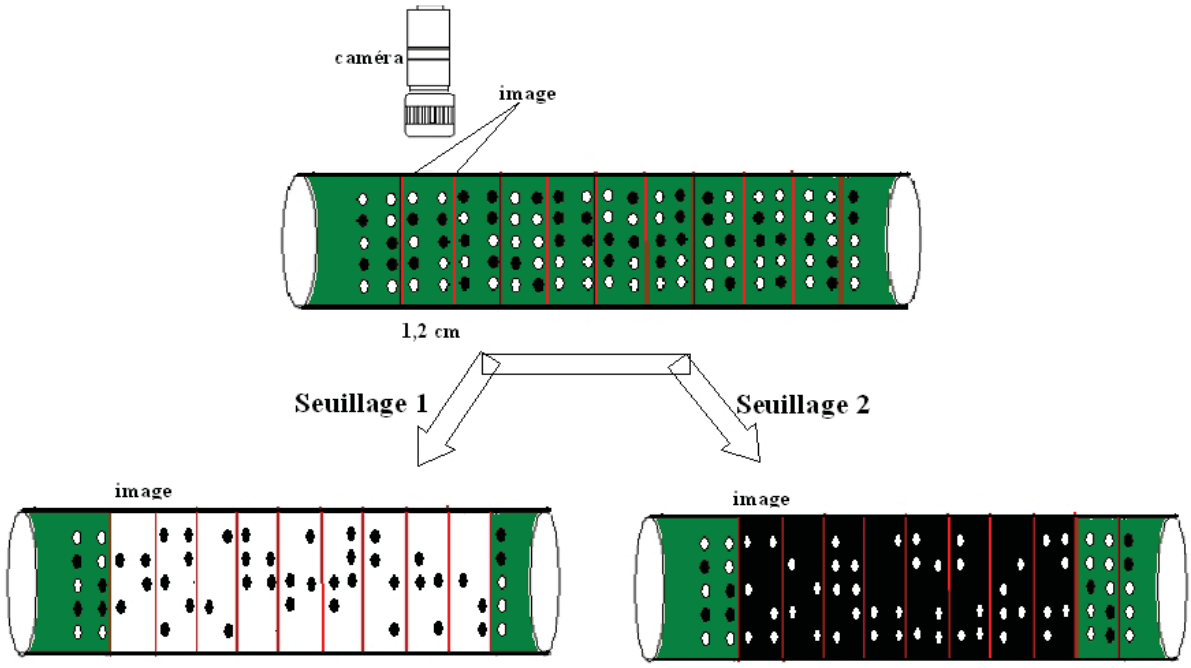


FIGURE 2.18 – Traitement d'une image avec deux différents seuillages

De nombreux tests ont été réalisés pour déterminer le meilleur niveau de seuillage, c'est à dire le niveau de gris en dessous duquel une particule sera considérée sombre.
Dans le premier seuillage de la figure 2.18, la bande transporteuse et les particules blanches ont une valeur de 1, alors que les particules noires ont une valeur de 0. Tandis que dans le deuxième seuillage, la bande transporteuse est comptée avec les pixels blancs.
A partir du premier seuillage, nous pouvons déterminer directement le nombre de pixels noirs par image. Ensuite, à partir du deuxième seuillage nous déterminons le nombre de pixels blancs. La différence entre le nombre total de pixels dans une image et la somme des pixels noirs et blancs permet de déduire le taux de "vide" dans chaque image, correspondant à la bande transporteuse. Ainsi, la proportion surfacique de chaque produit peut être calculée :

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

avec X_f et X_m sont successivement les fractions du couscous fin et du couscous moyen.
Finalement, il est important de signaler que la stabilité des conditions lumineuses est indispensable, car une particule noire plus éclairée peut être perçue comme une particule blanche, et inversement.

Taille d'échantillon

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

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

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

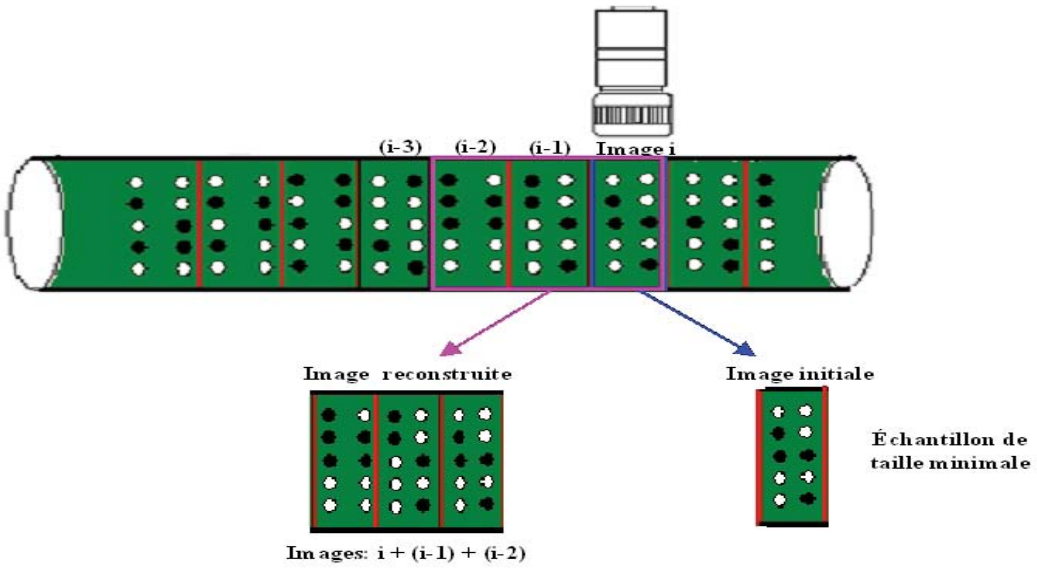


FIGURE 2.19 – Construction d'un échantillon à partir de plusieurs images

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

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

TABLE 2.4 – Différentes tailles d'échantillonnages étudiées

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

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

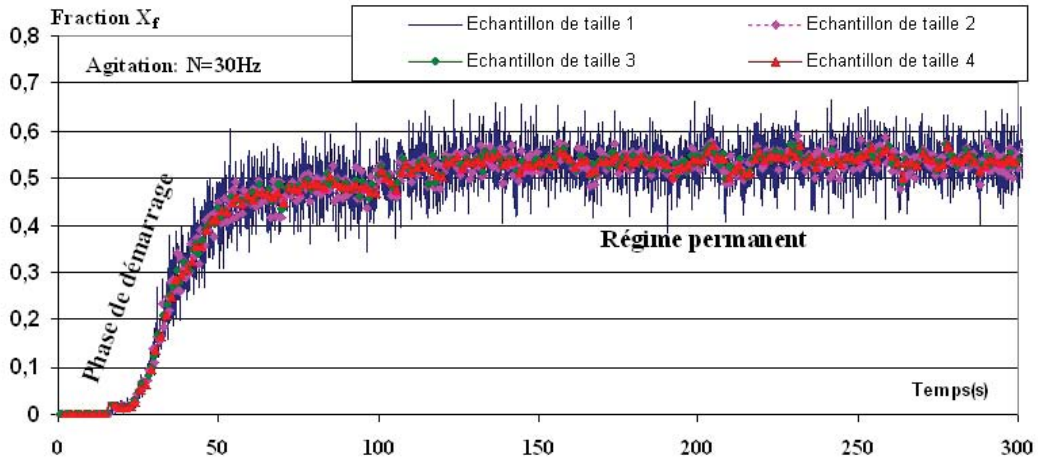


FIGURE 2.20 – Mesure en ligne de la teneur en couscous fin dans un mélange binaire pour plusieurs tailles d'échantillons ($N = 30Hz$; $Q = 40kg.h^{-1}$composition :50% de couscous fin)

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

Fréquence d'échantillonnage

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

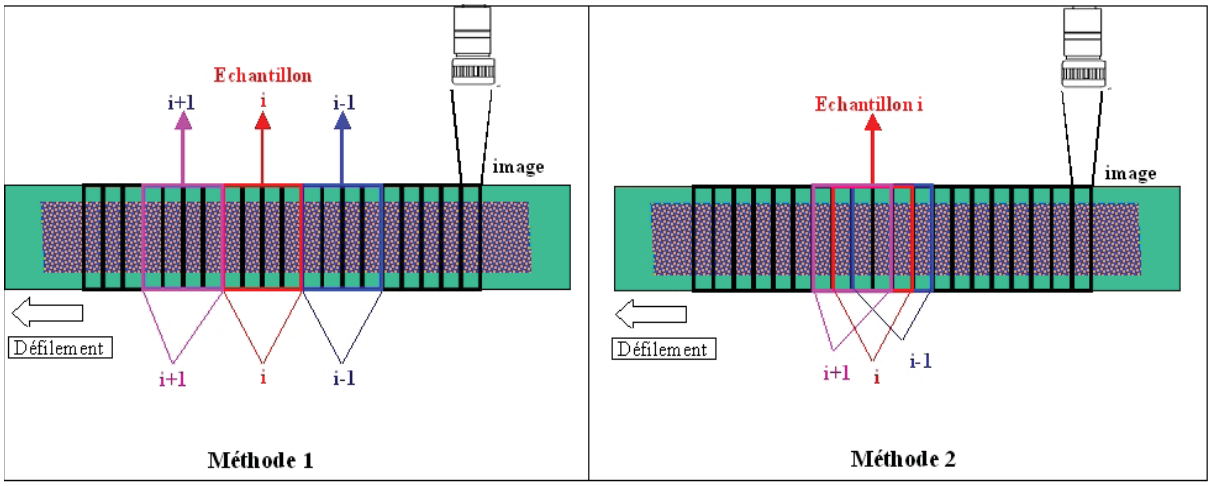


FIGURE 2.21 – Principe de construction d'un échantillon à partir de 4 images

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

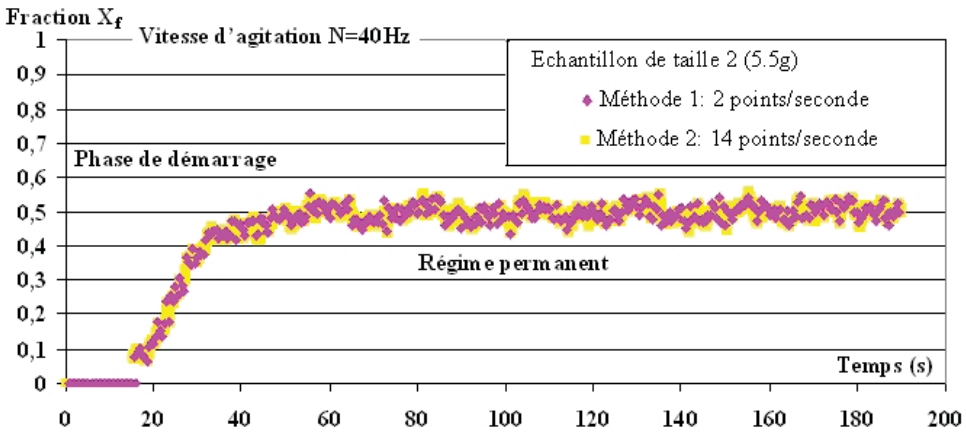


FIGURE 2.22 – Comparaison ente deux méthodes d'échantillonnage pour des échantillons de 5,5g

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

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

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

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

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

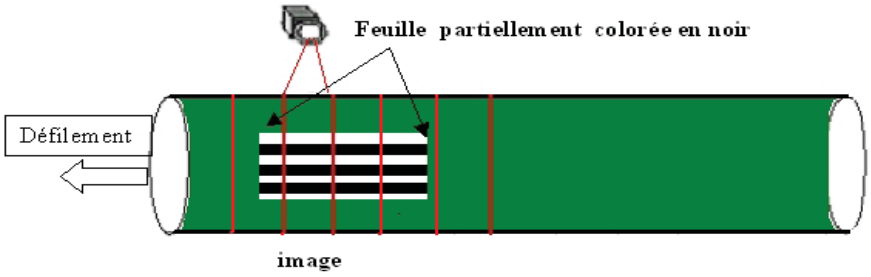


FIGURE 2.23 – Défilement d'une feuille blanche partiellement colorée devant la caméra

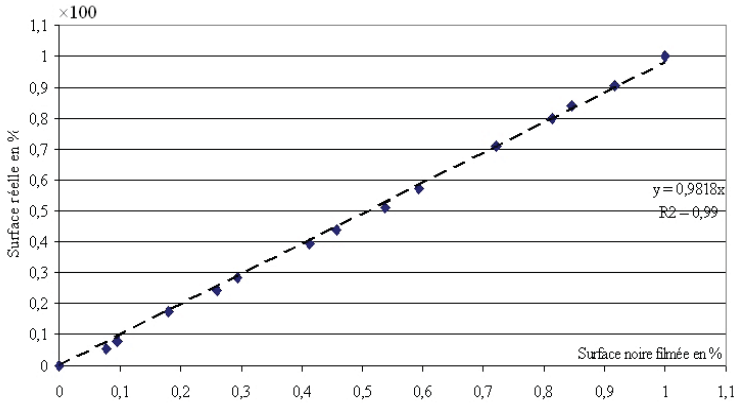


FIGURE 2.24 – Relation entre la surface colorée réelle et la surface filmée

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

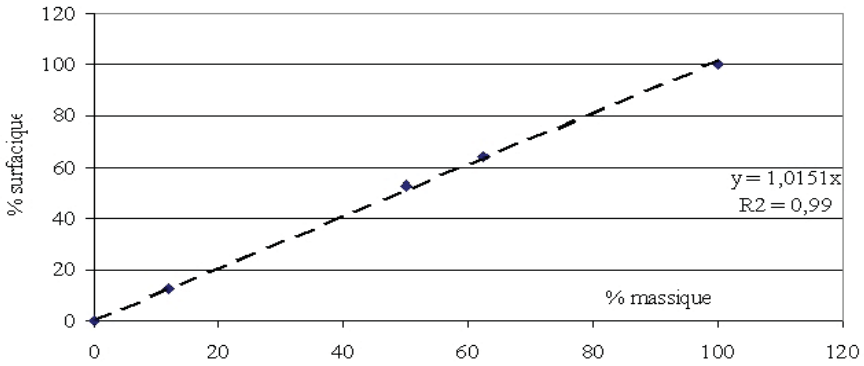


FIGURE 2.25 – Relation entre la composition surfacique filmée par la caméra et la composition massique réelle

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

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

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

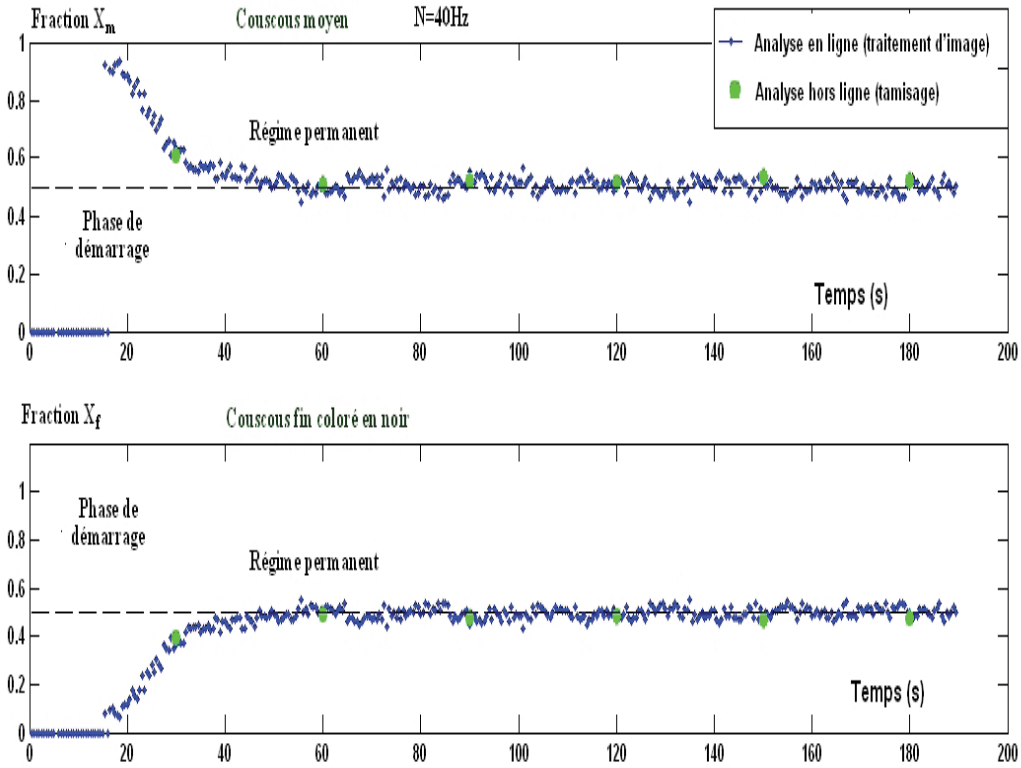


FIGURE 2.26 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 50%)

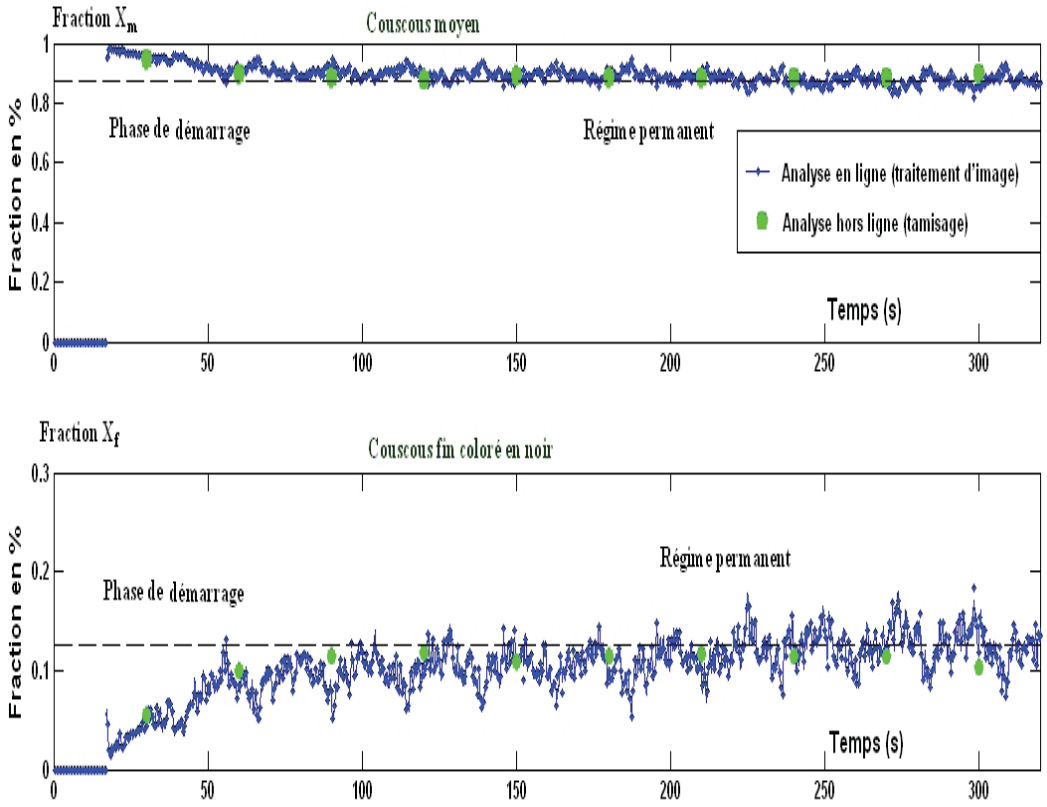


FIGURE 2.27 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 12,5%)

Pour les deux cas de figure présentés, on remarque que la composition du mélange en régime permanent fluctue autour de la composition attendue. Les analyses réalisées hors ligne et plus particulièrement celles qui correspondent à la phase de démarrage vont dans le sens de la validation de la technique d'analyse d'image en ligne. En effet, le mélange obtenu pendant la phase de démarrage est composé majoritairement des particules blanches (couscous moyen), ce n'est qu'après un certain temps de régime transitoire que le mélange s'équilibre en terme de composition finale attendue des deux produits. Ce phénomène de ségrégation qui est observé grâce à l'analyse d'image (pendant la phase de démarrage) est confirmé par les analyses réalisées hors ligne.
Nous précisons également que ces expériences ont été réalisées 3 fois afin de s'assurer de la répétabilité des résultats.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

3

Étude de l'agitation en régime transitoire

Introduction

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

3.1 Étude de l'agitation lors de la vidange

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

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

pratique courante dans l'industrie pharmaceutique où le principe de réconciliation doit être assuré. Pendant cette vidange, il existe un risque de ségrégation qui peut amener à une perte de l'homogénéité acquise par l'opération de mélange, d'où la nécessité de bien maitriser la phase de vidange. Malgré cela, peu de recherche ont été menées sur ce type de fonctionnement particulier.
Dans la présente partie, nous étudions uniquement l'aspect dynamique de l'agitation d'un produit pur en vidange. Cette étude sera étendue, par la suite, au régime permanent.

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

Le produit, constitué de particules de diamètre supérieur à 1200 μm, est préalablement introduit directement dans la chambre de mélange par le doseur. Dans ce mode, le rôle des doseurs est limité au remplissage initial du mélangeur. Ils ne sont pas utilisés au cours de l'agitation.
Après avoir choisi une masse de remplissage initiale $M_1(t=0)$ et une vitesse de rotation du mobile d'agitation N, nous mesurons la masse retenue et le débit de sortie, comme cela est illustré sur la figure 3.1. Nous cherchons à mettre en évidence l'effet de ces deux variables opératoires($N, M_1(t=0)$).

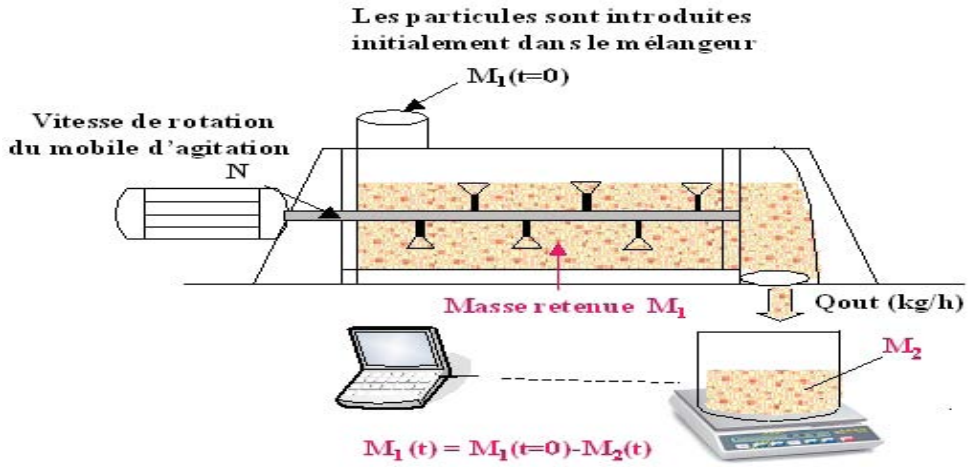


FIGURE 3.1 – Mesure de la masse retenue pendant la vidange

Les expériences ont été réalisées avec N égal à : 10, 20, 30, 40 et 50 Hz. Pour chaque vitesse N, trois masses initiales ont été choisies 4, 6 et 8 kg.
Le débit de sortie est calculé à partir de la variation de la masse sortante (M_2) entre deux

instants successifs :

$$Qout(t) = \frac{M_2(t+\Delta t) - M_2(t)}{\Delta t} = \frac{M_1(t) - M_1(t+\Delta t)}{\Delta t} \tag{3.1}$$

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

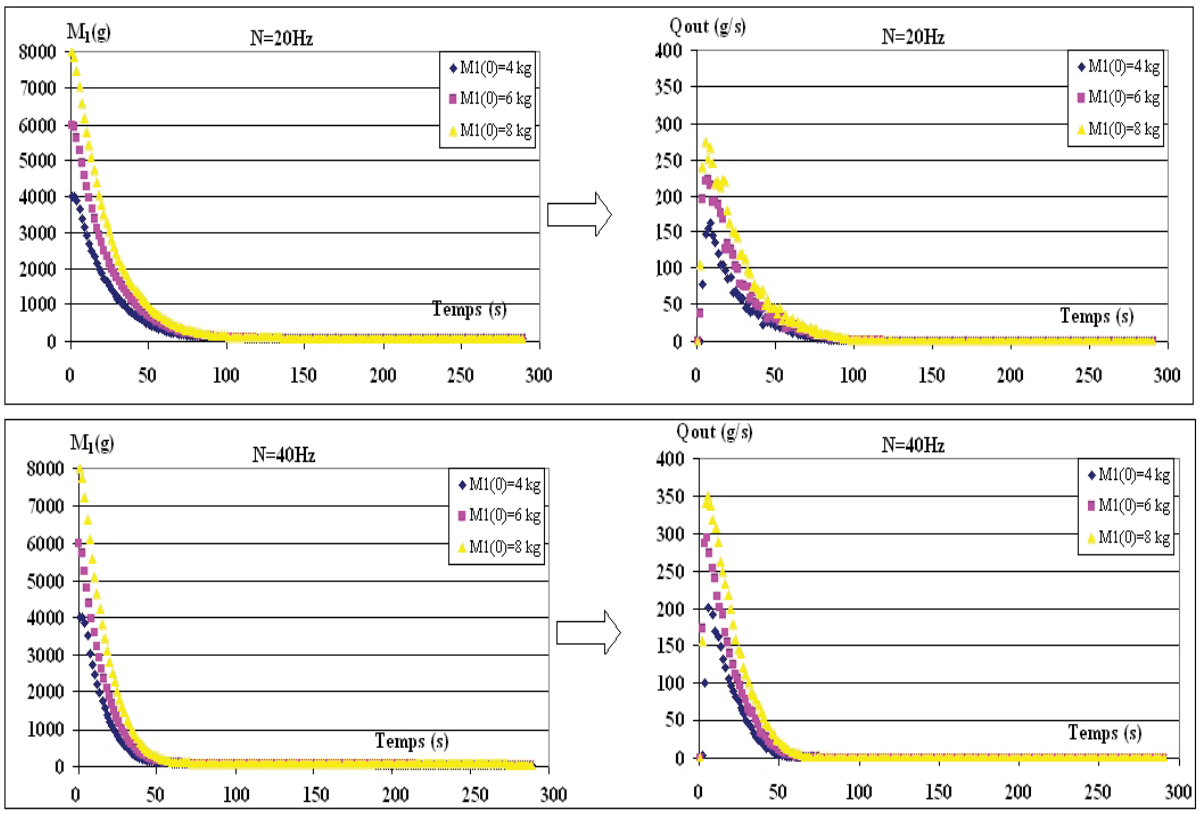


FIGURE 3.2 – Évolution de la masse retenue et du débit de sortie pendant la vidange ($\Delta t = 1,6s$)

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

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

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

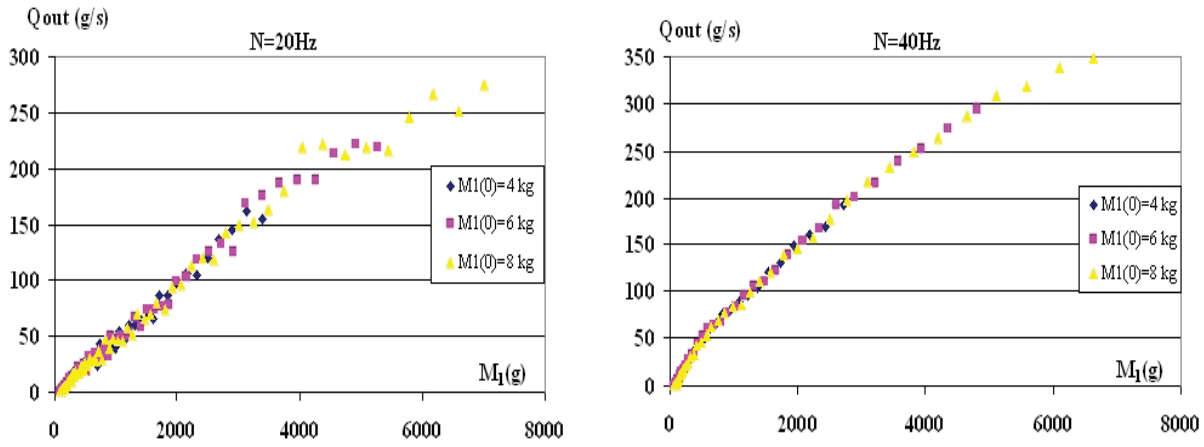


FIGURE 3.3 – Évolution de débit de sortie (Qout) avec la masse retenue (M_1)

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

3.1.2 Différents régimes d'écoulement lors de la vidange

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

$$r(t) = \frac{Qout(t)}{M_1(t) + \Delta F(t)} = \frac{Qout(t)}{M_1(t) + Q * \Delta t} \tag{3.2}$$

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

$$r(t) = \frac{Qout(t)}{M_1(t)} \tag{3.3}$$

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

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

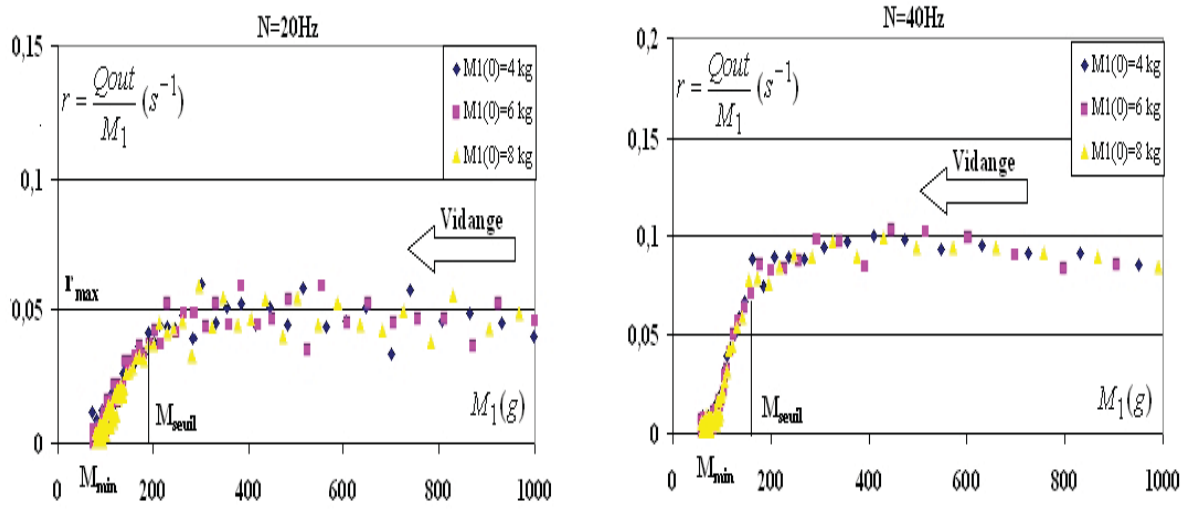


FIGURE 3.4 – Évolution du rapport r pendant la vidange

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

$$pour \;\; M_1 < M_{Mmin} : \quad r = 0 \tag{3.4}$$

$$pour \;\; M_1 > M_{seuil} : \quad r = r_{max} \tag{3.5}$$

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

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

$$pour \;\; M_1 > M_{seuil} : \quad Qout = r_{max} * M_1 \tag{3.7}$$

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

minimale, le débit de sortie $Qout$ est décrit par un polynôme du seconde ordre :

$$pour \;\; M_{min} < M_1 < M_{seuil} : \;\; Qout(t) = a * M_1^2(t) + b * M_1(t) \tag{3.8}$$

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

$$a = kv_1 * N \tag{3.9}$$

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

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

$$b = -a * M_{min} \tag{3.10}$$

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

$$M_{min} = kv_2 * N^{\alpha} \tag{3.11}$$

Intervalle de confiance à 95% :

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

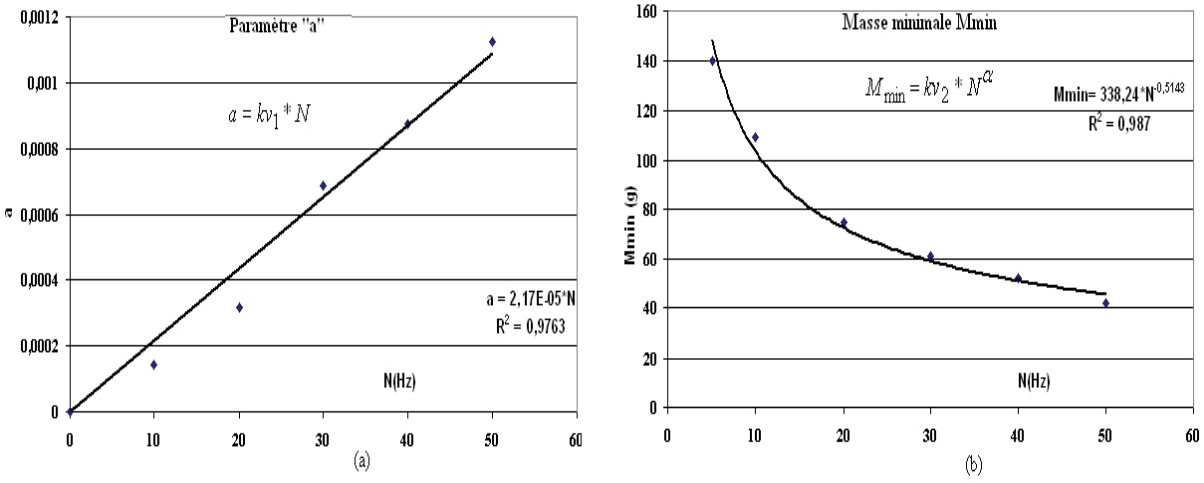


FIGURE 3.5 – Relations empiriques pour les paramètres a (a) et M_{min} (b)

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

$$pour\ \ M_1 > Mseuil\ :\qquad r_{max} = kv_3 * N \tag{3.12}$$

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

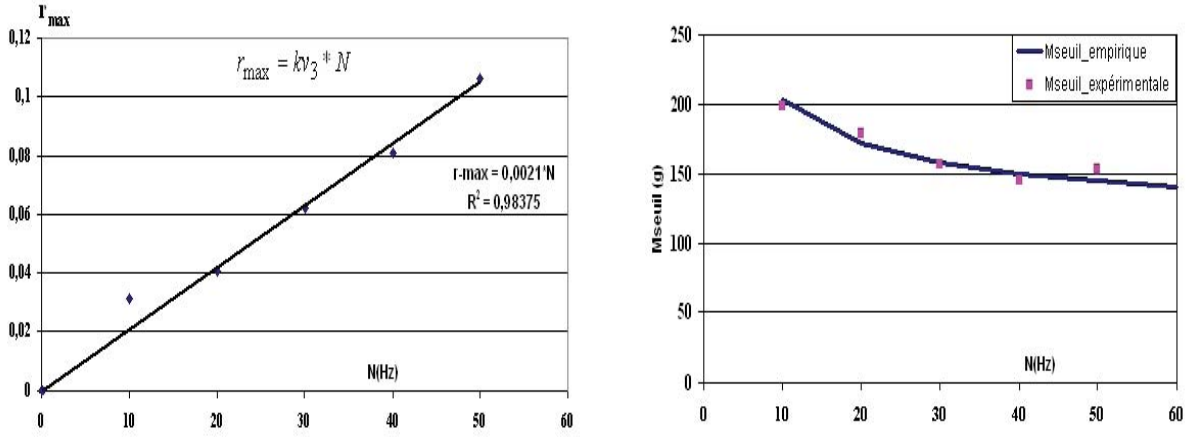


FIGURE 3.6 – (a) r_{max} en fonction de la vitesse N ; (b) Masse seuil en fonction de la vitesse N.

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

$$Qout(t) = kv_1 * N * M_1(t) * (M_1(t) - \frac{kv_2}{\sqrt{N}}) \tag{3.13}$$

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

$$r = a * M_{seuil} + b = r_{max} \tag{3.14}$$

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

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

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

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

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

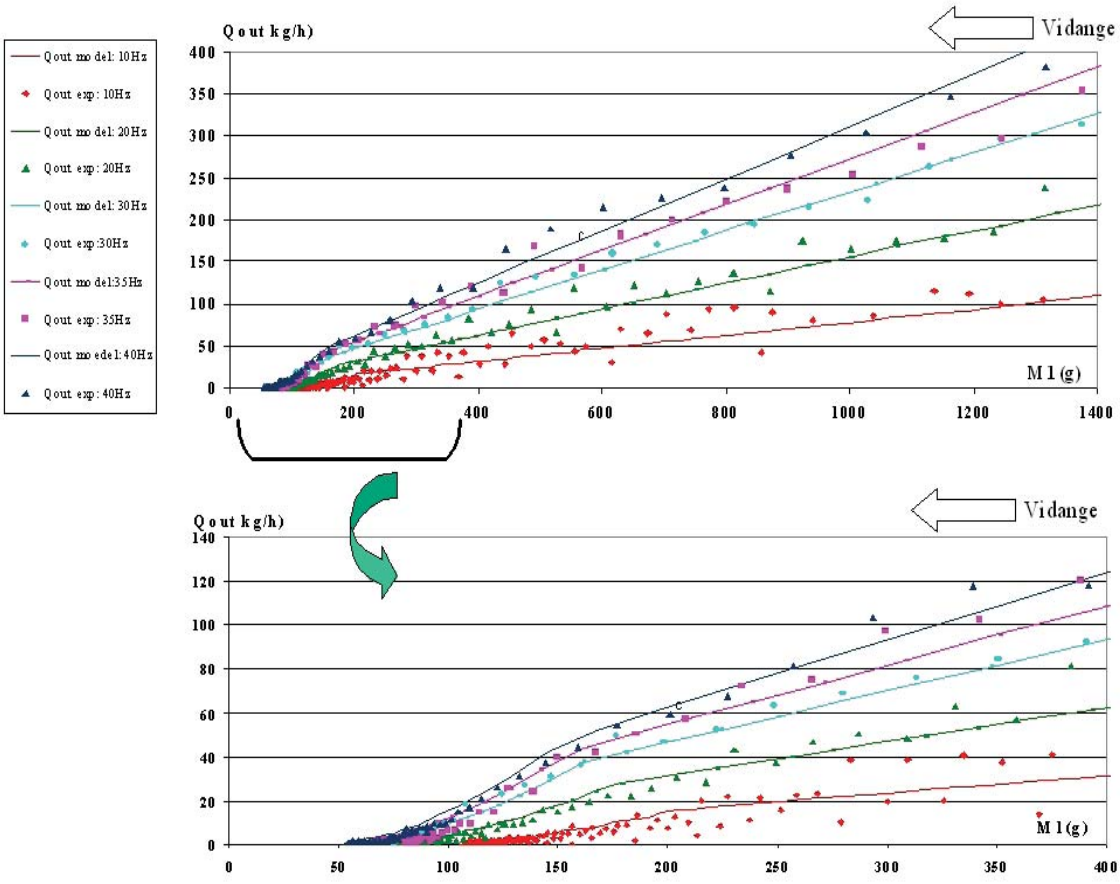


FIGURE 3.7 – Débit de vidange : comparaison entre expérience et relations empiriques

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

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

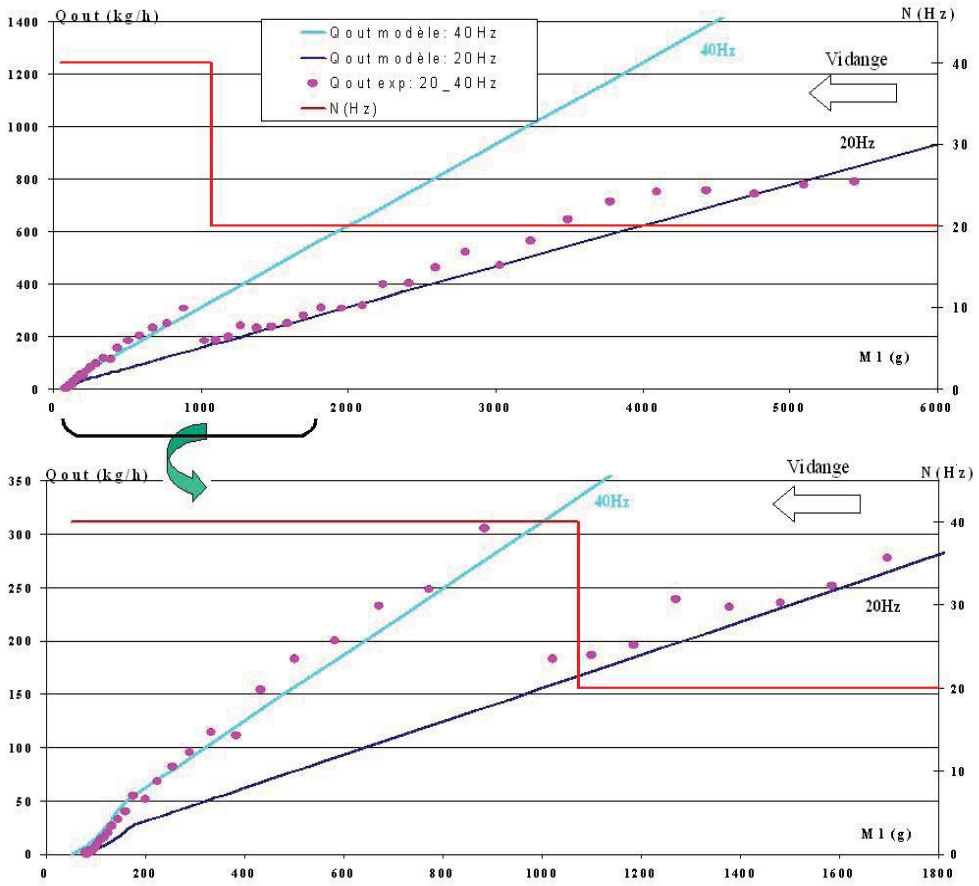


FIGURE 3.8 – Confrontation expérience- équations empiriques dans le cas d'un échelon positif sur N (de 20 à 40 Hz)

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

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

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

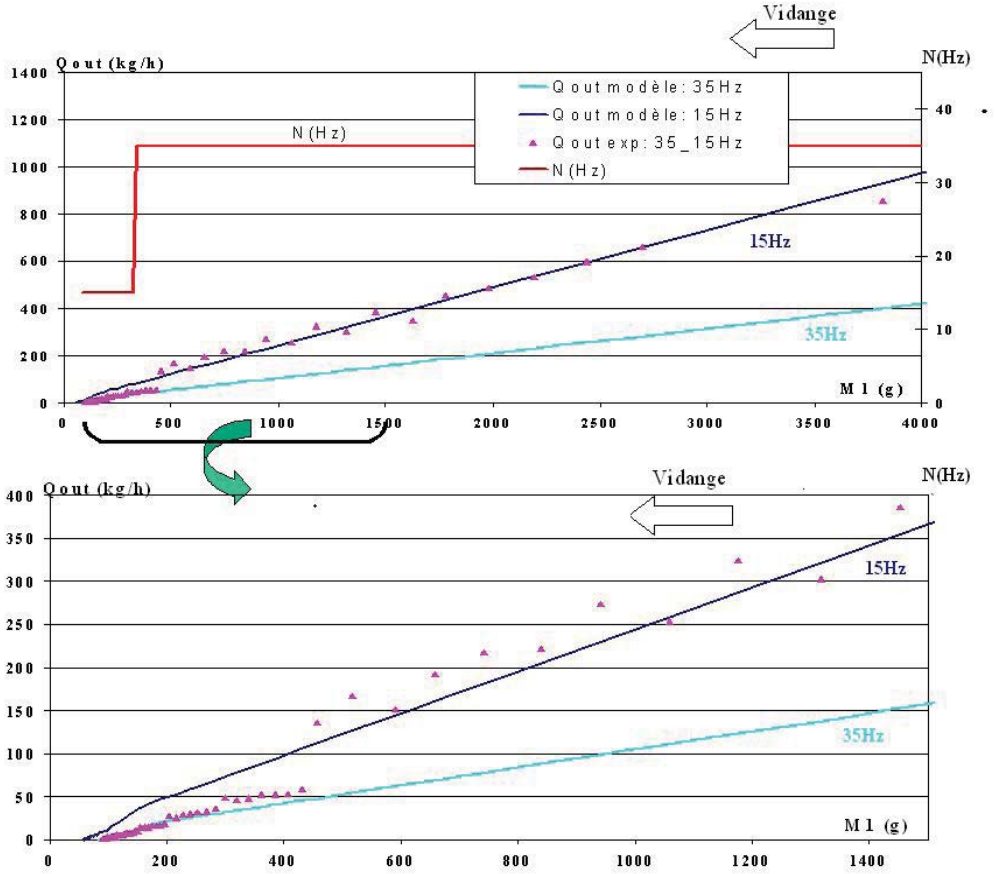


FIGURE 3.9 – Confrontation expérience- équations empiriques dans le cas d'un échelon négatif sur N (de 15 à 35 Hz)

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

3.2 Étude de l'agitation lors du démarrage

3.2.1 Évolution de la masse retenue et du débit de sortie

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

débit de sortie $Qout(t)$ (voir figure 3.10).

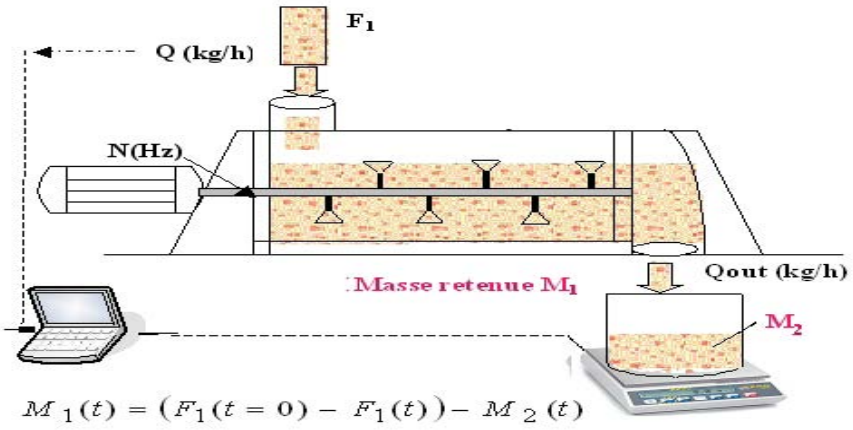


FIGURE 3.10 – Acquisition de la masse retenue et du débit de sortie

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

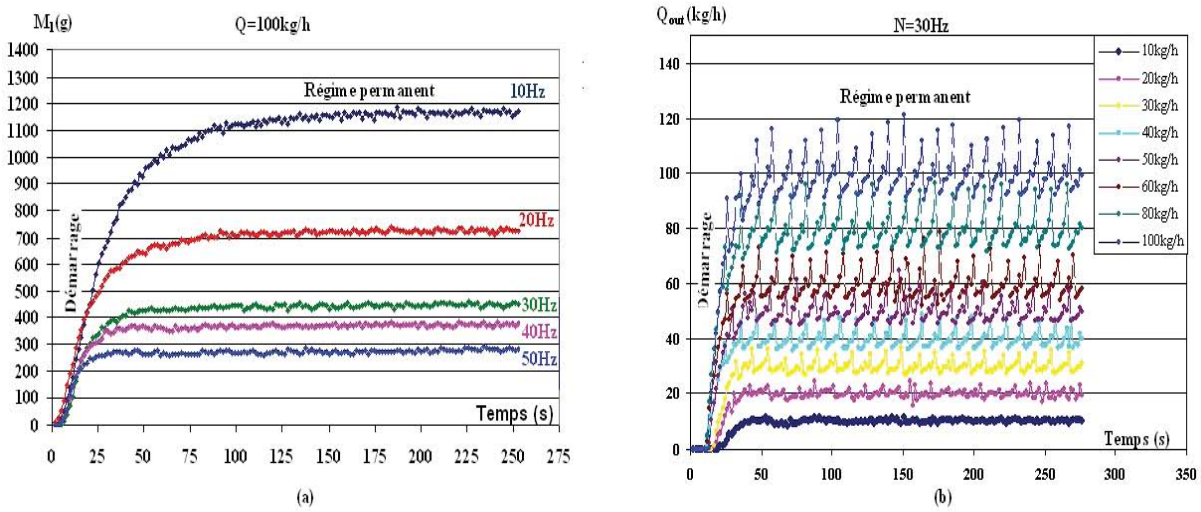


FIGURE 3.11 – Évolution de la masse retenue (a) et du débit de sortie (b)

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

atteint sa valeur seuil qui est appelée Mr. Cette masse retenue dépend principalement du débit d'alimentation Q et de la vitesse de rotation N utilisés.
Notons également que ces résultats expérimentaux sont caractérisés par quelques fluctuations, qui peuvent être expliquées par le faible pas d'échantillonnage et aussi par la nature aléatoire du système étudié.

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

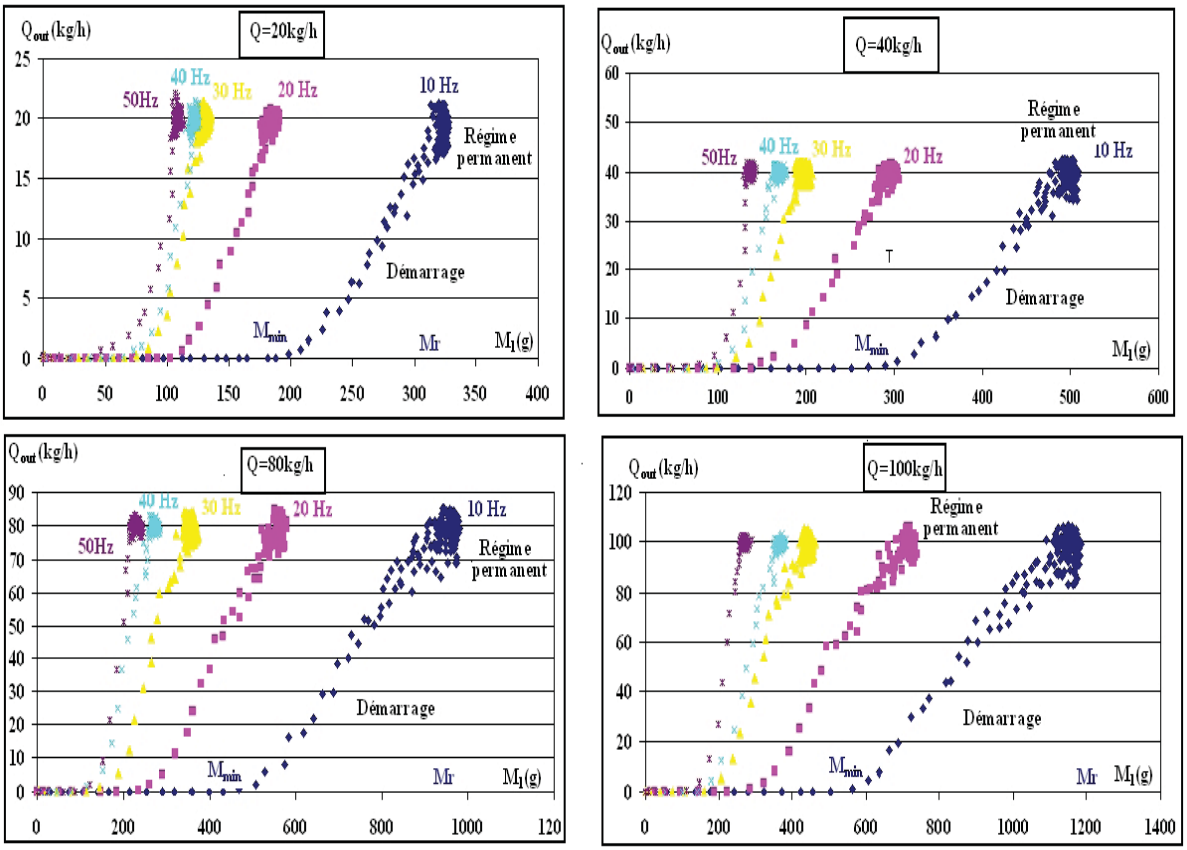


FIGURE 3.12 – Évolution du débit de sortie avec la masse retenue M_1 lors du démarrage et en régime permanent pour différentes conditions

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

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

3.2.2 Détermination des masses retenues limites

Masse retenue en régime permanent :

A partir des résultats expérimentaux, nous cherchons maintenant une corrélation empirique reliant la masse retenue en régime permanent (Mr) aux différents paramètres opératoires (N et Q). Nous précisons ici que malgré les fluctuations mesurées de cette masse, nous supposerons qu'elle reste constante en régime permanent.
Les résultats expérimentaux (figure 3.13) montrent que pour une vitesse d'agitation fixe, la masse retenue est une fonction linéaire du débit Q :

$$Mr(Q,N) = a_N * Q + b1 \tag{3.17}$$

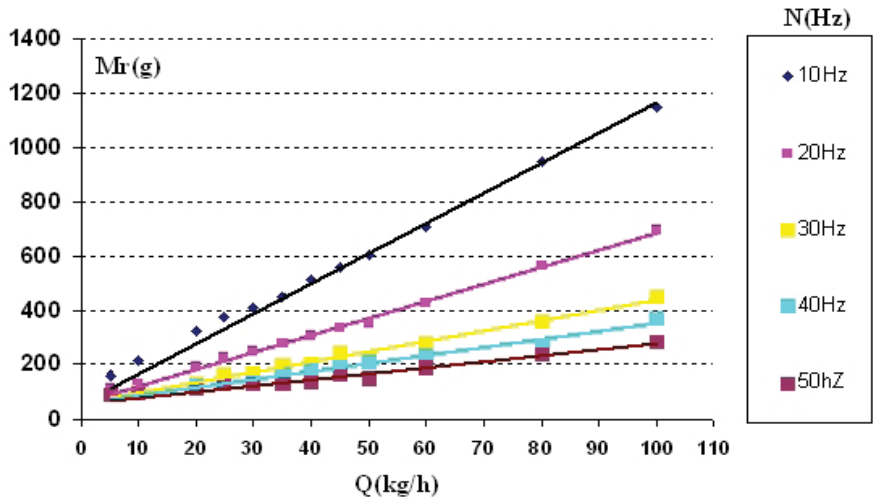


FIGURE 3.13 – Relation reliant la masse retenue en régime permanent et les variables Q et N

Dans la corrélation 3.17, le paramètre b1 peut être considéré comme indépendant de la vitesse d'agitation N. Cependant le deuxième paramètre a_N est inversement proportionnel à cette vitesse N, comme illustré sur la figure 3.14.

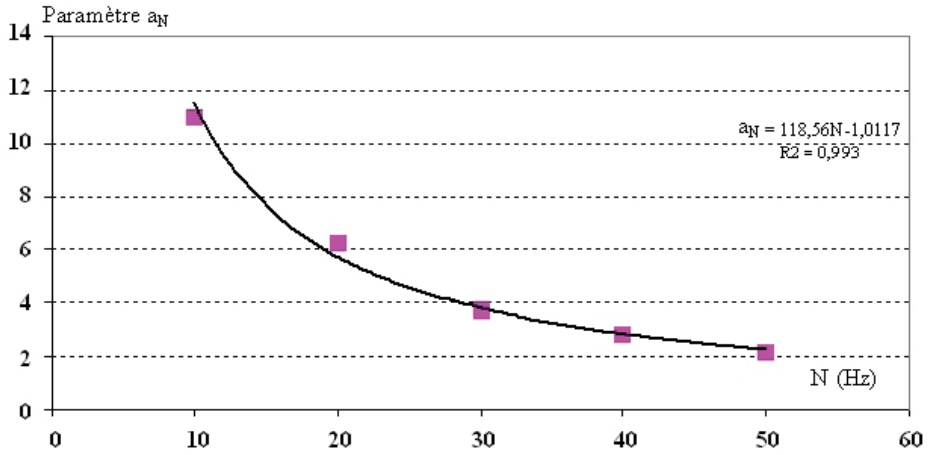


FIGURE 3.14 – Paramètre a_N en fonction de la vitesse N

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

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

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

Masse retenue minimale :

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

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

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

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

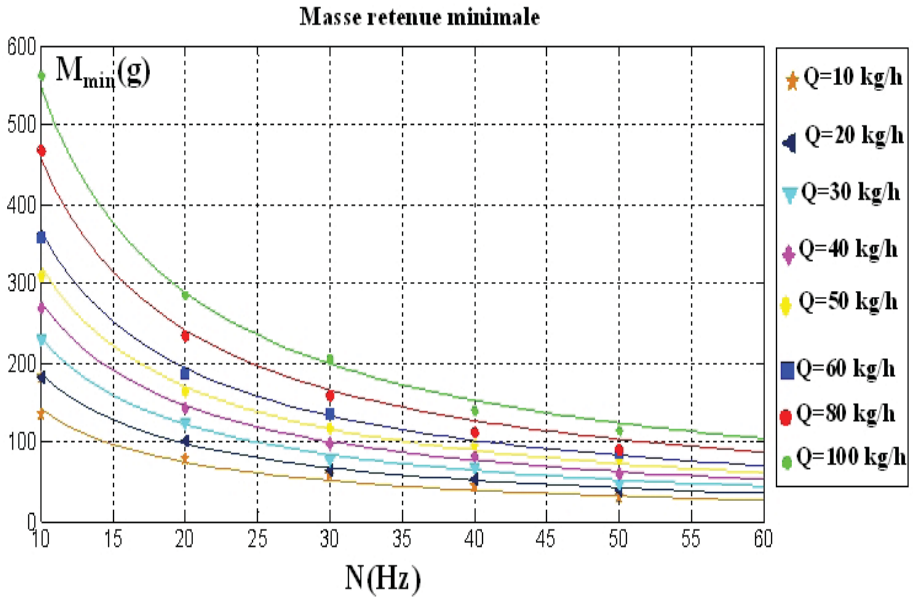


FIGURE 3.15 – Masse retenue minimale en fonction de la vitesse N et du débit Q

3.2.3 Différents régimes d'écoulement

Par analogie au cas de la vidange, nous définissons un paramètre r comme étant le rapport du débit de sortie à la somme de la masse retenue M_1 et de la masse entrante ΔF_1 (durant le temps Δt).

$$r(n) = \frac{Qout(n)}{M_1(n) + \Delta F_1(n)} = \frac{\frac{M_2(n+1) - M_2(n)}{\Delta t}}{M_1(n) + \Delta F_1(n)} \tag{3.20}$$

L'évolution expérimentale de ce rapport r pour différentes conditions opératoires est présentée sur la figure 3.16. Le pas de discrétisation expérimental est Δt = 1.6 s.

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

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

$$r = 0 \quad \Rightarrow Qout = 0 \tag{3.21}$$

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

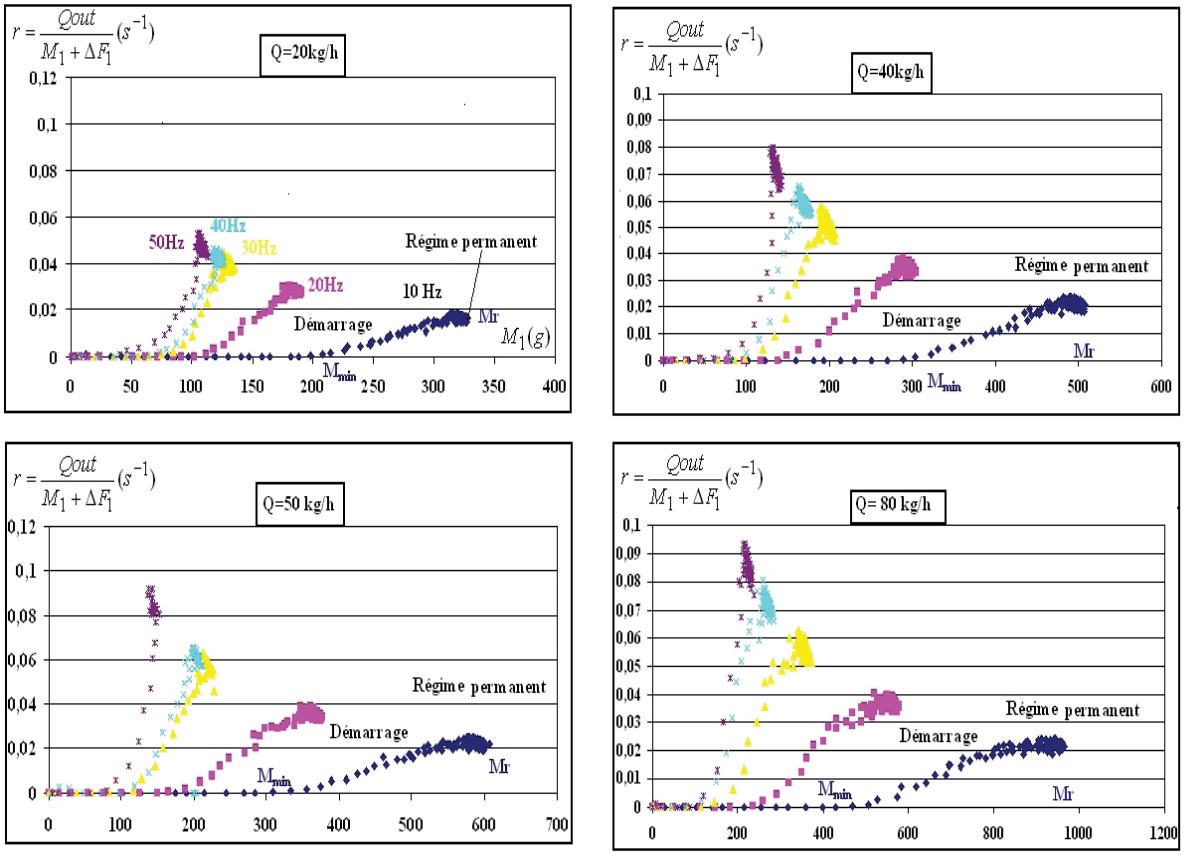


FIGURE 3.16 – Évolution expérimentale du rapport r pendant le démarrage et en régime permanent

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

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

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

- pour $M_1 = Mr$:

$$r = r_{max} = a * (Mr - Mmin) \quad \Rightarrow Qout(n) = a(Mr - M_{min}) * (Mr + \Delta F_1(n)) \tag{3.23}$$

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

Le seul paramètre inconnu dans ces équations empiriques qui permettent de déterminer le débit de sortie en fonction de la masse retenue, est la pente de la droite représentant la phase transitoire située entre M_{min} et Mr, et qui est appelée ici "a".
Pour déterminer ce paramètre, il suffit de connaître les masses retenues limites M_{min} et Mr.

$$a = \frac{r_{max}}{Mr - M_{min}} \tag{3.24}$$

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

$$r_{max} = \frac{Qout}{M_1 + \Delta F_1} = \frac{Q}{Mr + Q * \Delta t} \tag{3.25}$$

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

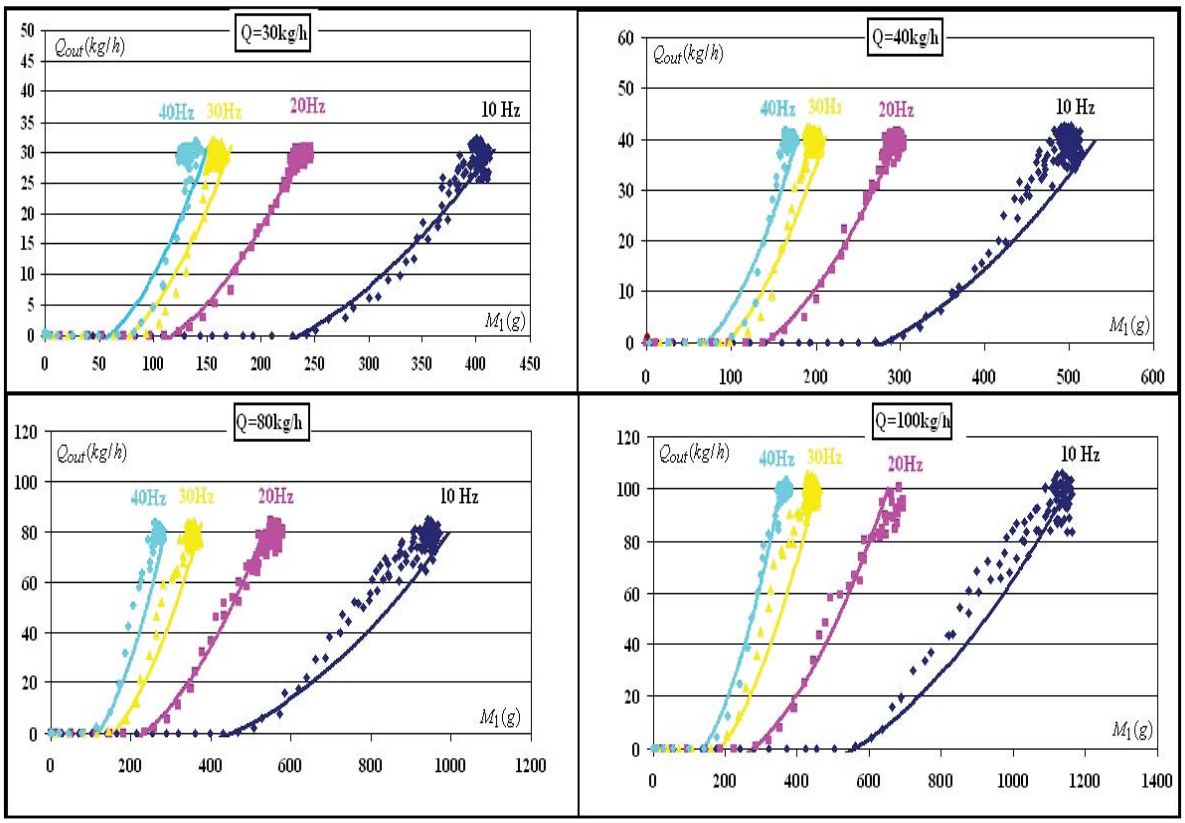


FIGURE 3.17 – évolution de $Qout$ en fonction de M_1

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

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

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

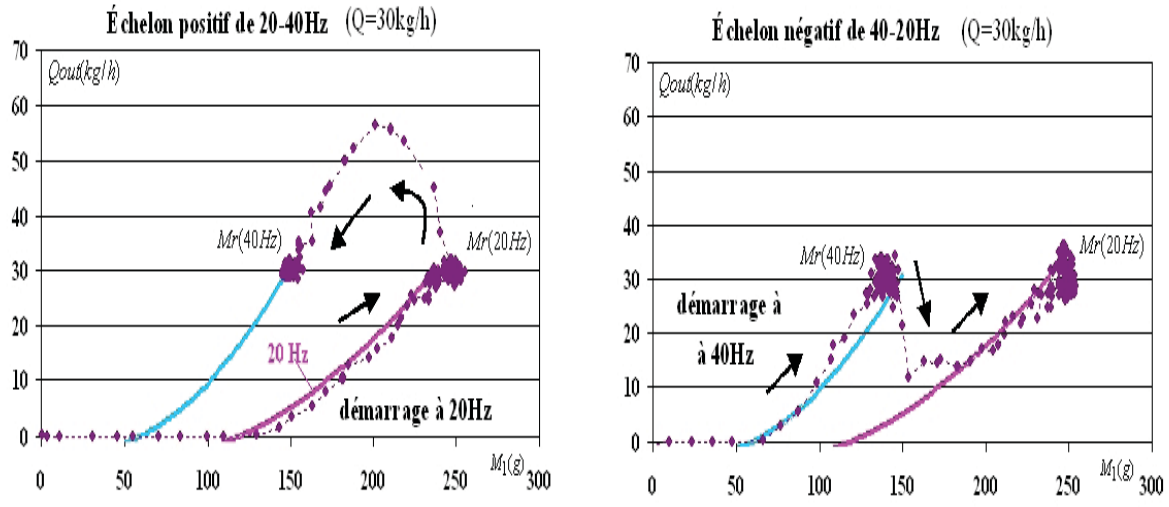


FIGURE 3.18 – Effet d'une brusque variation de N

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

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

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

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

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

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

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

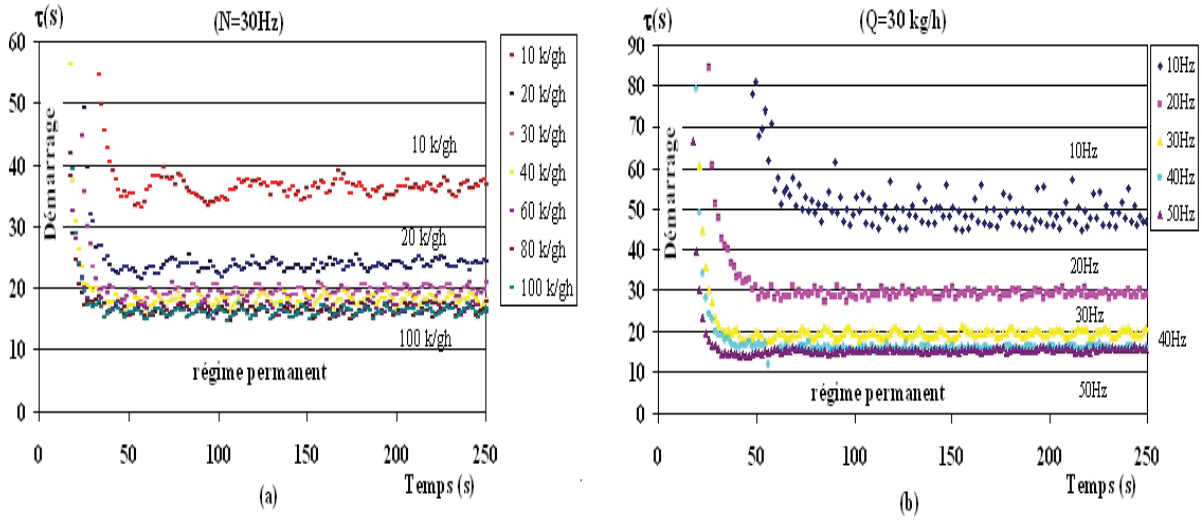


FIGURE 3.19 – Temps de passage pendant le démarrage et en régime permanent, (a) pour différents débits, (b) pour différentes vitesses

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

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

D'après la comparaison entre les deux exemples proposés sur la figure 3.19, nous remarquons que le débit et la vitesse d'agitation ont quasiment le même effet sur le temps de passage en régime permanent. Plus particulièrement, on note que l'utilisation des faibles débits ou des faibles vitesses d'agitation assure un temps de passage élevé. Cependant, en augmentant une de ces deux variables, le temps de passage diminue avec une vitesse de variation décroissante. Puis, à partir d'une certaine valeur du débit ou de la vitesse d'agitation, l'effet de ces deux variables sur le temps de passage devient négligeable.
Ces résultats expérimentaux peuvent également être confirmés par une corrélation empirique. Si nous utilisons l'équation 3.18, le temps de passage peut être exprimé selon l'équation suivante :

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

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

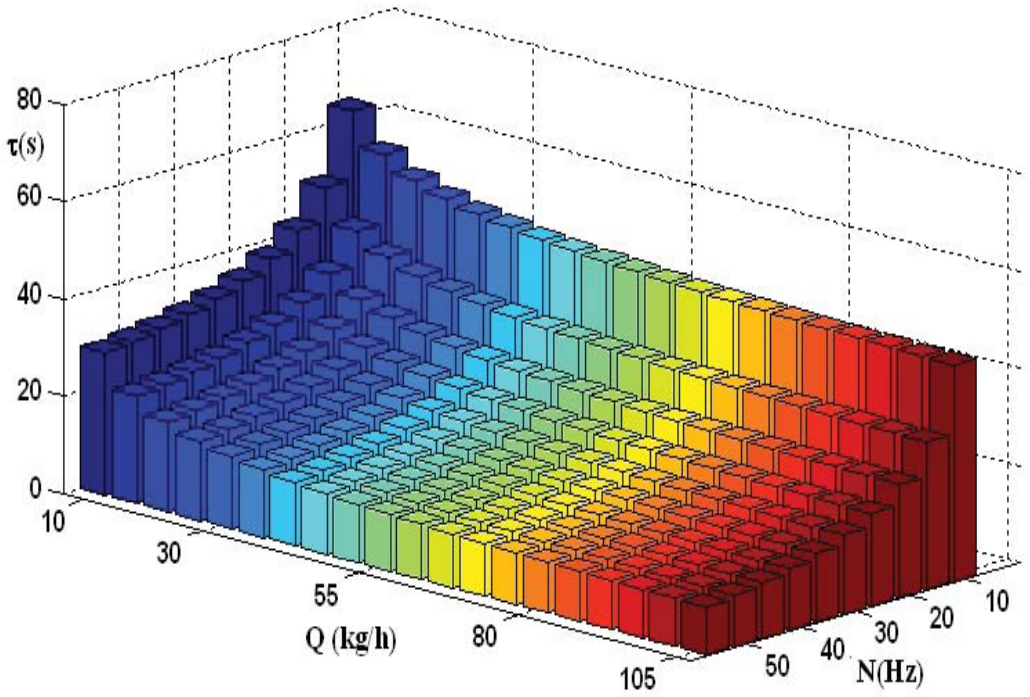


FIGURE 3.20 – Évolution du temps de passage en fonction de Q et de N

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

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

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

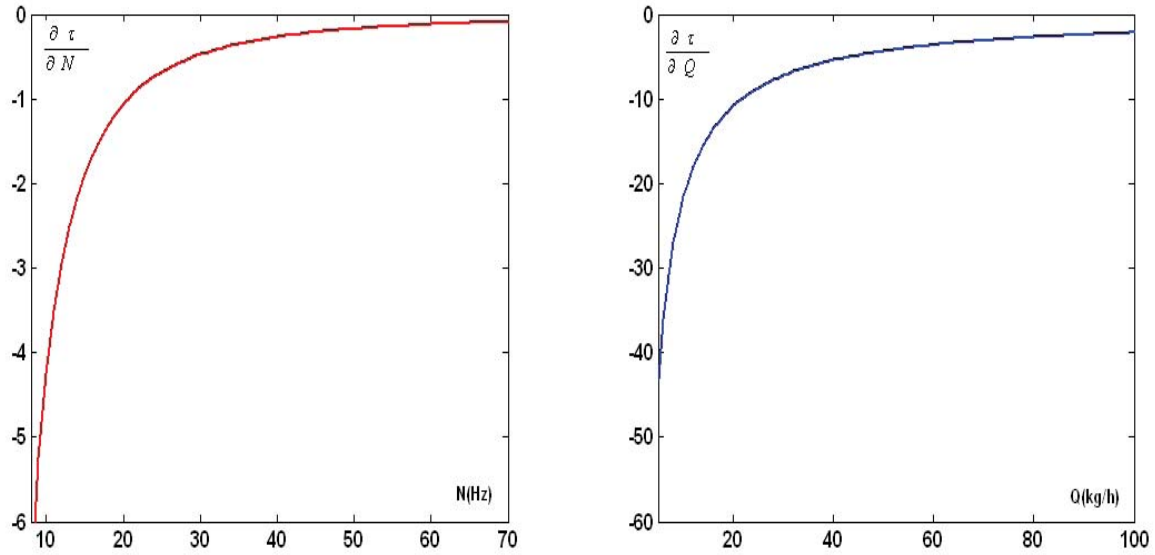


FIGURE 3.21 – Dérivées partielles du temps de passage par rapport aux variables Q et N

3.3 Analyse de l'écoulement à une échelle moindre

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

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

3.3.1 Répartition internes des masses retenues

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

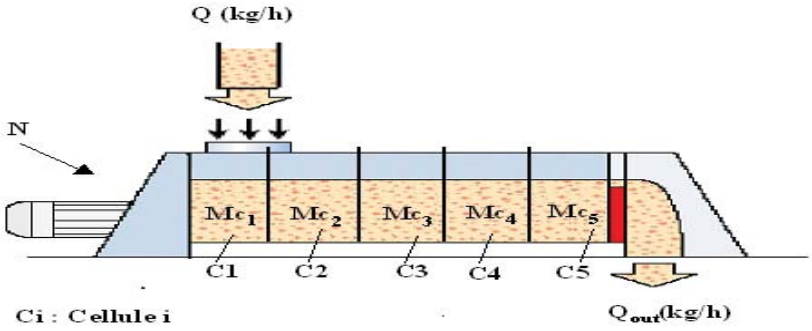


FIGURE 3.22 – Mélangeur divisé en 5 cellules de mêmes volumes

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

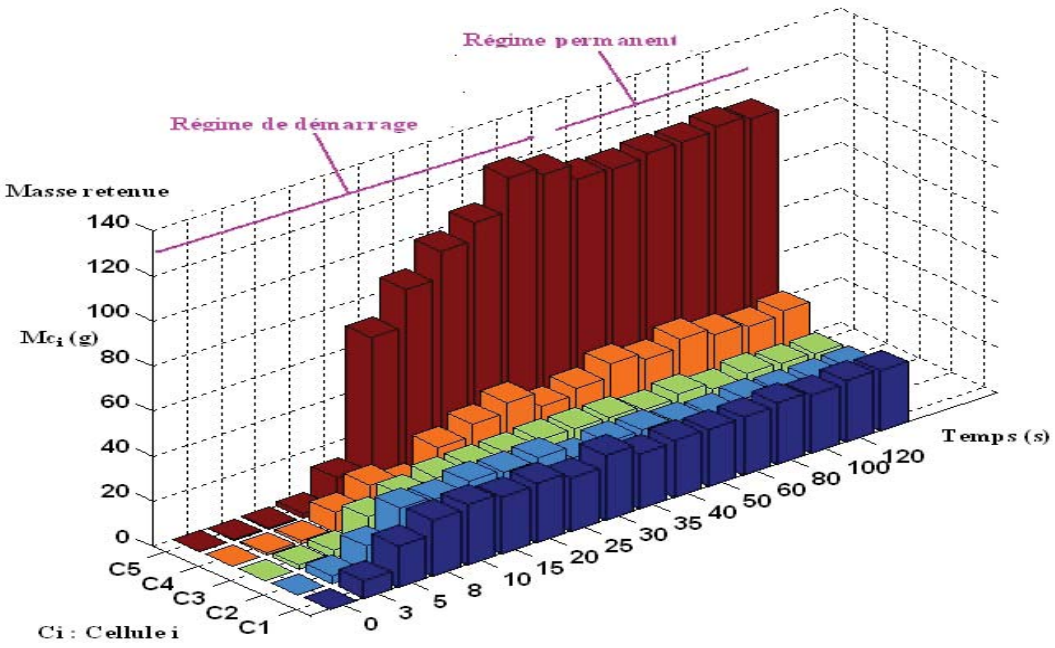


FIGURE 3.23 – Répartition des particules dans le mélangeur ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$; Incertitude : $\pm 50mg$)

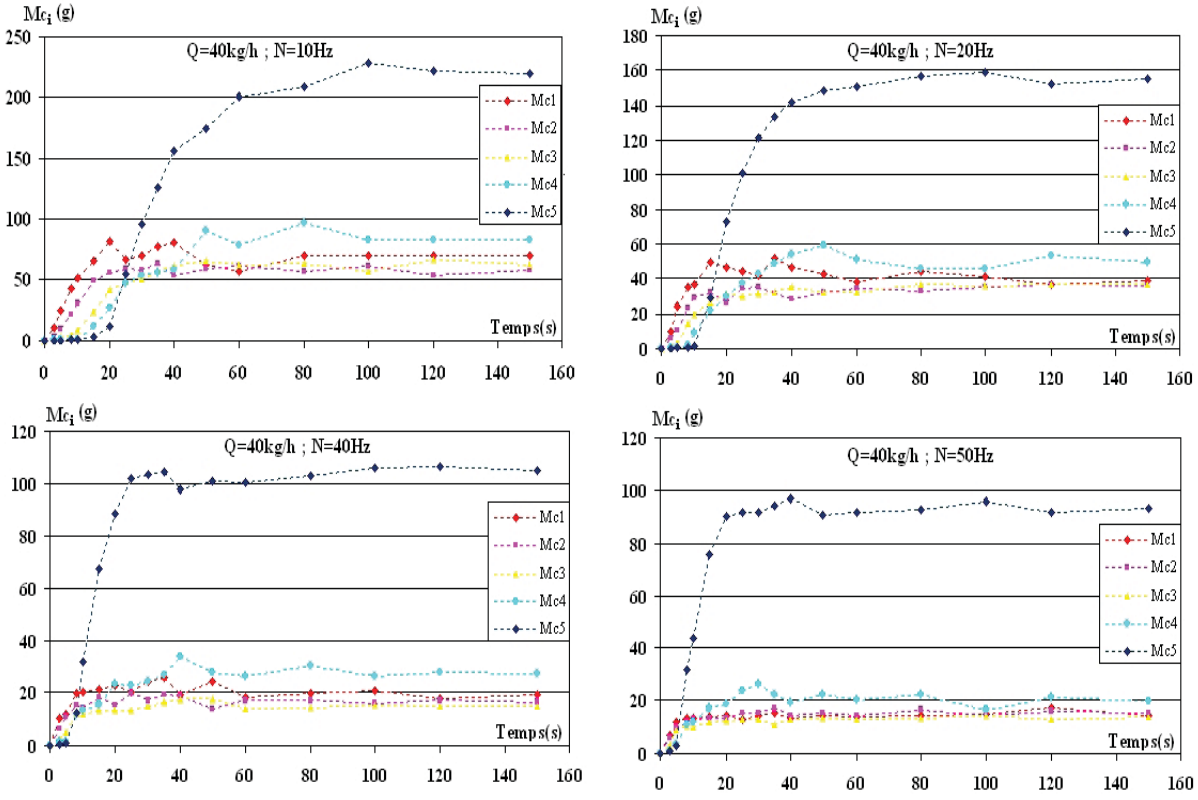


FIGURE 3.24 – Distribution des particules dans le mélangeur pour différentes vitesses N ($Q = 40kg.h^{-1}$; Incertitude : $\pm 50mg$)

3.3.2 Nouvelles corrélations et cohérence des mesures

Dans cette partie nous cherchons à proposer une relation empirique permettant de déterminer les masses retenues en régime permanent dans les 5 cellules du mélangeur. Pour cela, nous présentons sur la figure 3.25, l'évolution expérimentale de ces masses retenues pour différentes vitesses d'agitation et pour un débit d'alimentation de 40 kg/h. La masse retenue en régime permanent dans une cellule i est appelé Mr_i.
Comme il est indiqué sur la figure 3.25, les résultats expérimentaux sont corrélés avec une équation empirique similaire à celle qui a été utilisée précédemment pour déterminer la masse retenue totale dans le mélangeur entier (Mr) (équation 3.18).

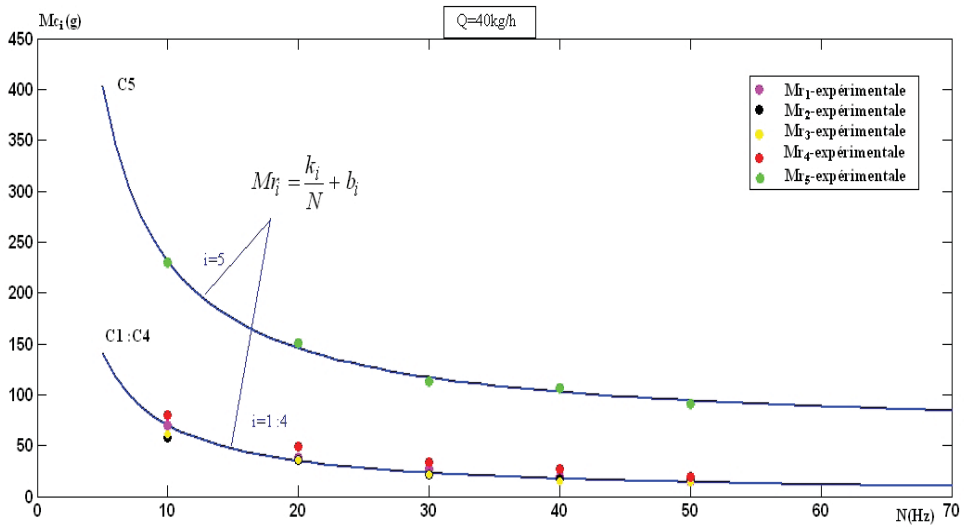


FIGURE 3.25 – Masses retenues dans les différentes cellules en régime permanent

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

$$i = 1:4 \qquad Mr_i = \frac{k_i}{N} \tag{3.28}$$

avec $k_i(g/s) = 703 \pm 40$ (intervalle de confiance à 95%) et $b_i = 0$ (pour Q=40kg/h).
Pour la cellule 5, nous considérons :

$$Mr_5 = \frac{k_5}{N} + b_5 \tag{3.29}$$

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

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

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

$$Mr = \sum_{i=1}^{5}(Mc_i) = \frac{4 * k_1 + k_5}{N} + b_5 \tag{3.30}$$

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

$$Mr = \frac{a1 * Q}{N} + b1 = \sum_{i=1}^{5}(Mc_i) = \frac{4 * k_1 + k_5}{N} + b_5$$

Sachant que $b_5 = b1 = 60g$, il suffit alors de comparer les deux membres de l'équation 3.31, comme illustré sur la figure 3.26.

$$a1 * \frac{Q}{N} = \frac{4 * k_1 + k_5}{N} \tag{3.31}$$

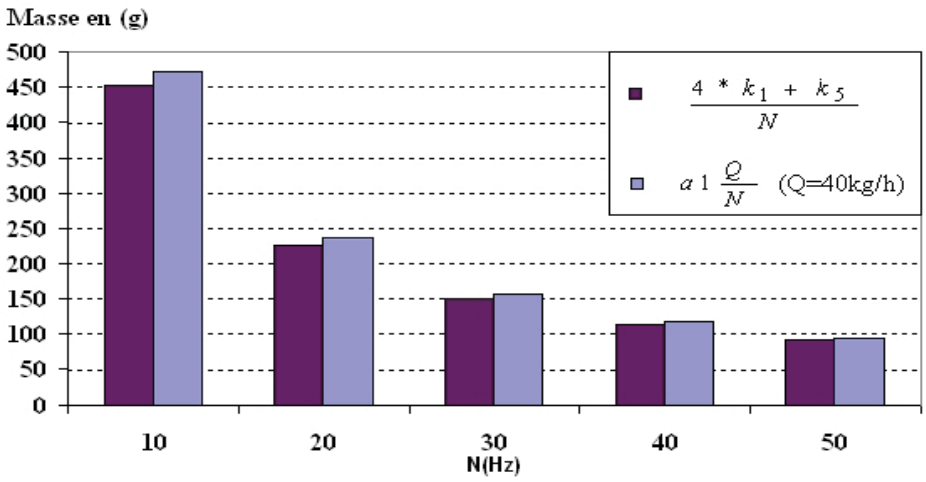


FIGURE 3.26 – Comparaison entres équations : 3.18 et 3.30

3.3.3 Détermination des débits internes

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

$$Qout_i(t) * \Delta t = \sum_{j=i+1}^{6} Mc_j(t + \Delta t) - \sum_{j=i+1}^{6} Mc_j(t)$$

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

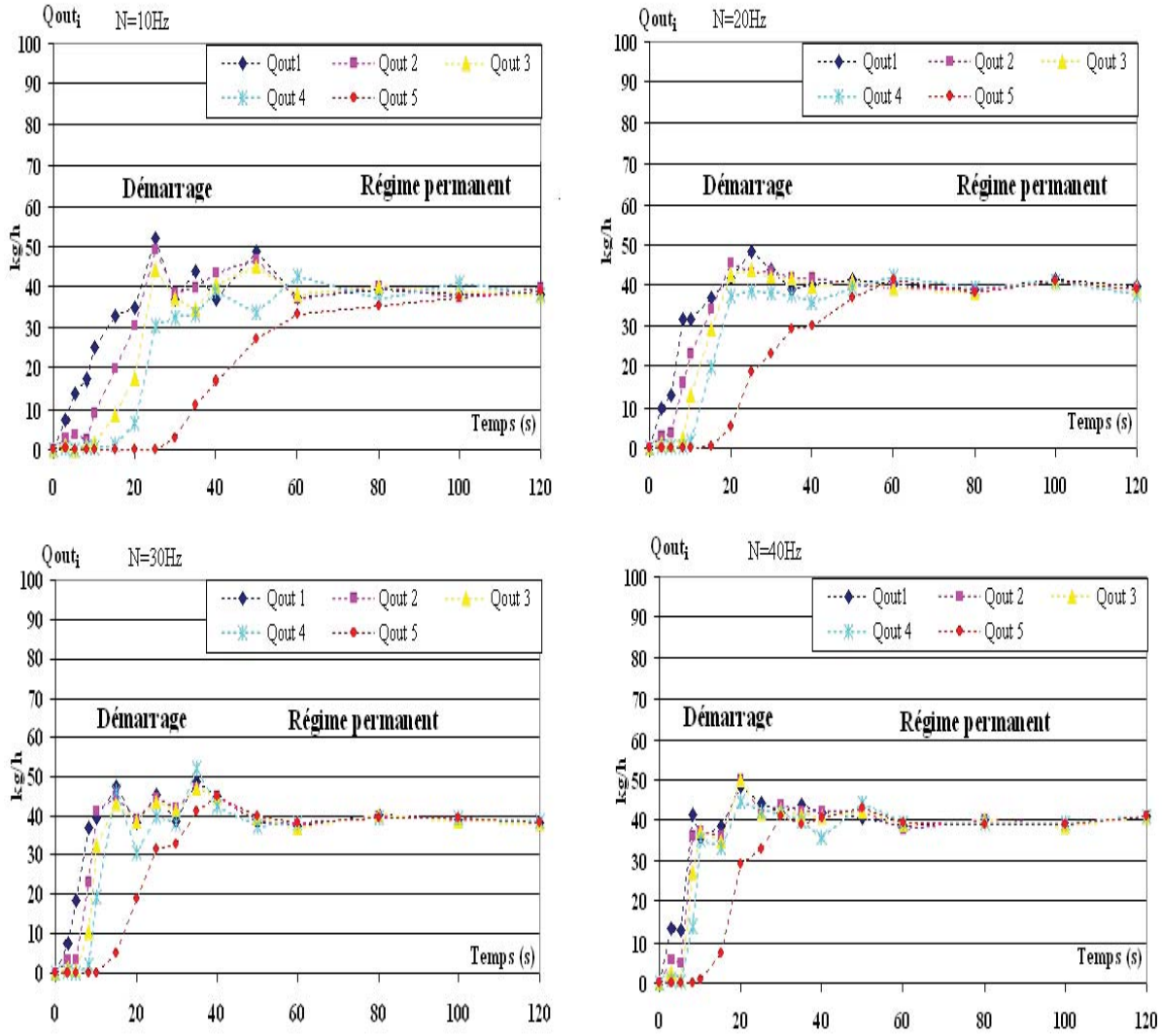


FIGURE 3.27 – Débits internes $Qout_i$ $(i = 1:5)$

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

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

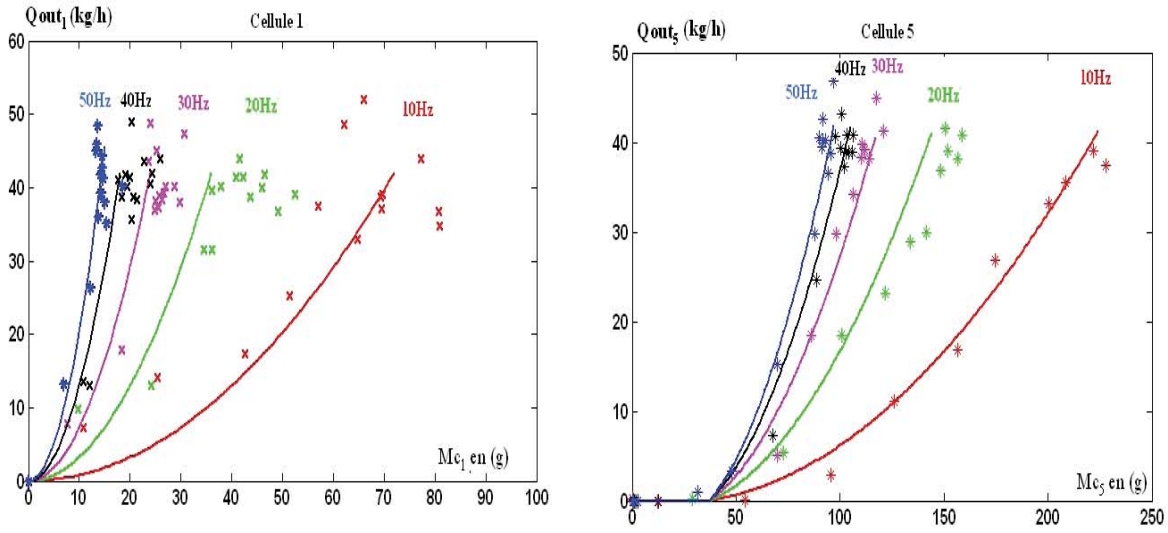


FIGURE 3.28 – Débits internes $Qout_i$ en fonction des masses retenues Mc_i

D'après l'ensemble des résultats obtenus, nous remarquons que pour les quatre premières cellules il n'existe pas de masse minimale nécessaire pour que les particules avancent à la cellule suivante. Seule la dernière cellule (5ème) nécessite une masse minimale d'environ 40g pour qu'elle commence à débiter à $Qout_5$.

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

$$Qout(n) = a * Mc_i^2 + b * Mc_i + c \tag{3.32}$$

(a, b et c sont des constantes).
Cette expression proposée pour corréler les débits internes sera développée d'avantage dans la partie (3.5.2).

Conclusion

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

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

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

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

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

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

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

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

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

4

Modélisation du procédé par une approche Markovienne

Introduction

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la modélisation de la dynamique de l'écoulement des poudres, dans le pilote de mélange en continu "Gericke GCM 500", lors des différentes phases transitoires étudiées auparavant (démarrage, vidange, changement de conditions opératoires...). En particulier, deux approches de modélisation markovienne seront développées dans le but de modéliser l'effet de l'agitation sur l'écoulement des particules, et ce à un niveau macroscopique "boite noire", puis mésoscopique "boite grise". L'objectif est de trouver un cadre de modélisation dans lequel les résultats précédents vont pouvoir être inclus, et de le généraliser par la suite pour qu'il soit utilisable dans le cas de l'écoulement d'un mélange.

4.1 Développement d'un modèle "Macroscopique"

L'approche de modélisation Markovienne consiste à prédire l'évolution dans l'espace et/ou le temps d'une propriété donnée du système, telle que la taille, le nombre ou la masse des particules. L'état de ce système est observé à des intervalles de temps réguliers, avec un pas de discrétisation suffisamment petit. Dans cette approche, il est habituel de décomposer le système étudié en plusieurs cellules entre lesquelles les particules peuvent transiter et la propriété observée peut changer. Dans cette première partie, le procédé de mélange en continu est représenté avec une approche simplifiée en utilisant uniquement deux cellules,

comme le montre la figure 4.1. La première représente le mélangeur en entier : le niveau de discrétisation est ainsi la totalité de la cuve de mélange. La deuxième cellule correspond à la sortie du mélangeur, elle est appelée état absorbant. Aucune transition n'est possible depuis cette deuxième cellule, la probabilité que les particules restent dans l'état absorbant est ainsi $P_{22} = 1$.

Après chaque transition, les particules peuvent se déplacer de la cellule 1 vers la cellule 2. Ainsi, la propriété observée, qui est dans notre cas la masse des particules dans chaque cellule, est modifiée. La matrice des probabilités de transition entre les cellules est appelée P. C'est une matrice carrée d'ordre 2. Chaque élément P_{ij} de cette matrice représente la probabilité d'une particule de se déplacer de la cellule j vers la cellule i en une transition.

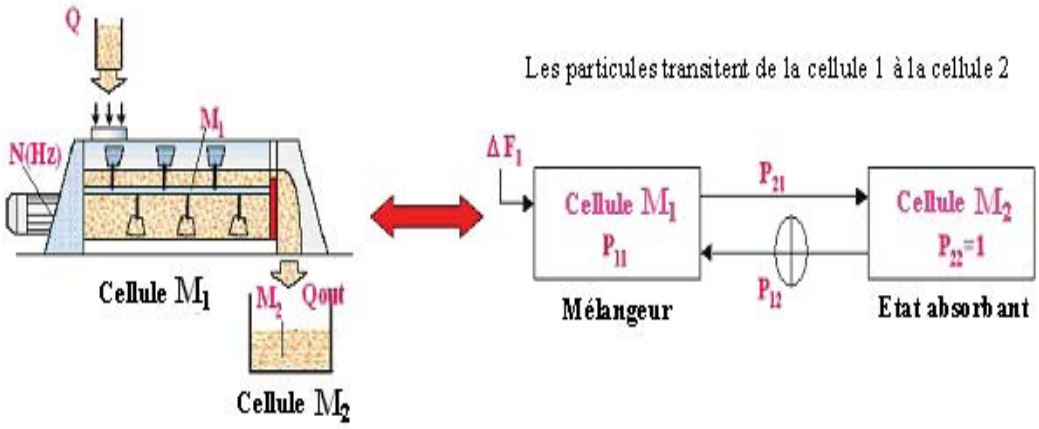


FIGURE 4.1 – Mélangeur continu représenté avec deux cellules de chaîne de Markov

Notons $\Delta F_1(n)$, la masse de particules introduites dans le mélangeur pour la transition n. Soit $M_1(n)$ la masse de particules dans le mélangeur (ou dans la cellule1) et $M_2(n)$ celle collectée en sortie du mélangeur (l'état absorbant). Le procédé peut être représenté par une équation matricielle écrite sous la forme suivante :

$$\begin{pmatrix} M_1(n+1) \\ M_2(n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{1,1(n)} & 0 \\ P_{2,1}(n) & 1 \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} M_1(n) + \Delta F_1(n) \\ M_2(n) \end{pmatrix} \tag{4.1}$$

Cette simple représentation peut être utilisée pour décrire aussi bien la vidange que le démarrage ou le régime permanent. Pour cela, il suffit de connaitre l'état initial du système et d'identifier la matrice des probabilités de transition $P(n)$, à chaque transition n, dans ces deux cas de figure.

4.1.1 Application du modèle en vidange de mélangeur

4.1.1.1 Détermination des probabilités de transition

La vidange du mélangeur peut être considérée comme un mode de fonctionnement semi-batch. Initialement, le mélangeur est rempli par une masse connue $M_1(t=0) = M_{initiale}$. Quant à l'état absorbant, il est initialement vide $M_2(t=0) = 0$.
Au démarrage de l'agitation, les particules commencent à sortir avec un débit décroissant. Sachant que le mélangeur n'est pas alimenté pendant cette phase ($\Delta F_1(n) = 0$) , l'équation représentant ce procédé (équation 4.1) peut être simplifiée par l'équation 4.2 :

$$\begin{pmatrix} M_1(n+1) \\ M_2(n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1-P_{2,1}(n) & 0 \\ P_{2,1}(n) & 1 \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} M_1(n) \\ M_2(n) \end{pmatrix} \tag{4.2}$$

La connaissance de l'état initial de ce système et de la matrice des probabilités de transition, ou de leur évolution dans le temps dans le cas d'une chaîne non-homogène, permet de prédire l'état du système à n'importe quel instant par des multiplications successives.
Le paramètre inconnu a priori est ainsi la probabilité P_{21}, qui s'exprime par :

$$P_{21}(n) = \frac{M_2(n+1) - M_2(n)}{M_1(n)} = \frac{(M_1(t=0) - M_1(n+1)) - (M_1(t=0) - M_1(n))}{M_1(n)} \tag{4.3}$$

Cette probabilité de transition de la cellule 1 vers la cellule 2 peut être déterminée expérimentalement. Pour cela, il suffit de mesurer l'évolution de la masse des particules M_1 au cours du temps, puis de calculer cette probabilité par l'équation 4.3.

La figure 4.2 montre un exemple de résultats obtenus. Dans cet exemple, la probabilité de transition P_{21} est représentée en fonction de la masse retenue dans le mélangeur (M_1). Ces résultats ont été obtenus pour différentes vitesses d'agitation (entre 10 et 50Hz) et un pas de discrétisation de 1,6 s.

D'après l'ensemble des résultats, nous pouvons dire que la masse initiale n'a pas d'influence sur l'évolution de la probabilité de transition. Ce résultat n'est pas surprenant puisque nous avons vu précédemment (chapitre 3) que la masse initiale n'a pas d'influence sur l'évolution du débit de la vidange.

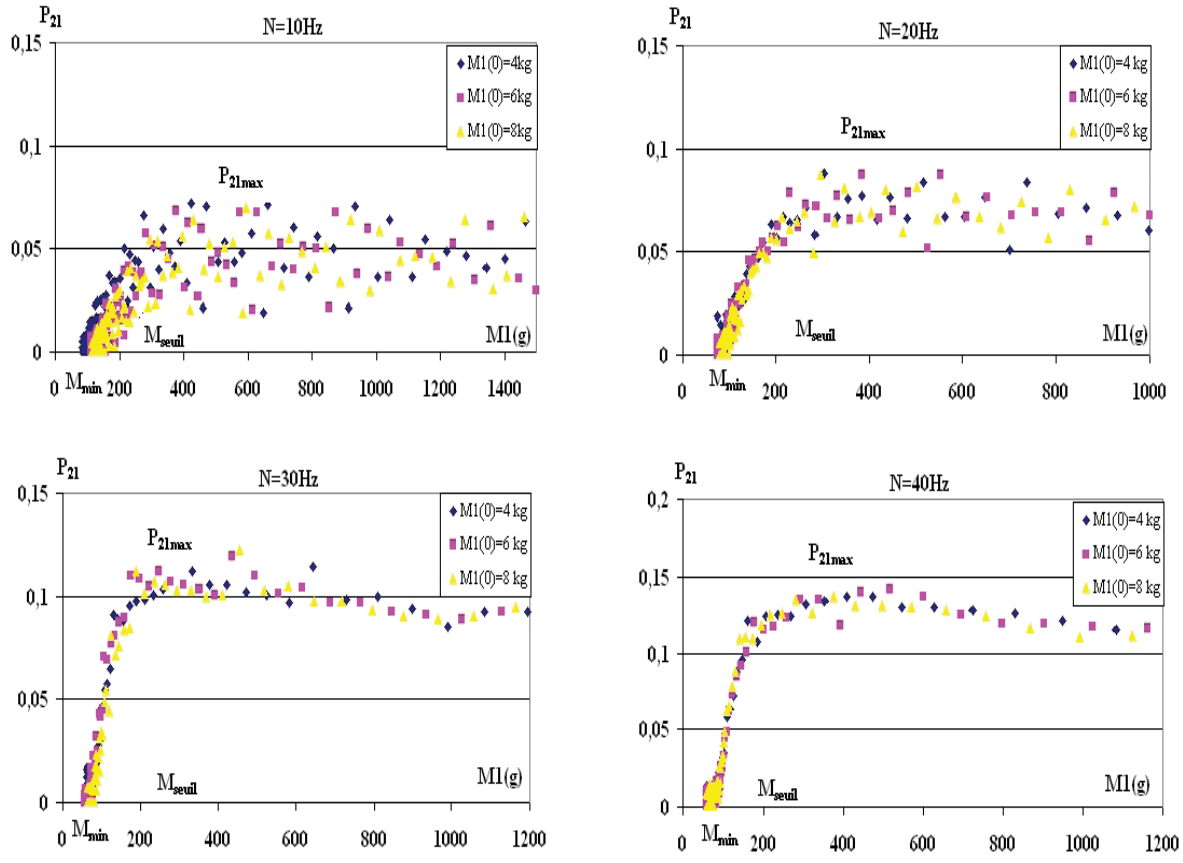


FIGURE 4.2 – Évolution expérimentale de M_1 et P_{21} pendant la vidange

En examinant ces résultats, nous remarquons que selon la valeur de la masse retenue dans le mélangeur, nous distinguons trois régimes de probabilités de transition correspondant aux différents régimes d'écoulement qui ont été définis précédemment (partie 3.1.2).
En effet, tant que la masse retenue est supérieure à la masse seuil M_{seuil}, la probabilité de transition P_{21} reste constante. De même, en dessous de la masse minimale M_{min} cette probabilité est nulle. Entre ces deux masses limites (M_{min}) et (M_{seuil}) la probabilité P_{21} varie linéairement avec la masse retenue. Ainsi, nous écrivons :

$$pour \;\; M_1 \geq M_{seuil} : \quad P_{21} = P_{21max} \tag{4.4}$$

$$pour \;\; M_1 \leq M_{min} : \quad P_{21} = 0 \tag{4.5}$$

$$pour \;\; M_{min} \leq M_1 \leq M_{seuil} : \quad P_{21}(n) = a_v(M_1(n) - M_{min}) \tag{4.6}$$

Quand la masse retenue est supérieure à la masse seuil, la probabilité P_{21} reste constante. Ceci signifie que la matrice des probabilités de transition ne dépend pas de l'état du système

$M = (M_1, M_2)$. Dans ce cas, la chaîne de Markov est homogène, et l'évolution de ce système est décrite par l'équation suivante :

$$\begin{pmatrix} M_1(n) \\ M_2(n) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 - P_{2,1max} & 0 \\ P_{2,1max} & 1 \end{pmatrix}^n * \begin{pmatrix} M_1(1) \\ M_2(1) \end{pmatrix} \tag{4.7}$$

Dans ce régime, et selon cette représentation Markovienne, le débit de sortie à l'instant $n * \Delta t$ s'écrit sous la forme :

$$Qout(n) * \Delta t = P_{21max}(n) * M_1(n) \tag{4.8}$$

En utilisant les équations 3.7 et 3.12, il est possible de déterminer P_{21max}. En effet, pour $M_1(n) > M_{seuil}$ nous pouvons écrire :

$$Qout(n) = r_{max} * M_1(n) = kv_3 * N * M_1(n) = \frac{P_{21max}}{\Delta t} * M_1(n) \tag{4.9}$$

Ainsi, on déduit :

$$P_{21max} = kv_3 * N * \Delta t \tag{4.10}$$

En revanche, lorsque la masse retenue M_1 est comprise entre la masse seuil et la masse minimale, la probabilité de transition peut être décrite par une relation linéaire, comme le montre l'équation 4.6. Dans le cas de ce régime, la probabilité de transition P_{21} dépend de l'état de la cellule 1 (M_1). A la différence du cas précédent, la chaîne de Markov est ici une chaîne non homogène (non linéaire), car il existe une dépendance entre la matrice des probabilités de transition et l'état du système $M = (M_1, M_2)$.

Plus particulièrement, à l'instant n, la probabilité de transition $P_{21}(n)$ dépend de la masse retenue à cet instant $M_1(n)$ et de deux paramètres empiriques M_{min} et a_v. Sachant que M_{min} a été reliée empiriquement à la vitesse d'agitation N selon l'équation 3.11 : ($M_{min} = kv_2 * N^{-0.5}$) ; il reste à déterminer le paramètre a_v. Pour cela, nous allons d'abord exprimer le débit de sortie en fonction de ce paramètre en écrivant :

$$Qout(n) = \frac{a_v}{\Delta t} * M_1(n) * (M_1(n) - M_{min}) \tag{4.11}$$

Puis, en comparant cette équation avec celle obtenue auparavant (3.13) nous pouvons déterminer la valeur de a_v : ($Qout(n) = kv_1 * N * M_1(n) * (M_1(n) - M_{min})$).

On déduit alors que $a_v = k_1 * N * \Delta t$. Ainsi, la probabilité que les particules quittent le mélangeur à un instant n peut être décrite par l'expression suivante :

$$P_{21}(n) = kv_1 * N * \Delta t * (M_1(n) - M_{min}) = kv_1 * N * \Delta t * (M_1(n) - \frac{kv_2}{N}) \tag{4.12}$$

Finalement dans ce régime non linéaire, on retient que la vitesse de vidange dépend de la masse retenue M_1 et de la vitesse de rotation N.

4.1.1.2 Réponse du modèle à un échelon de vitesse d'agitation N

Comme la vitesse d'agitation est le principal paramètre du procédé de mélange, nous avons voulu étudier son effet sur la dynamique du système à travers des simulations comparées aux résultats expérimentaux.

La démarche expérimentale consiste à appliquer un échelon (positif ou négatif) sur la vitesse d'agitation pour mettre en évidence son effet sur l'évolution de la masse retenue et le débit de la vidange. En terme de simulation, ces deux paramètres sont calculées par l'utilisation de la chaîne de Markov. En particulier, à chaque transition n, la matrice des probabilité de transition P(n) est déterminée par les les équations empiriques 4.10 et 4.12. Ensuite, les futures masses retenues et absorbantes ($M_1(n+1)$ et $M_2(n+1)$) sont calculées par l'équation 4.2 :

$$\begin{pmatrix} M_1(n+1) \\ M_2(n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1-P_{2,1}(n) & 0 \\ P_{2,1}(n) & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} M_1(n) \\ M_2(n) \end{pmatrix}$$

Après chaque transition n, la masse retenue $M_1(n)$ et de masse absorbante $M_2(n)$ sont calculées par ce modèle. Ainsi, le débit de sortie à cet instant ($Qout(n)$) peut être calculé par la variation de la masse des particules dans l'état absorbant entre deux transitions successives :

$$Qout(n) = \frac{M_2(n) - M_2(n-1)}{\Delta t} \tag{4.13}$$

Avec $t = n * \Delta t$

Deux exemples de comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux issus des simulations sont illustrés sur les figures 4.3 et 4.4. Dans ces deux exemples, la vitesse d'agitation a été brusquement changée pendant la vidange. Ceci nous a permis d'examiner si le modèle était capable de prédire l'évolution dynamique du procédé pendant ces phases transitoires.

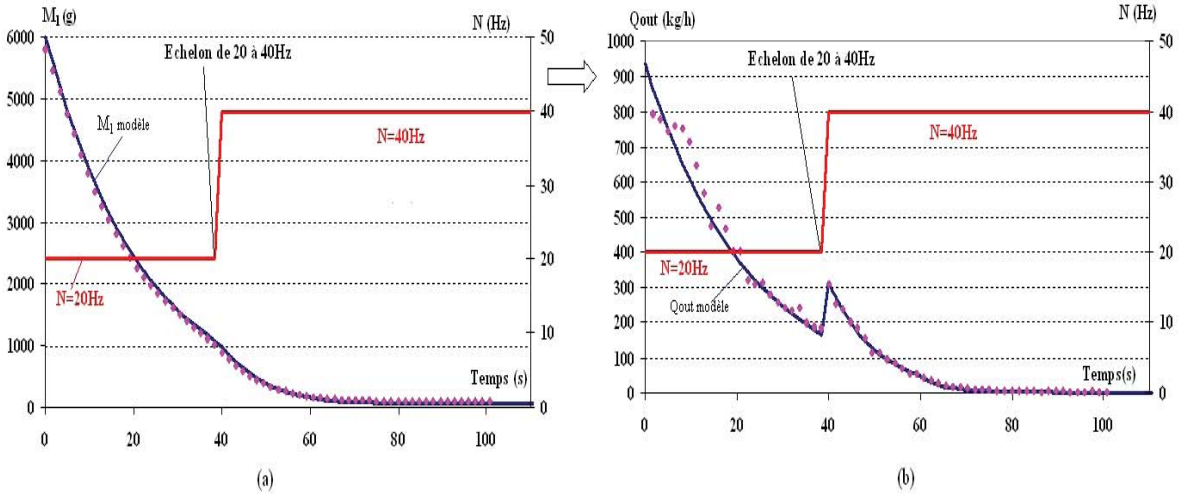


FIGURE 4.3 – Confrontation modèle-expérience lors d'un échelon de 20 à 40Hz à t=40s :(a) masse retenue ; (b) débit de vidange

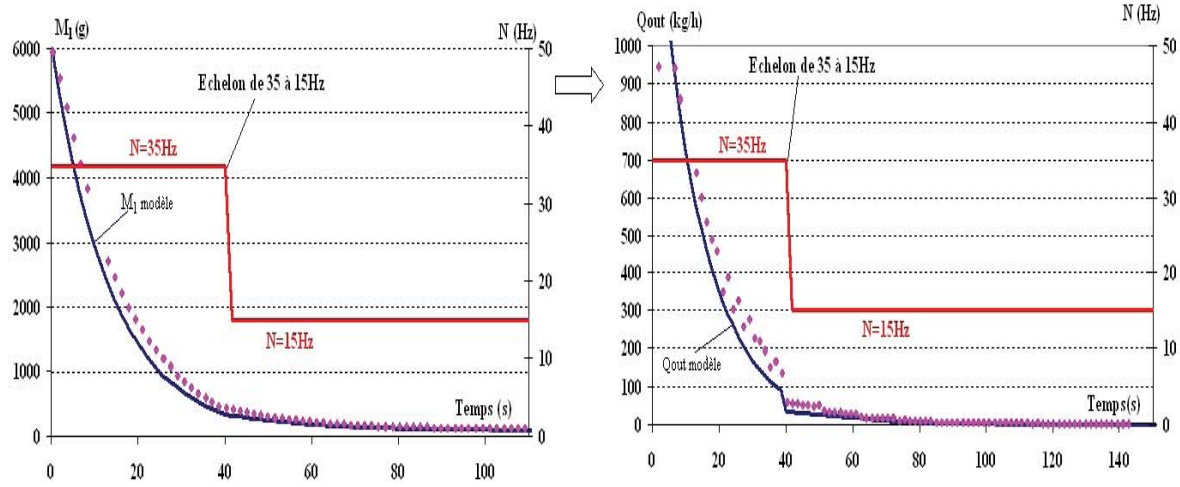


FIGURE 4.4 – Confrontation modèle-expérience lors d'un échelon de 35 à 15Hz à t=40s : (a) masse retenue ; (b) débit de vidange

Ces exemples illustrent les évolutions expérimentale et théorique de la masse retenue et du débit de sortie pendant la vidange, avant et après l'application d'un échelon sur la vitesse d'agitation N. Rappelons que le modèle n'est pas ajusté aux valeurs expérimentales, même s'il est issu des expériences.

Dans le premier exemple de la figure 4.3, la vidange a commencé avec une vitesse d'agitation de 20Hz. Après 40s, cette vitesse a été changée de 20 à 40 Hz, ce qui a entrainé une augmentation instantanée du débit de sortie sous forme d'un pic. Immédiatement après, ce

débit de sortie a repris son allure décroissante qui est devenue régie par la nouvelle vitesse d'agitation (40Hz). Le deuxième exemple proposé sur la figure 4.4 consiste à appliquer un échelon négatif sur la vitesse N de 35 à 15 Hz. Il permet à son tour de confirmer la validité du modèle développé et sa capacité à décrire l'évolution du système même après une variation brusque d'un paramètre opératoire tel que la vitesse d'agitation N.

Par ailleurs, il faut préciser que la probabilité de transition (d'une particule du mélangeur vers la sortie) utilisée dans ces simulations est calculée à partir des équations (4.5, 4.10 et 4.12). La comparaison entre les évolutions expérimentale et empirique de cette probabilité est illustrée sur la figure 4.5 .

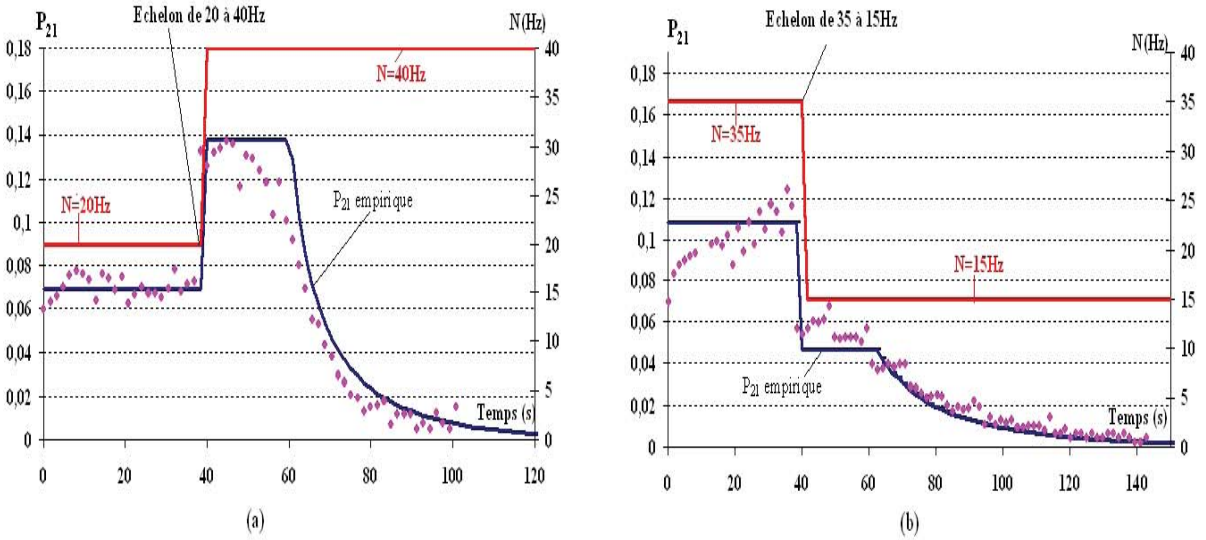


FIGURE 4.5 – Comparaison entre l'évolution expérimentale et empirique de la probabilité P_{21} pendant la vidange ; (a) échelon positif 20-40Hz ; (b) cas d'un échelon négatif 35-15 Hz

Finalement, si nous analysons l'évolution du débit de sortie en fonction de la masse retenue, par exemple sur l'expérience de la figure 4.6, nous pouvons différencier trois phases dépendant de N et M_1 :

-Initialement, la vitesse N est fixée à 20 Hz. Dans ce cas, la masse retenue dans le mélangeur est supérieure à la masse seuil , la valeur de P_{21} est constante ($P_{21max} = 0.07$), et le débit de sortie varie linéairement avec M_1 selon l'équation 4.9.

-La deuxième phase commence quand la vitesse d'agitation est changée de 20 à 40 Hz, (à $t = 40s$). La valeur de P_{21} augmente immédiatement de 0.07 à 0.14, puis elle reste constante

tant que la masse retenue est supérieure à la masse seuil correspondant à la nouvelle vitesse d'agitation.

-Une fois que la masse retenue (M_1) atteint la masse seuil , la probabilité devient une fonction linéaire de cette masse retenue. Par conséquent, le débit de sortie varie avec M_1 selon une fonction polynomiale du second ordre (équation 4.11).

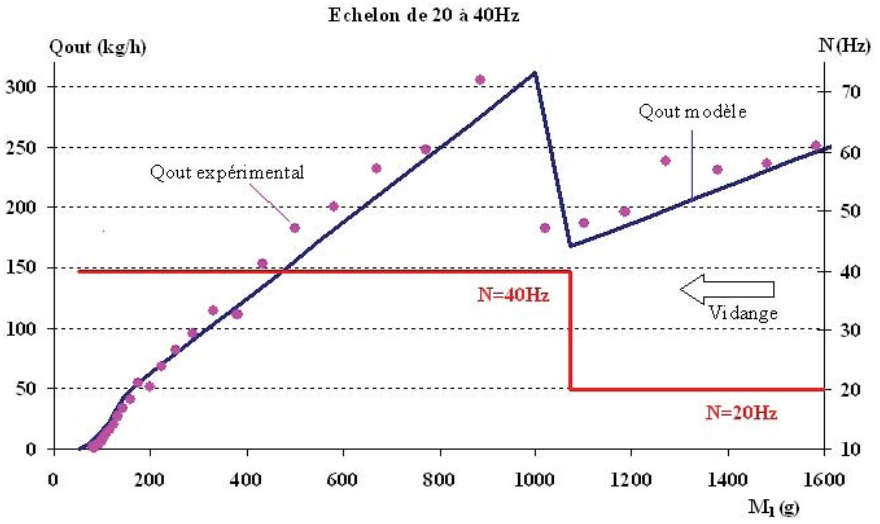


FIGURE 4.6 – Relation débit de sortie- masse retenue lors d'un échelon appliqué sur N

Les résultats obtenus dans le deuxième exemple « échelon négatif », confirment également la validité des relations proposées pour identifier la matrice des probabilités de transition à partir de la vitesse d'agitation N. La dynamique macroscopique de la vidange du mélangeur est complètement régie par cette vitesse et le modèle macroscopique fournit un cadre de représentation adéquat.

4.1.2 Application du modèle lors du démarrage du procédé et en régime permanent

4.1.2.1 Détermination des probabilités de transition

Lors du démarrage du procédé, le mélangeur est initialement vide $M_1(t=0)=0$. En mesurant, à chaque instant t, la masse introduite dans le mélangeur ($\Delta F1(t)$) et celle sortante ($M_2(t)$), nous pouvons déterminer la masse retenue $M_1(t)$. Ainsi, l'évolution de la probabilité de transition $P_{21}(t)$ au cours du temps peut être déterminée à partir de l'équation 4.1 :

$$P_{21}(n)=\frac{M_2(n+1)-M_2(n)}{M_1(n)+\Delta F_1(n)} \tag{4.14}$$

La figure 4.7 montre quelques exemples de résultats obtenus pour l'évolution de la probabilité P_{21} pendant la phase de démarrage du pilote et en régime permanent, ceci pour différents débits d'alimentation et différentes vitesses d'agitation.

D'après ces résultats, nous remarquons que la probabilité de transition atteint sa valeur maximale (appelée P_{21max}) en régime permanent. Malgré les fluctuations caractérisant cette probabilité, nous considérons que la valeur moyenne est constante en régime permanent. Nous rappelons ici que ces fluctuations sont dues principalement aux fluctuations des débits d'entrée et de sortie qui sont mesurés à faible pas d'échantillonnage ($\Delta t = 1,6s$).

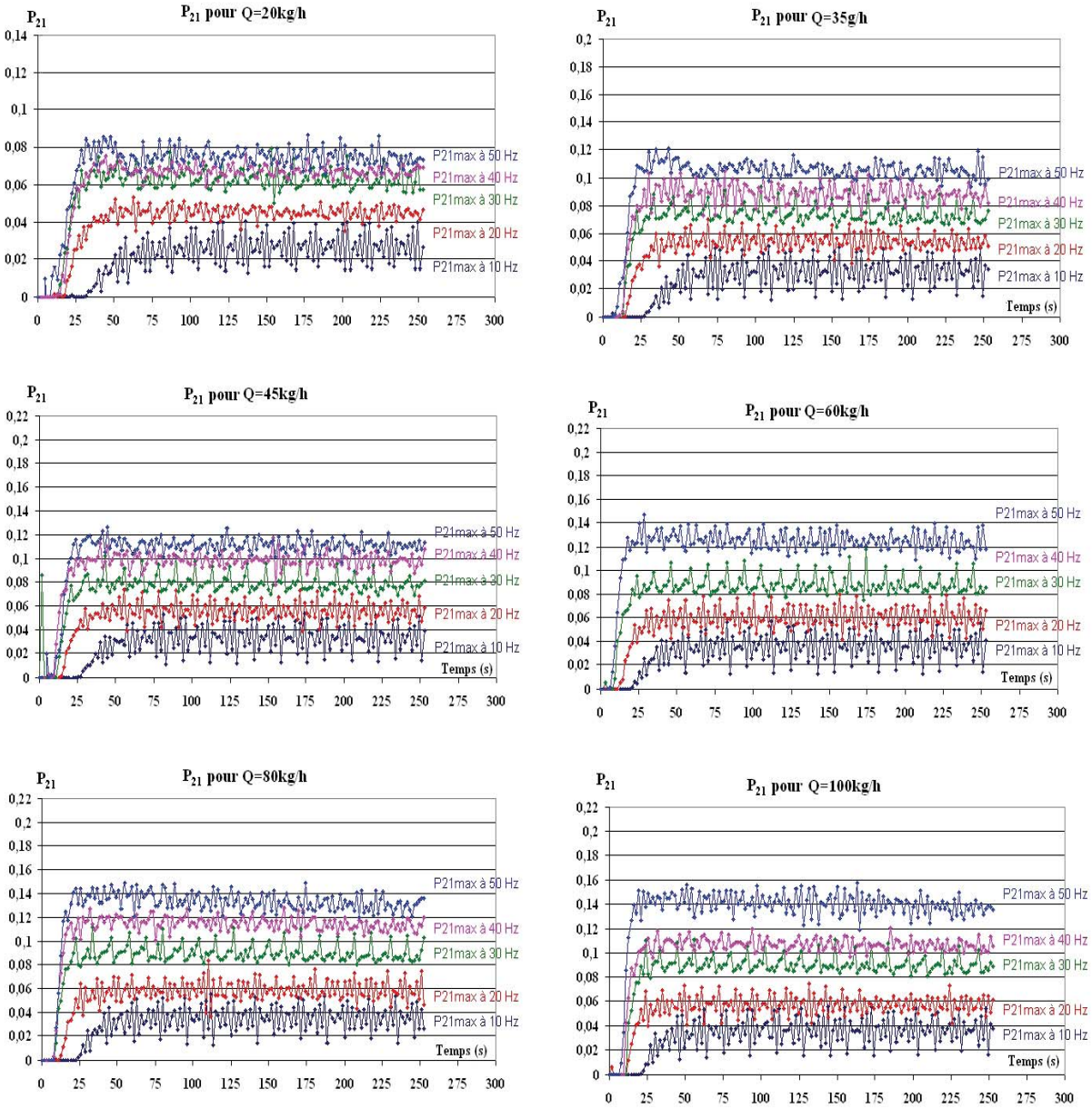


FIGURE 4.7 – Évolution de la probabilité de transition P_{21}, cas de démarrage du procédé et sa mise en régime permanent

En régime permanent, la probabilité P_{21max} peut être également estimée d'une façon empirique si la vitesse d'agitation N et le débit utilisé sont connus. Ainsi, nous écrivons :

$$P_{21max} = \frac{M_2(n+1) - M_2(n)}{Mr(n) + \Delta F_1(n)} \tag{4.15}$$

Rappelons que la masse retenue en régime permanent Mr peut être calculée par l'équation 3.18. Dans ce cas, l'équation précédente devient :

$$P_{21max} = \frac{Q * \Delta t}{a1 * \frac{Q}{N} + b1 + Q * \Delta t} \tag{4.16}$$

Une comparaison entre la probabilité P_{21max} calculée empiriquement par l'équation 4.16 et celle obtenue expérimentalement par l'équation 4.14 est proposée sur la figure 4.8. Elle permet de nous conforter dans la démarche et les valeurs trouvées.

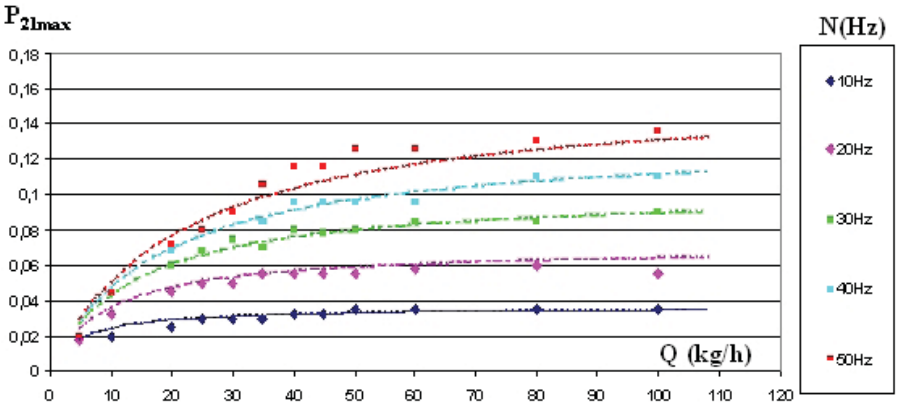


FIGURE 4.8 – Probabilité P_{21max} calculé par l'équation 4.16

Afin de déterminer une relation entre la matrice de transition $P = \begin{pmatrix} 1-P_{2,1} & 0 \\ P_{2,1} & 1 \end{pmatrix}$ et l'état du système $\begin{pmatrix} M_1 & M_2 \end{pmatrix}$, nous présentons sur la figure 4.9 l'évolution de la probabilité P_{21} en fonction de la masse retenue M_1 . Comme dans le cas de la vidange, les résultats obtenus ici permettent de distinguer trois régimes de probabilités qui correspondent aux différents régimes d'écoulements observés. En particulier, nous remarquons que lorsque la masse retenue est inférieure à la masse minimale M_{min}, il n'y a pas d'écoulement en dehors du mélangeur :

$$pour \;\; M_1 < M_{min} : \qquad P_{21} = 0 \tag{4.17}$$

Une fois que la masse retenue M_1 a atteint la masse minimale, la probabilité P_{21} augmente linéairement jusqu'à ce qu'elle atteigne sa valeur maximale P_{21max}. Dans cette phase transitoire de démarrage du pilote, la chaîne de Markov est non homogène car il existe une

dépendance entre la matrice de transition et l'état du système $M_1(n)$:

$$pour \;\; M_{min} < M_1 < Mr : \qquad P_{21}(n) = \frac{P_{21max}}{Mr - M_{min}} * (M_1(n) - M_{min}) \tag{4.18}$$

En revanche, lorsque le régime permanent est atteint, nous supposerons l'homogénéité de la chaîne de Markov correspondante malgré l'existence des fluctuations de P_{21max}. Ainsi :

$$pour \;\; M_1 = Mr : \qquad P_{21}(n) = P_{21max} \tag{4.19}$$

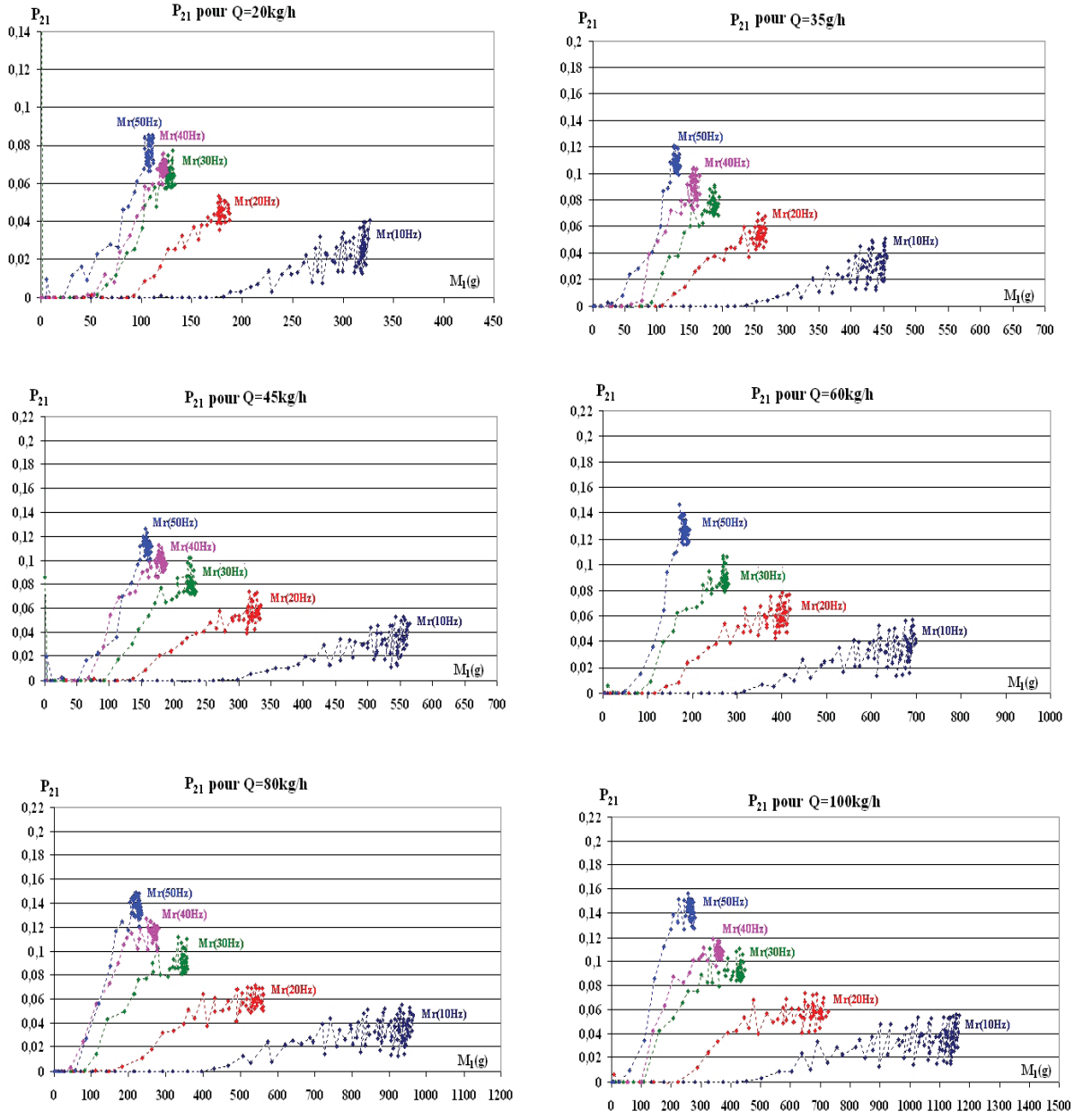


FIGURE 4.9 – Évolution de P_{21} avec M_1 pour différentes conditions de Q et de N

4.1.2.2 Réponse du modèle à un échelon de vitesse N et de débit Q

Nous cherchons dans cette partie à savoir si le modèle développé est capable de prédire l'évolution du système lors d'un changement des conditions opératoires, comme par exemple dans le cas d'une variation de débit de dosage Q ou bien de vitesse de rotation du mobile d'agitation N. Ceci a fait l'objet d'une confrontation modèle – expérience pour plusieurs cas de figure dans la gamme de fonctionnement du pilote (un débit de 5 à 100 kg/h et une vitesse de 10 à 50Hz).

En particulier, connaissant l'état « actuel » du système $M_1(n)$, la vitesse de rotation N et le débit d'alimentation Q, il est possible de calculer empiriquement la probabilité de transition $P_{21}(n)$ par les équations (4.17, 4.18 et 4.19). Le futur état du système $(M_1(n+1), M_2(n+1))$ peut alors être déterminé selon la chaîne de Markov (équation 4.1) :

$$\begin{pmatrix} M_1(n+1) \\ M_2(n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1-P_{2,1}(n) & 0 \\ P_{2,1}(n) & 1 \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} M_1(n)+\Delta F_1(n) \\ M_2(n) \end{pmatrix}$$

Les figures 4.10 et 4.11 montrent deux exemples de résultats obtenus, le premier concerne un changement de vitesse d'agitation N de 50 à 20 Hz, alors que le deuxième concerne un changement de débit Q de 60 à 30 kg/h. Manifestement le modèle markovien décrit d'une façon très convenable l'évolution dynamique du procédé en régime transitoire dans ces cas précis.

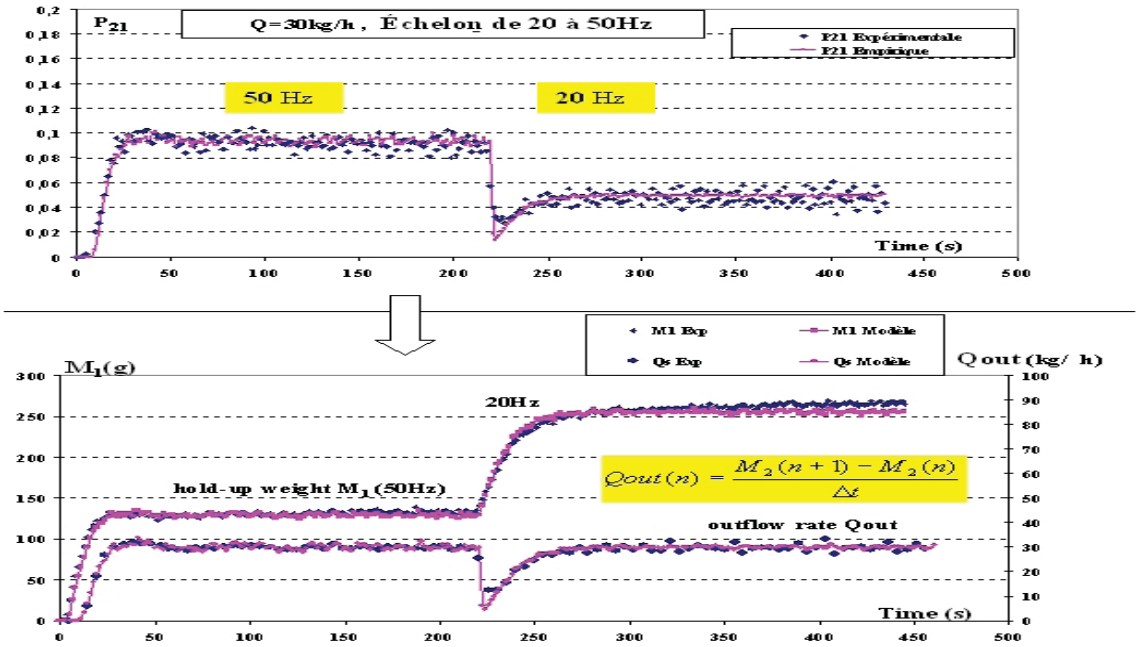


FIGURE 4.10 – Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de vitesse N de 20 à 50Hz à t=220s (Q=30 $kg.h^{-1}$)

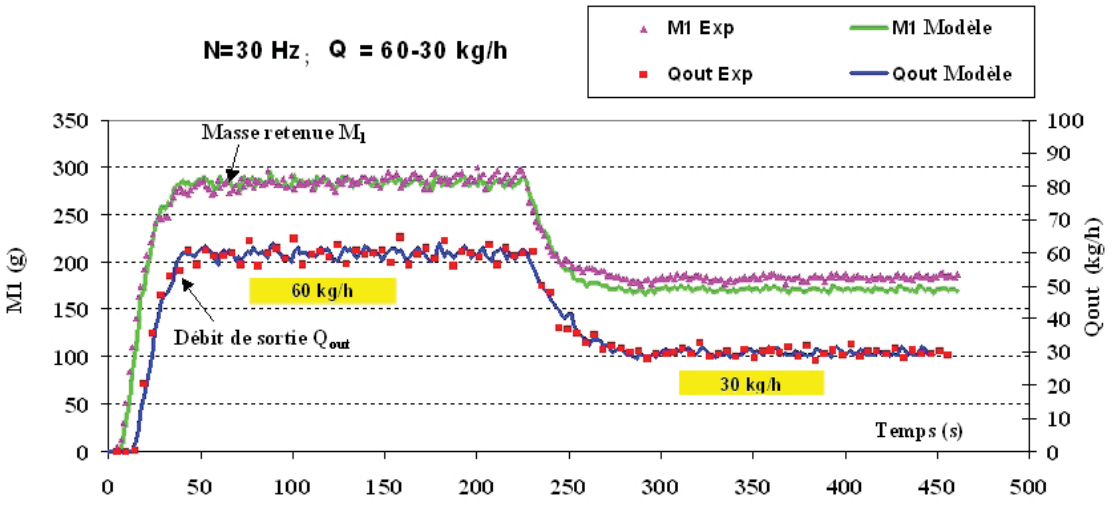


FIGURE 4.11 – Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de débit Q de 60 à 30 $kg.h^{-1}$ (N=30Hz)

La validation de ce modèle à été réalisée sur une gamme de débit allant 10 et 100 kg/h, et pour des vitesses d'agitation comprises entre 10 et 60Hz. Plusieurs autres exemples de comparaison entre le modèle et l'expérience sont présentés en annexe 6.

Finalement, grâce aux relations empiriques obtenues, reliant les différents paramètres opératoires à la matrice des probabilités de transition, le modèle markovien présenté donne un cadre macroscopique pour décrire certains aspects dynamique du procédé. Il décrit parfaitement l'évolution de la masse retenue dans le mélangeur et celle du débit de sortie durant la phase de démarrage du procédé, en régime permanent et également lors du régime transitoire résultant d'un changement brusque des conditions opératoires.
Lorsque la masse retenue dans le mélangeur atteint une valeur seuil, le régime permanent s'établit selon une chaîne de Markov homogène. Tant que cette masse retenue est inférieure à la masse seuil, le régime reste transitoire et décrit par une chaîne de Markov non linéaire. Cependant, ce modèle ne permet pas encore de décrire l'évolution de l'état interne du système. En particulier , la distribution spatiale et temporelle des particules dans le mélangeur et l'évolution des débits intermédiaires internes ne sont pas prédites par cette simple représentation. Pour résoudre cette problématique, il ne suffit pas d'observer le système à des intervalle de temps réguliers, il faut aussi prendre en compte l'évolution de la propriété observée, qui est ici la masse des particules, dans l'espace. La discrétisation du mélangeur en plusieurs cellules, pour former une représentation mésoscopique de celui-ci, devient nécessaire.

4.2 Modélisation mésoscopique

Dans cette partie nous développons une structure générale d'un modèle Markovien mésoscopique qui sera utilisé dans la suite de ce chapitre pour modéliser l'écoulement dans le pilote du mélange Gericke GCM500.
L'objectif ici est de montrer, par des simulations numériques, comment une chaîne de Markov peut être utilisée pour décrire le procédé de mélange continu quel que soit le régime.

4.2.1 Principe et structure du modèle

Le principe du modèle Markovien consiste à décomposer le volume du mélangeur en un nombre fini de cellules entre lesquelles les particules peuvent transiter. Ces cellules sont reliées entre elles par des débits internes qui représentent la circulation des poudres dans le sens du transport d'une cellule i vers la cellule i+1 (appelés $Q_{i+1,i}$), et la recirculation dans le sens inverse d'une cellule i vers la cellule précédente i-1 ($Q_{i-1,i}$).
Le schéma de la figure 4.12 représente un mélangeur continu découpé en n cellules. Pour une transition de durée Δt, chaque cellule correspond à trois probabilités de transition possibles : une probabilité que les particules restent dans cette cellule, une probabilité que les particules avancent (dans le sens de l'écoulement principal) vers la cellule suivante et une probabilité que les particules reculent vers la cellule précédente. Notons $P_{i,j}$ la probabilité d'une particule de se déplacer de la cellule j vers la cellule i .

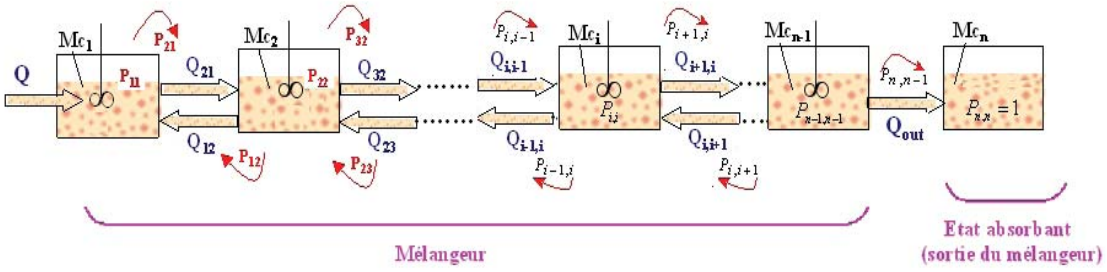


FIGURE 4.12 – Schéma de principe du modèle Markovien appliqué à un mélangeur continu

Cette représentation Markovienne suppose que le mélangeur est un réseau constitué de n cellules actives plus un état absorbant qui représente la sortie du système, et depuis lequel aucune transition n'est possible. Si nous supposons que la propriété suivie par la chaîne de Markov est la masse des particules dans chaque cellule i à l'instant t (appelée $Mc_i(t)$), et que

la transition ne peut avoir lieu que d'une cellule aux cellules adjacentes, alors l'écoulement peut être décrit par le système matricielle suivant :

$$Mc(k+1) = P(k) * [Mc(k) + \Delta F_1(k)] \tag{4.20}$$

$$\begin{pmatrix} Mc_1(k+1) \\ Mc_2(k+1) \\ Mc_3(k+1) \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ Mc_{n-1}(k+1) \\ Mc_n(k+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{1,1} & P_{1,2} & 0 & \dots & 0 & \dots & 0 & 0 \\ P_{2,1} & P_{2,2} & P_{2,3}0 & \dots & 0 & \dots & 0 & 0 \\ 0 & P_{3,2} & P_{3,3} & \dots & 0 & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{4,3} & \dots & 0 & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \dots & P_{i-1,i} & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \dots & P_{i,i} & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \dots & P_{i+1,i} & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \dots & 0 & \dots & P_{n-2,n-1} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \dots & 0 & \dots & P_{n-1,n-1} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \dots & 0 & \dots & P_{n,n-1} & P_{n,n} \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} Mc_1(k) + \Delta F_1(k) \\ Mc_2(k) \\ Mc_3(k) \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ Mc_{n-1}(k) \\ Mc_n(k) \end{pmatrix}$$

$\Delta F_1(k)$ est la masse des particules introduites dans le mélangeur (cellule 1) entre l'instant $(k-1) * \Delta t$ et l'instant $(k * \Delta t)$.

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

$$\sum_{j=1}^{j=n} P_{j,i} = 1 \tag{4.21}$$

Si nous considérons que la matrice des probabilités des transitions ne change pas au cours du temps, la chaîne est dite homogène. Dans ce cas, l'état du système après k transitions peut être calculé avec l'expression suivante :

$$Mc(k+1) = (P^k * Mc_1(1)) + \sum_{i=1}^{k} P^i * \Delta F_1(k+1-i) \tag{4.22}$$

avec $\Delta F_1(k) = Q(k) * \Delta t$

Et si le débit d'alimentation est constant, cette équation 4.22 devient :

$$Mc(k+1) = (P^k * Mc_1(1)) + \Delta F_1 * \sum_{i=1}^{k} P^i \tag{4.23}$$

Par opposition à ce cas homogène, si la matrice de probabilité change avec l'état du système (ou bien avec le temps), la chaîne est considérée non homogène. Ceci est probablement le cas pour les régimes transitoires. La connaissance de l'état du système à l'instant $k * \Delta t$ nécessite alors de résoudre l'équation 4.20 en calculant les états antérieurs du système par itération.

4.2.2 Méthodologie pour la détermination de la matrice des probabilités de transition

Régime transitoire

Dans la représentation Markovienne proposée sur la figure 4.12, nous associons à chaque débit interne $Q_{i,j}$ un paramètre $\alpha_{i,j}$ qui permet de quantifier le taux de circulation dans le sens de l'écoulement (principal) et le taux de re-circulation dans le sens inverse de l'écoulement par rapport au débit d'alimentation ; Ceci en considérant que :

$$Q_{i-1,i} = \alpha_{i-1,i} * Q \qquad et \qquad Q_{i+1,i} = \alpha_{i+1,i} * Q$$

Afin de représenter l'écoulement à l'intérieur du mélangeur continu en prenant en compte le régime transitoire, les coefficients de taux de circulation et de re-circulation ($\alpha_{i-1,i}$ et $\alpha_{i+1,i}$) ne sont pas considérés constants.

Dans ce régime non stationnaire, les probabilités de transition entre les cellules peuvent être reliées aux paramètres de circulation et re-circulation internes. Ainsi, en commençant par la première cellule, le bilan de matière permet d'écrire :

$$P_{1,1} * (Mc_1 + \Delta F_1) + P_{2,1} * (Mc_1 + \Delta F_1) = Mc_1 + \Delta F_1 \tag{4.24}$$

$$(1 - P_{1,1}) * (Mc_1 + \Delta F_1) = P_{2,1} * (Mc_1 + \Delta F_1) \tag{4.25}$$

$$(1 - P_{1,1}) * (Mc_1 + \Delta F_1) = \alpha_{2,1} * Q * \Delta t \tag{4.26}$$

On déduit alors que la probabilité que les particules restent dans l'état 1 est :

$$P_{1,1} = 1 - \frac{\alpha_{2,1} * Q}{(Mc_1 + \Delta F_1)} * \Delta t \tag{4.27}$$

Si nous notons $\mu_1 = \frac{Q}{Mc_1 + \Delta F_1}$, alors les deux probabilités liées à la première cellule sont :

$$P_{1,1} = 1 - \alpha_{2,1} * \mu_1 * \Delta t \tag{4.28}$$

$$P_{2,1} = \alpha_{2,1} * \mu_1 * \Delta t \tag{4.29}$$

Pour les autres cellules comprises entre la cellule 2 et la cellule n-2, après chaque transition la masse des particules sortant d'une cellule donné "i" s'écrit sous la forme suivante :

$$(1 - P_{i,i}) * Mc_i = (\alpha_{i-1,i} + \alpha_{i+1,i}) * Q * \Delta t \tag{4.30}$$

Ainsi, la probabilité que les particules restent dans cette cellule "i" est :

$$P_{i,i} = 1 - \frac{\alpha_{i-1,i} + \alpha_{i+1,i}}{Mc_i} * Q * \Delta t \tag{4.31}$$

De la même façon que précédemment, si nous appelons $\mu_i = \frac{Q}{Mc_i}$, alors les trois probabilités liées à la cellule numéro "i" sont :

$$P_{i,i} = 1 - (\alpha_{i-1,i} + \alpha_{i+1,i}) * \mu_i * \Delta t \tag{4.32}$$

$$P_{i+1,i} = \alpha_{i+1,i} * \mu_i * \Delta t \tag{4.33}$$

$$P_{i-1,i} = \alpha_{i-1,i} * \mu_i * \Delta t \tag{4.34}$$

Ce raisonnement est conservé pour toutes les cellules comprises entre 2 et n-2.
De même que précédemment, on obtient les trois probabilités associées à la cellule n-1 :

$$P_{n-1,n-1} = 1 - (\alpha_{n-2,n-1} + \alpha_{n,n-1}) * \mu_{n-1} * \Delta t \tag{4.35}$$

$$P_{n,n-1} = \alpha_{n,n-1} * \mu_{n-1} * \Delta t \tag{4.36}$$

$$P_{n-2,n-1} = \alpha_{n-2,n-1} * \mu_{n-1} * \Delta t \tag{4.37}$$

Il devient possible de bâtir une matrice de transition P qui contient toutes les transitions possibles régies par les paramètres du modèle $\alpha_{i+1,i}$, $\alpha_{i-1,i}$ et μ_i :

$$P = \begin{pmatrix} 1-\alpha_{2,1}\mu_1\Delta t & \alpha_{1,2}\mu_2\Delta t & \dots & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{2,1}\mu_1\Delta t & 1-(\alpha_{1,2}+\alpha_{3,2})\mu_2\Delta t & \dots & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{3,2}\mu_2\Delta t & \dots & 0 & 0 & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \dots & (\alpha_{n-3,n-2}+\alpha_{n-1,n-2})\mu_{n-2}\Delta t & \alpha_{n-2,n-1}\mu_{n-1}\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & \dots & \alpha_{n-1,n-2}\mu_{n-2}\Delta t & 1-(\alpha_{n-2,n-1}+\alpha_{n,n-1})\mu_{n-1}\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & \dots & 0 & \alpha_{n,n-1}\mu_{n-1}\Delta t & 1 \end{pmatrix} \tag{4.38}$$

A chaque transition k, la matrice P(k) ne peut être calculée que si les paramètres du modèle à cet instant $\alpha_{i+1,i}(k)$, $\alpha_{i-1,i}(k)$ et $\mu_i(k)$ sont connus.

Régime permanent

En régime permanent les coefficients de circulation interne $\alpha_{i+1,i}$ associés aux différentes régions du mélangeur sont les mêmes pour toutes les cellules comprises entre 1 et n-2 :

$$\forall (i,j) \quad \alpha_{i+1,i} = \alpha_{j+1,j} \tag{4.39}$$

Sachant qu'en régime permanent : $Qout = Q_{n,n-1} = Q$, le paramètre associé à la cellule n-1 est égale à 1 :

$$\alpha_{n,n-1} = 1 \tag{4.40}$$

De même, les coefficients de re-circulation $\alpha_{i-1,i}$ sont identiques dans toutes les cellules :

$$\forall(i,j) \quad \alpha_{i-1,i} = \alpha_{j-1,j} \tag{4.41}$$

En régime permanent, nous pouvons aussi définir un paramètre de re-circulation unique pour toutes les cellules appelé R :

$$R = \alpha_{i-1,i}$$

Un bilan de matière sur chaque cellule montre aussi que :

$$pour \quad 1 \leq i \leq n-2 \qquad \alpha_{i+1,i} = 1 + \alpha_{i,i+1} = 1 + R \tag{4.42}$$

Dans ce régime, le deuxième paramètre du modèle μ_i ne dépend pas du temps (t) ($\mu_i = \frac{Q}{Mc_i}$), sa valeur sera appelée $\bar{\mu}_i$:

$$\forall(t) \qquad \mu_i(t) = \bar{\mu}_i$$

Ainsi, la matrice P en régime permanent peut être exprimée en fonction des paramètres R, $\bar{\mu}_i$ et Δt :

$$P = \begin{pmatrix} 1-(1+R)\bar{\mu}_1\Delta t & R\bar{\mu}_2\Delta t & \dots & \dots & 0 & 0 & 0 \\ (1+R)\bar{\mu}_1\Delta t & 1-(1+2R)\bar{\mu}_2\Delta t & \dots & \dots & 0 & 0 & 0 \\ 0 & (1+R)\bar{\mu}_2\Delta t & \dots & \dots & 0 & 0 & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \dots & \dots & 1-(1+2R)\bar{\mu}_{n-2}\Delta t & R\bar{\mu}_{n-1}\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & \dots & \dots & 1-(1+R)\bar{\mu}_{n-2}\Delta t & 1-(1+R)\bar{\mu}_{n-1}\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & \dots & \dots & 0 & 1\bar{\mu}_{n-1}\Delta t & 1 \end{pmatrix} \tag{4.43}$$

Après chaque transition (k), la matrice des probabilités de transition P(k) reste constante. Elle est calculée à partir des paramètres R et $\bar{\mu}_i$. Notons ici que la matrice obtenue par cette démarche (équation 4.43) est la même que celle proposée par Tamir.,1998 [112] pour représenter l'écoulement dans un système continu en régime permanent.

Avant d'appliquer cette approche de modélisation au cas de cette étude, nous proposons quelques simulations théoriques qui permettront d'illustrer l'effet des paramètres du modèle sur l'écoulement dans un système ouvert. Cette approche peut être destinée à modéliser deux cas de figure selon le type d'entrée appliquée au système :

- Entrée instantanée de type Dirac qui correspond souvent à une injection d'un traceur dans un écoulement en régime permanent (étude de la DTS).
- Entrée continue dans le temps. Dans ce cas, le modèle peut être utilisé pour décrire l'écoulement des particules pendant la phase de démarrage des doseurs, en régime permanent et même après un changement des condition opératoires.

4.2.3 Exemple d'application n°1 : impulsion de traceur

On cherche ici à illustrer la réponse du modèle à une injection de type Dirac dans la première cellule du modèle. L'injection de ce type (Dirac) est souvent sollicitée pour modéliser le comportement des particules par des modèles classiques de DTS : modèle parfaitement agité, modèle de mélangeurs en cascade...

Nous considérons que le régime permanent n'est pas perturbé par cette injection, et que toutes les particules du traceur sont initialement dans la première cellule. Nous écrivons :

$$Mt(t=0) = \begin{pmatrix} Mt_1(0) \\ Mt_2(0) \\ Mt_3(0) \\ \dots \\ \dots \\ Mt_n(0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Delta Ft_1(0) \\ 0 \\ 0 \\ \dots \\ \dots \\ 0 \end{pmatrix} \tag{4.44}$$

Où Mt_i est la masse des particules de traceur dans la cellule i ; $\Delta Ft_1(0)$ est la masse des particules de traceur injectées dans la cellule1 à l'instant t=0 ;

Après la première transition le système devient :

$$\begin{pmatrix} Mt_1(1) \\ Mt_2(1) \\ Mt_3(1) \\ \dots \\ \dots \\ Mt_n(1) \end{pmatrix} = P * \begin{pmatrix} \Delta Ft_1(0) \\ Mt_2(0) \\ Mt_3(0) \\ \dots \\ \dots \\ Mt_n(0) \end{pmatrix} \tag{4.45}$$

Après k+1 transitions, nous écrivons :

$$\begin{pmatrix} Mt_1(k+1) \\ Mt_2(k+1) \\ Mt_3(k+1) \\ \dots \\ \dots \\ Mt_n(k+1) \end{pmatrix} = P * \begin{pmatrix} Mt_1(k) \\ Mt_2(k) \\ Mt_3(k) \\ \dots \\ \dots \\ Mt_n(k) \end{pmatrix} \tag{4.46}$$

En injectant un traceur instantanément à l'entrée du mélangeur, la première particule du traceur apparaît à la sortie après avoir passé un certain temps dans celui-ci. Les autres

particules vont sortir par la suite à des temps plus au moins différents jusqu'à épuisement du traceur, ce qui donne accès à la distribution des temps de séjours. En langage Markovien, la DTS se déduit des états du système par :

$$E(t+\Delta t) = Mt_n(t+\Delta t) - Mt_n(t) \tag{4.47}$$

A partir de la courbe DTS obtenue par cette équation Markovienne, il est facile de déduire les deux premiers moments relatifs à la DTS s'écrivant sous la forme suivante :
Le temps de séjour moyen :

$$< t >= \sum_{t=0}^{\infty} nE(n) \tag{4.48}$$

La variance :

$$\sigma^2 = \sum_{t=0}^{\infty} (t- < t >)^2 E(t) \tag{4.49}$$

Afin d'illustrer l'effet des valeurs des paramètres du modèle sur l'écoulement des particules dans les différentes cellules, plusieurs simulations de la distribution des temps de séjours "DTS" ont été réalisées en régime permanent. Nous précisons ici que la matrice des probabilité de transition du traceur est la même que celle du produit en écoulement. Sachant que le système est en régime permanent, cette matrice peut être déterminée à partir des paramètres R et $\bar{\mu}_i$ en utilisant l'équation 4.43.
Quelques exemples de l'évolution théorique de la concentration du traceur dans les différentes cellules d'un mélangeur sont présentés sur les figures 4.13 et 4.14.
Ces simulations sont réalisées avec 6 cellules. La concentration du traceur dans les cellules 1 à 6 est calculée par :

$$C_i(t) = \frac{Mt_i(t)}{\sum_{j=1}^{6} Mt_j(t)} \tag{4.50}$$

Notons ici que la masse retenue dans chaque cellule i ($M_i(t)$) est déterminée par la chaîne de Markov(équation 4.46). Les simulations présentées sur la figure 4.13 sont réalisées à partir d'une valeur constante $\bar{\mu}_i = 10$, en supposant que la répartition des particules dans le mélangeur en régime permanent est uniforme (toutes les cellules contiennent la même masse de particules) :

$$\forall (i,j) \quad Mc_i = Mc_j \quad \Rightarrow \quad \bar{\mu}_i = \bar{\mu}_j$$

Mc_k est ici la masse des particules (du produit en écoulement) dans la cellule k.

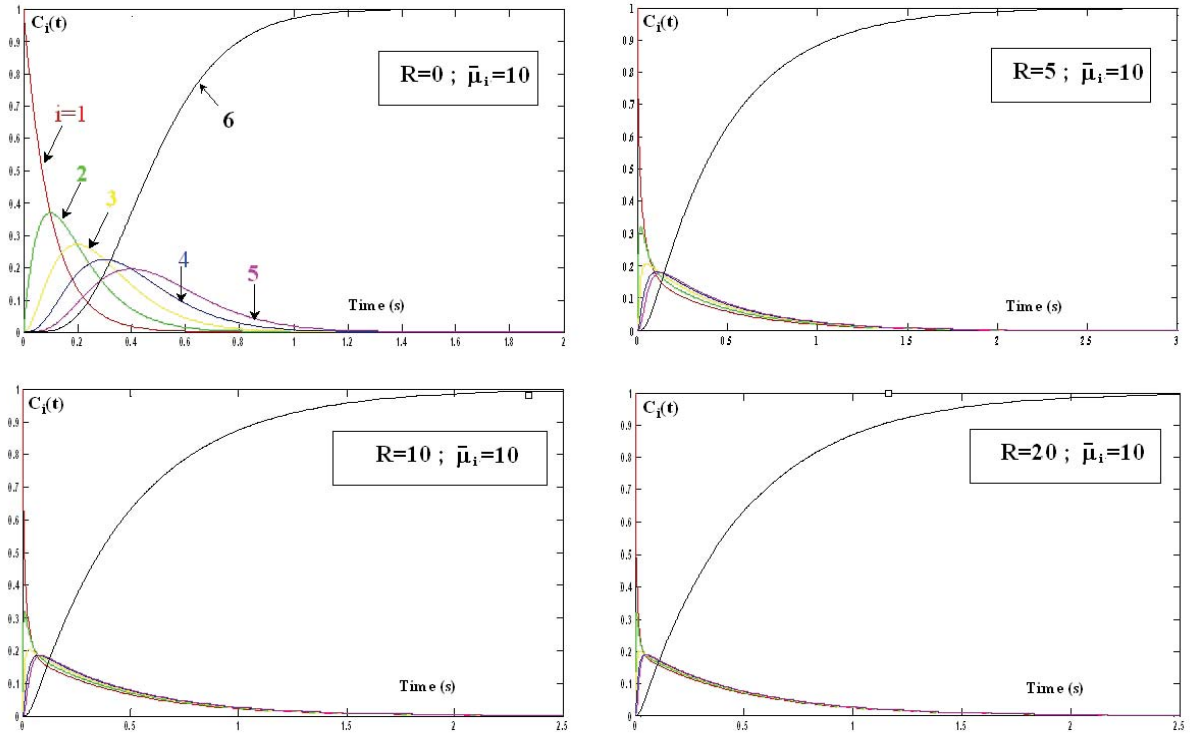


FIGURE 4.13 – Simulation d'injection du traceur pour différentes valeur de R ($\bar{\mu}_i = 10$)

D'après les résultats de simulation nous remarquons que pour des valeurs élevées du coefficient de re-circulation R, la concentration du traceur dans les cellules devient identique d'autant plus rapidement. Ceci signifie que le mélangeur tend à devenir parfaitement agité. On note également que l'augmentation de la valeur de R réduit nettement le temps de séjour moyen des particules dans le mélangeur. Ceci est logique puisque le temps de passage est inversement proportionnel à R selon l'équation suivante :

$$\tau_1 = \frac{1}{(1+R) * \bar{\mu}_1} \quad et \quad \tau_{i(2:5)} = \frac{1}{(1+2*R) * \bar{\mu}_i}$$

D'un autre coté, nous présentons sur la figure 4.14 des simulations réalisées à partir de différentes valeurs du paramètre $\bar{\mu}$ qui représente le rapport de débit sur la masse retenue dans une cellule donnée. Manifestement, ce paramètre n'influence pas aussi nettement la vitesse d'homogénéisation des cellules. En effet, pour un faible taux de re-circulation(exemple R=1), quelle que soit la valeur de $\bar{\mu}$, les cellules ne sont jamais uniformes en terme de concentration C_i, et par conséquent elles ne peuvent pas être assimilées à des systèmes parfaitement agités. Finalement, on note que le temps nécessaire pour que toutes les particules du traceur traversent le mélangeur est sensiblement réduit quand la valeur du paramètre $\bar{\mu}$ est augmentée. Ceci conduit nécessairement à une diminution du temps de séjour moyen.

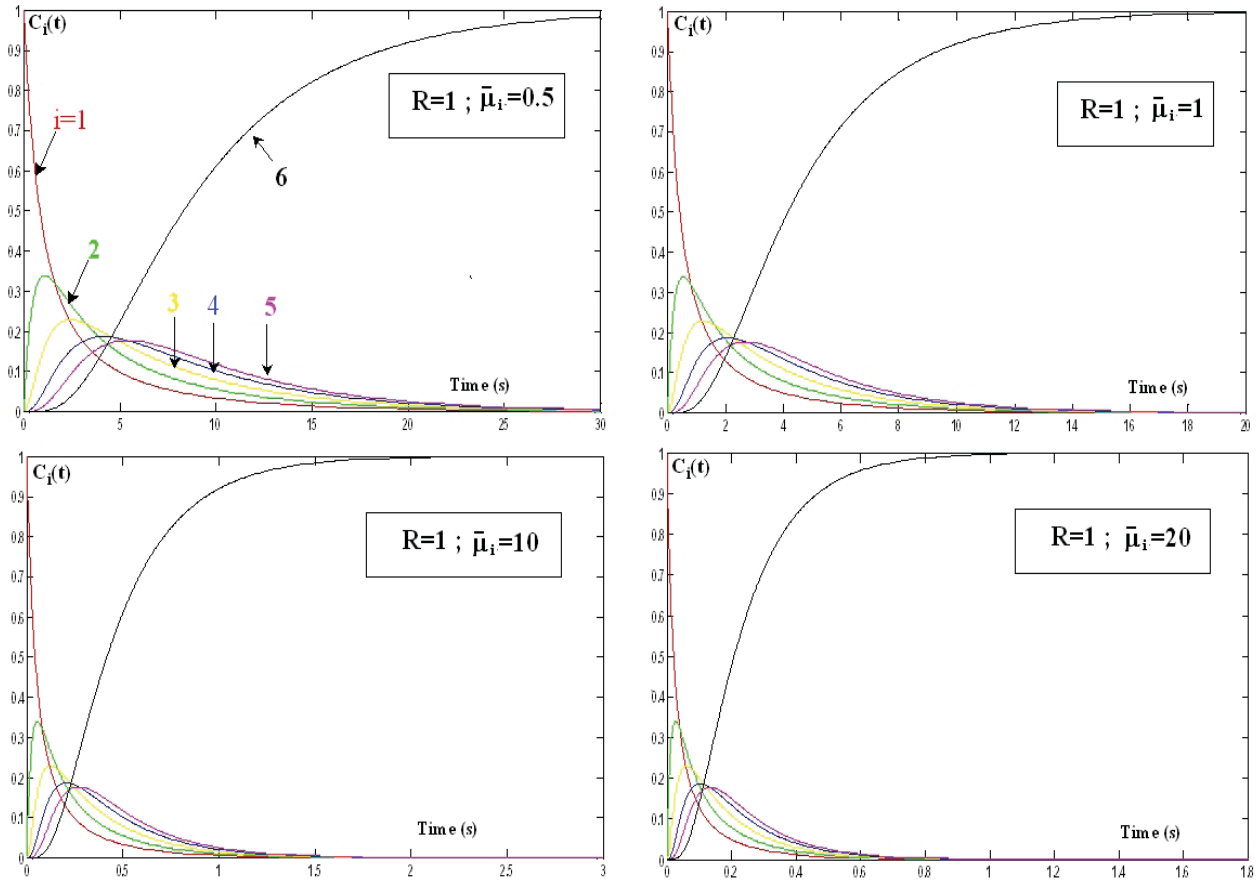


FIGURE 4.14 – Simulation d'injection du traceur pour différente valeur de $\bar{\mu}_i$

4.2.4 Exemple d'application n°2 : simulation de l'écoulement des particules en régime transitoire

Dans ce deuxième exemple, nous appliquons cette fois-ci l'approche Markovienne pour décrire l'écoulement des particules et non pas celui du traceur. Comme nous cherchons à développer un modèle qui décrit le procédé du mélange en continu pendant les différentes phases de son fonctionnement, nous proposons dans cet exemple d'application des simulations illustrant l'effet des paramètres du modèle durant la phase de démarrage, le régime permanent, et après la variation d'un paramètre opératoire (comme par exemple la vitesse d'agitation ou le débit d'alimentation).

Dans un premier temps nous nous intéressons à la phase de démarrage du procédé et sa

mise en régime stationnaire. Initialement le mélangeur est vide, nous écrivons :

$$\begin{pmatrix} Mc_1(t=0) \\ Mc_2(t=0) \\ Mc_3(t=0) \\ \cdots \\ \cdots \\ Mc_n(t=0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ \cdots \\ \cdots \\ 0 \end{pmatrix} \tag{4.51}$$

Au démarrage du procédé, le doseur alimente le mélangeur avec un signal d'entrée continu dans le temps ($\Delta F_1(t)$). Ainsi, nous écrivons

$$\begin{pmatrix} Mc_1(k+1) \\ Mc_2(k+1) \\ Mc_3(k+1) \\ \cdots \\ \cdots \\ Mc_n(k+1) \end{pmatrix} = P(k) * \begin{pmatrix} Mc_1(k) + \Delta F_1(k) \\ Mc_2(k) \\ Mc_3(k) \\ \cdots \\ \cdots \\ Mc_n(k) \end{pmatrix} \tag{4.52}$$

$\Delta F_1(k)$ représente l'alimentation de la cellule 1 à l'instant $k * \Delta t$.

Pour résoudre ce système, il faut déterminer la matrice P(k). Ceci nécessite de connaître à chaque transition k les valeurs des paramètres associés à chaque cellule i ($\alpha_{i+1,i}(k), \alpha_{i-1,i}(k), \mu_i(k)$) Sachant qu'il est quasiment impossible de déterminer expérimentalement l'évolution des paramètres de circulation et re-circulation internes ($\alpha_{i+1,i}(t), \alpha_{i-1,i}(t)$), nous posons l'hypothèse simplificatrice d'un procédé décrit par une chaîne homogène. Dans ce cas, même si les paramètres du modèle changent, durant la phase transitoire, la matrice P reste constante. Ainsi, pour deux différents instants n et k du régime transitoire, et pour une cellule donnée i, nous écrivons :

$$P_{i+1,i}(k) = P_{i+1,i}(n) \quad \Rightarrow \quad \alpha_{i+1,i}(k) * \mu_i(k) = \alpha_{i+1,i}(n) * \mu_i(n) = (1+R) * \bar{\mu}_i$$

$$P_{i-1,i}(k) = P_{i-1,i}(n) \quad \Rightarrow \quad \alpha_{i-1,i}(k) * \mu_i(k) = \alpha_{i-1,i}(n) * \mu_i(n) = R * \bar{\mu}_i$$

Pour cette chaîne homogène, le démarrage peut être décrit par la matrice des probabilités correspondant au régime permanent (équation 4.43). Ainsi, la connaissance des paramètres R et $\bar{\mu}$ est suffisante pour simuler l'évolution de la dynamique de remplissage du mélangeur et celle du régime permanent.

Dans le graphe de la figure 4.15, nous montrons des exemples de simulation de la phase de démarrage du mélangeur et celle du régime permanent. Dans ces exemples, nous considérons qu'à l'instant t=0, le mélangeur est alimenté en continu avec un débit Q= 40kg/h. Le nombre de cellules choisi pour représenter le système est n=6.

Comme on peut le constater, l'approche utilisée permet de décrire la répartition massique des particules dans les différentes cellules (zones) du mélangeur (Mc_i), les débits internes ($Q_{i-1,i}$, $Q_{i+1,i}$) et le débit de sortie ($Qout = Q_{65}$). Ce dernier est déduit à partir de la variation de la masse retenue dans l'état absorbant entre deux instants successifs :

$$Qout(k) = \frac{Mc_6(k+1) - Mc_6(k)}{\Delta t}$$

Rappelons ici que les masses retenues dans les cellules sont calculées directement par la chaîne de Markov (équation 4.52) .

En ce qui concerne les débits internes associés à une cellule i, ils sont calculés à chaque transition n par les équations suivantes :
-pour la cellule n°1 :

$$Q_{2,1}(n) = \frac{P_{2,1}(n) * (Mc_1(n) + \Delta F_1(n))}{\Delta t} = (1+R) * \bar{\mu}_i * (Mc_1(n) + \Delta F_1(n)) \tag{4.53}$$

- pour les cellules $2 \leq i \leq 5$:

$$Q_{i+1,i}(n) = \frac{P_{i+1,i} * Mc_i(n)}{\Delta t} = (1+R) * \bar{\mu}_i * Mc_i(n) \tag{4.54}$$

$$Q_{i-1,i} = \frac{P_{i-1,i} * Mc_i(n)}{\Delta t} = R * \bar{\mu}_i * Mc_i(n) \tag{4.55}$$

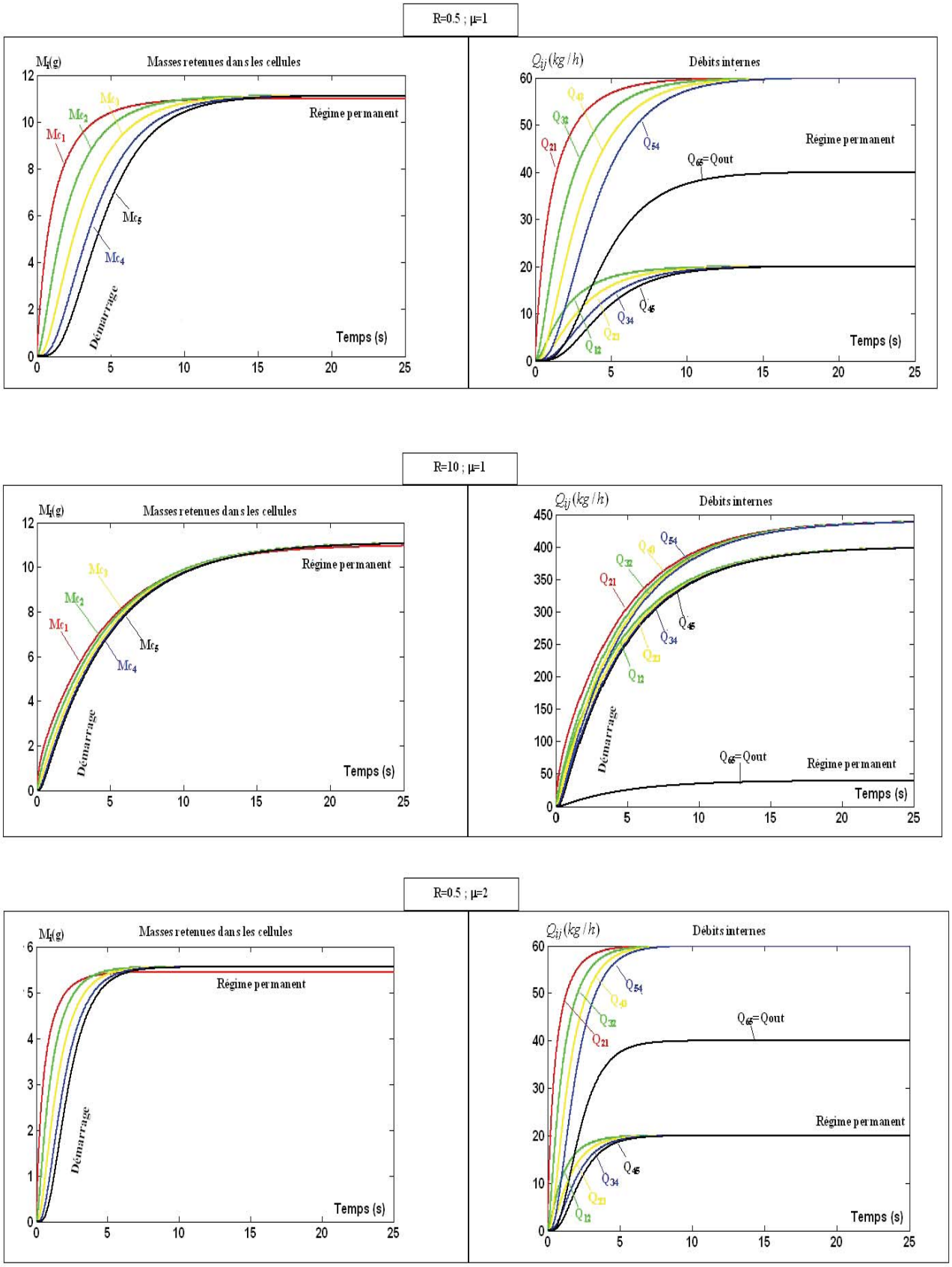


FIGURE 4.15 – Simulation des débits internes et de la répartition de la masse retenue dans les cellules pendant le démarrage et en régime permanent : effet des paramètres R et $\bar{\mu}$

Comme on peut le constater sur la figure 4.15, les simulations numériques présentées permettent d'illustrer l'effet des paramètres du modèle R et $\bar{\mu}$ sur la dynamique du système étudié. D'après les résultats obtenus, nous remarquons que comme dans le cas d'une impulsion de traceur en régime permanent, des valeurs élevées du paramètre R permettent une meilleure homogénéisation de la répartition massique des particules dans les cellules lors de la phase de démarrage. Dans ce cas, l'ensemble se rapproche d'un système parfaitement agité.

En ce qui concerne le paramètre $\bar{\mu}$, il n' influence que le temps de séjour moyen et la masse retenue en régime permanent. Plus $\bar{\mu}$ est faible, plus la masse retenue est élevée et plus le temps de séjour moyen est court.

Par ailleurs, nous précisons ici que pendant le régime de démarrage, bien que la matrice des probabilités de transition est supposée constante(chaîne homogène), les paramètres de circulation et re-circulation internes $\alpha_{i+1,i}$ et $\alpha_{i-1,i}$ ainsi que le paramètre μ_i ne le sont pas. Leurs évolutions peuvent être calculées par les équations suivantes :

$$\mu_i(t) = \frac{Q(t)}{Mc_i(t)}$$

$$\alpha_{i+1,i}(t) = \frac{Q_{i+1,i}(t)}{Q(t)}$$

$$\alpha_{i-1,i}(t) = \frac{Q_{i-1,i}(t)}{Q(t)}$$

Sur la figure 4.16 nous présentons un exemple d'évolution de ces 3 paramètres durant le régime transitoire de démarrage et en régime permanent.

D'après les résultats présentés, nous remarquons que :

- Au départ du procédé (à t=0) le paramètre μ_i tend vers l'infini car le mélangeur est initialement vide :

$$\forall i \quad M_i = 0 \quad \Rightarrow \quad \mu_i = +\infty$$

Les paramètres $\alpha_{i+1,i}$ et $\alpha_{i-1,i}$ sont nuls à cet instant de départ car il n'existe pas encore d'écoulement : $(Q_{i+1,i} = Q_{i-1,i} = 0)$:

$$\alpha_{i+1,i} = \frac{Q_{i+1,i}}{Q} = 0 \quad et \quad \alpha_{i-1,i} = \frac{Q_{i-1,i}}{Q} = 0$$

- Pendant la phase de remplissage du mélangeur , μ_i tend progressivement vers sa valeur en régime permanent $(\bar{\mu}_i)$ (qui est dans cet exemple $\bar{\mu}_i = 1$).

Quant aux paramètres de circulation et re-circulation internes $\alpha_{i+1,i}$ et $\alpha_{i-1,i}$, ils augmentent progressivement jusqu'à ce qu'ils atteignent respectivement les valeurs R et (1+R) correspondant au régime permanent.

$$\alpha_{i-1,i} = R; \quad \alpha_{i,i+1} = 1+R \quad et \quad \mu_i = \bar{\mu}$$

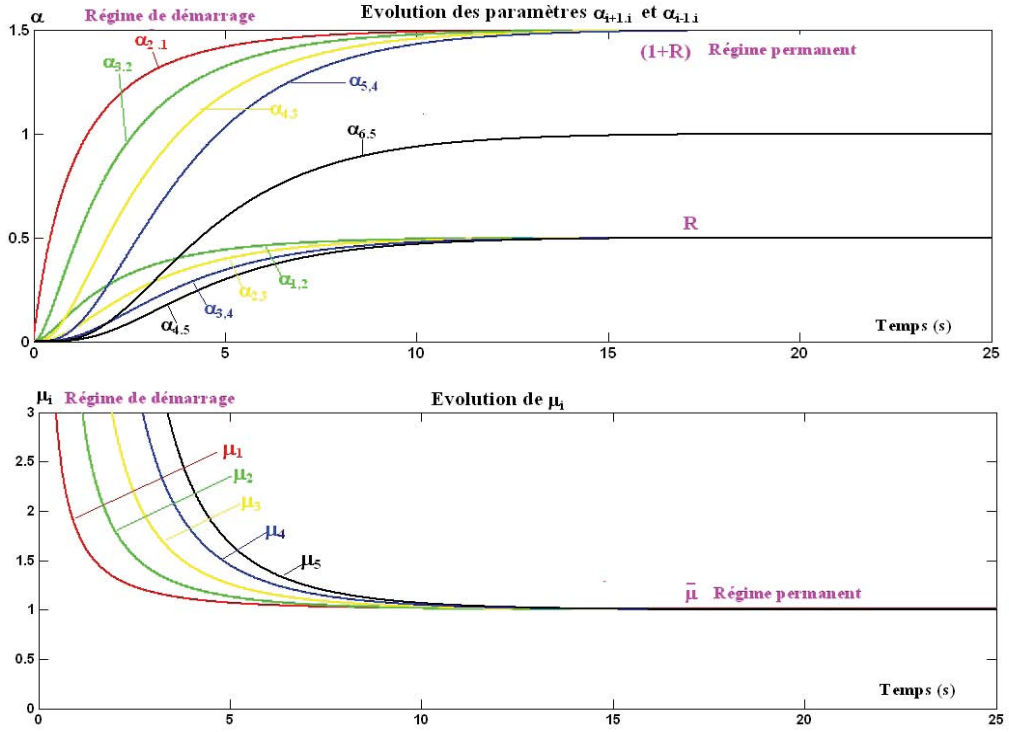


FIGURE 4.16 – Évolution des paramètres μ_i, $\alpha_{i+1,i}$ et $\alpha_{i-1,i}$ pendant le démarrage et en régime permanent (R=0.5 ; $\bar{\mu} = 1$)

Théoriquement, cette approche développée pour décrire la phase de démarrage, peut également servir à décrire l'évolution du système après un changement des conditions opératoires, comme dans le cas de la variation du débit (Q) ou de la vitesse d'agitation (N).
Supposons par exemple que le démarrage du procédé soit réalisé avec un couple $(Q_1; N_1)$, et que le régime permanent correspondant à ces conditions est établi à $(R; \bar{\mu}_i) = (1; 0,2)$. Admettons que la vitesse d'agitation soit changée de N_1 à N_2, de telle manière que le nouveau régime permanent soit établi à $(R; \bar{\mu}_i) = (10; 1)$. En supposant que le procédé est décrit par une chaîne homogène, il est possible de prédire son évolution pendant ces différentes étapes transitoires correspondant au démarrage du procédé et au changement de la vitesse d'agitation, tel qu'illustré sur la figure 4.17.
Dans cet exemple, nous représentons les simulations de l'évolution du débit de sortie et de la

répartition des masses des particules dans le mélangeur pendant le démarrage, en régime permanent et après un échelon de vitesse d'agitation N.

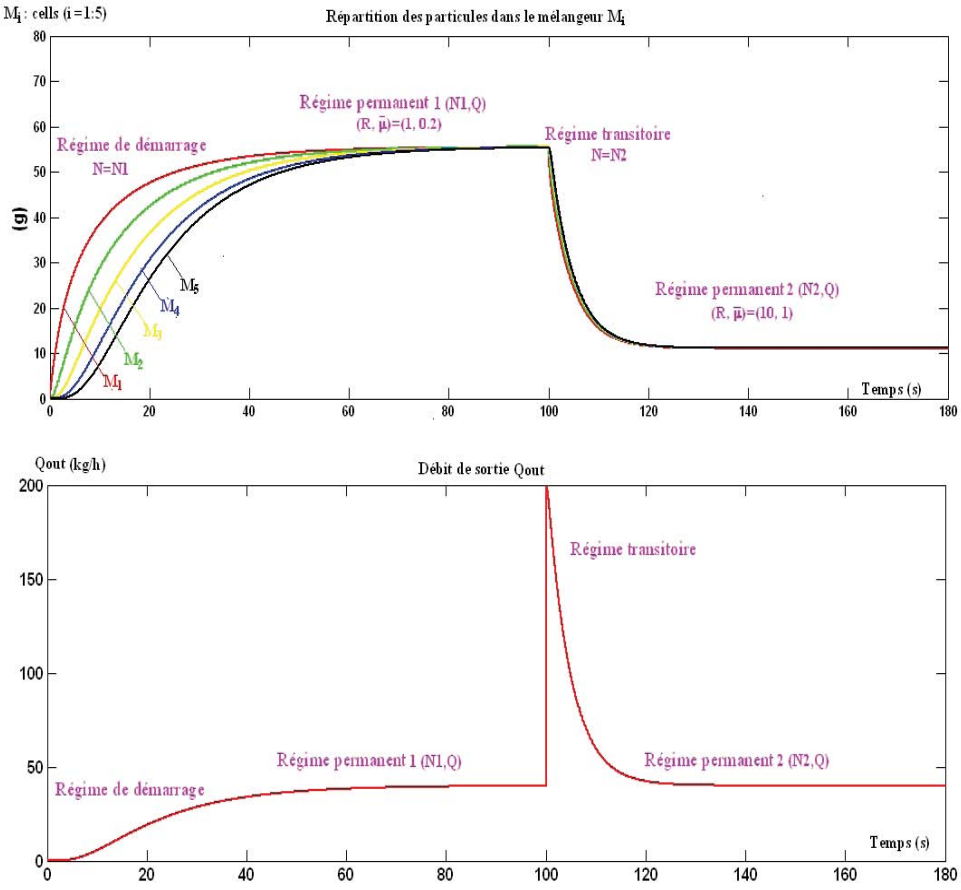


FIGURE 4.17 – Simulation de l'effet d'une brusque variation de la vitesse d'agitation N (pour $\Delta t = 0.005s$ et Q=40kg/h)

D'après les résultats obtenus, nous remarquons que lorsque le paramètre de re-circulation interne R est accéléré (par la variation de la vitesse N), le débit de sortie est instantanément augmenté. Puis, il retourne de manière transitoire vers sa valeur en régime permanent. Pendant ce temps, les masses retenues dans le mélangeur sont réduites.

L'effet du paramètre de re-circulation R sur l'homogénéité des cellules est immédiatement observé après la variation de la vitesse N. En effet, par opposition à la phase transitoire de démarrage, les masses retenues dans les cellules sont identiques pendant la deuxième phase transitoire. Ceci signifie que les cellules sont parfaitement agitées.

Finalement, on voit qu'il est possible d'utiliser cette approche markovienne « mésoscopique» pour décrire l'état interne du système, pendant les différentes phases de son fonctionnement.
Il reste alors à identifier les valeurs réelles des paramètres du modèle, notamment $\bar{\mu}_i$ et R, pour qu'il soit appliqué réellement sur le pilote étudié de mélange en continu. Dans ce cas, la précision des résultats de simulation dépendra nécessairement de la validité de l'hypothèse de l'homogénéité de la chaîne représentant ce procédé.

4.3 Application du modèle mésoscopique au cas étudié

L'objectif de cette partie est de développer un modèle Mésoscopique pour décrire la dynamique de l'écoulement dans le pilote du mélange en continu"Gericke GCM500", sur la base de ce qui a été exposé en 4.2. Comme nous l'avons vu précédemment, le principe de ce modèle consiste à décomposer le volume de mélangeur en un nombre fini de cellules entre lesquelles les particules peuvent transiter. Le modèle développé ici est constitué de 5 cellules qui représentent le mélangeur et d'un état absorbant représenté par la 6ème cellule et qui correspond à la sortie du mélangeur (voir figure 4.18). Notons que les 5 cellules choisies pour représenter la chambre de mélange sont les mêmes que celles définies dans le chapitre 3 (partie 3.3) pour les mesures expérimentales.

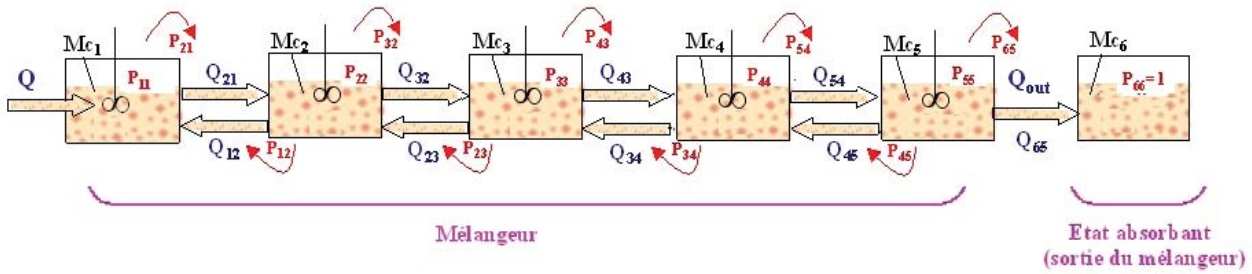


FIGURE 4.18 – Représentation Markovienne pour le mélangeur continu

$P_{j,i}$ est la probabilité de transition de la cellule i à la cellule j. Le débit des particules partant d'une cellule i à une cellule voisine j est symbolisé par $Q_{j,i}$.
Si nous supposons que les particules ne peuvent transiter que d'une cellule à la cellule voisine,

l'évolution du système peut être décrite par l'équation matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} Mc_1(k+1) \\ Mc_2(k+1) \\ Mc_3(k+1) \\ Mc_4(k+1) \\ Mc_5(k+1) \\ Mc_6(k+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{1,1}(k) & P_{1,2}(k) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ P_{2,1}(k) & P_{2,2}(k) & P_{2,3}(k) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & P_{3,2}(k) & P_{3,3}(k) & P_{3,4}(k) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{4,3}(k) & P_{4,4}(k) & P_{4,4}(k) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P_{5,4}(k) & P_{5,5}(k) & P_{5,6}(k) \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{6,5}(k) & P_{6,6}(k) \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} Mc_1(k) + \Delta F_1(k) \\ Mc_2(k) \\ Mc_3(k) \\ Mc_4(k) \\ Mc_5(k) \\ Mc_6(k) \end{pmatrix} \tag{4.56}$$

Comme nous avons vu précédemment, la détermination expérimentale des trois probabilités associées à une cellule i nécessite d'être capable de mesurer les débits internes des particules quittant cette cellule i en direction des deux cellules voisines $(i+1)$ et $(i-1)$. En effet, d'après les équations 4.53, 4.54 et 4.55 nous écrivons :

- pour la cellule 1 :

$$P_{2,1}(k) = \frac{Q_{2,1}(k) * \Delta t}{(Mc_i(k) + \Delta F_1(k)} \quad ; \quad P_{1,1}(k) = 1 - (P_{2,1}(k))$$

-Pour les cellules $2 \leq i \leq 5$:

$$P_{i+1,i}(k) = \frac{Q_{i+1,i}(k) * \Delta t}{Mc_i(k)} \quad ; \quad P_{i-1,i}(k) = \frac{Q_{i-1,i}(k) * \Delta t}{Mc_i(k)} \quad ; \quad P_{i,i}(k) = 1 - (P_{i+1,i}(k) + P_{i-1,i}(k))$$

Dans notre cas il n'est pas possible de mesurer les débits entre les cellules dans les deux sens de circulation et de re-circulation internes. Nous proposons deux alternatives pour résoudre cette difficulté :

-Dans un premier modèle, nous allons supposer que la probabilité de transition à un instant donné "t" ne dépend pas de l'état du système $(Mc_i(t))$. Autrement dit, les rapports $\frac{Q_{i+1,i}(t)}{Mc_i(t)}$ et $\frac{Q_{i-1,i}(t)}{Mc_i(t)}$ sont supposés rester constants pendant les phases transitoire et permanente. Dans le cas où cette hypothèse est vraie, le procédé peut être décrit par une chaîne de Markov homogène. Ceci revient à utiliser le modèle développé dans l'exemple de la partie 4.2.4

-Dans la deuxième méthode, nous proposons de relier empiriquement les probabilités de transition à l'état du système Mc_i, ceci en se basant sur les connaissances acquises par le modèle "Macroscopique" à 2 cellules (partie 4.1) ; La chaîne de Markov ici est non homogène.

La précision des résultats des simulations obtenues par les deux méthodes permettra de choisir celle qui décrit le mieux l'évolution du système .

4.3.1 Modèle markovien homogène

4.3.1.1 Élaboration du modèle

Dans ce cas, la matrice des probabilités de transition du système en régime permanent peut être utilisée pour décrire la phase transitoire car cette matrice est considérée comme constante pour une vitesse N et un débit Q donnés. Pour cette raison, nous cherchons dans cette partie à exprimer la matrice des probabilité P en régime permanent afin de pouvoir identifier par la suite ses éléments.
Comme dans la partie 4.2.2, nous définissons pour chaque cellule "i" des taux de circulation et re-circulation internes comme étant :

$$pour \quad i = 1:5 \qquad \alpha_{i-1,i} = \frac{Q_{i-1,i}}{Q}; \qquad \alpha_{i+1,i} = \frac{Q_{i+1,i}}{Q}$$

Nous définissons également le paramètre μ_i associé à chaque cellule "i" comme étant :

$$pour \quad i = 1: \quad \mu_1 = \frac{Q}{M_1 + \Delta F_1}; \quad et \ pour \ i = 2:5: \quad \mu_i = \frac{Q}{M_i};$$

A partir de ces deux paramètres $\alpha_{i,j}$ et μ_i nous pouvons exprimer les trois probabilités de transition associées à une cellule i :

$$P_{i+1,i} = \alpha_{i+1,i} * \mu_i * \Delta t; \quad P_{i-1,i} = \alpha_{i-1,i} * \mu_i * \Delta t; \quad P_{i,i} = 1 - (P_{i-1,i} + P_{i+1,i})$$

Ainsi, La matrice de transition de ce système peut être donnée par l'équation suivante :

$$\begin{pmatrix} 1-\alpha_{2,1}\mu_1\Delta t & \alpha_{1,2}\mu_2\Delta t & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{2,1}\mu_1\Delta t & 1-(\alpha_{1,2}+\alpha_{3,2})\mu_2\Delta t & \alpha_{2,3}\mu_3\Delta t & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{3,2}\mu_2\Delta t & 1-(\alpha_{2,3}+\alpha_{4,3})\mu_3\Delta t & \alpha_{3,4}\mu_4\Delta t & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{4,3}\mu_3\Delta t & 1-(\alpha_{3,4}+\alpha_{5,4})\mu_4\Delta t & \alpha_{4,5}\mu_5\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{5,4}\mu_4\Delta t & 1-(\alpha_{4,5}+\alpha_{6,5})\mu_5\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \alpha_{6,5}\mu_5\Delta & 1 \end{pmatrix} \tag{4.57}$$

Cette matrice est valable quel que soit le régime de fonctionnement, permanent ou transitoire. Cependant, il est quasiment impossible de connaître l'évolution des paramètres $\alpha_{i,j}$ pendant les différentes phases transitoires. Ainsi, bien qu'il soit possible de mesurer expérimentalement l'évolution des paramètres μ_i comme illustré sur la figure 4.19, cette matrice des probabilités de transition ne peut pas être identifiée expérimentalement en régime transitoire.

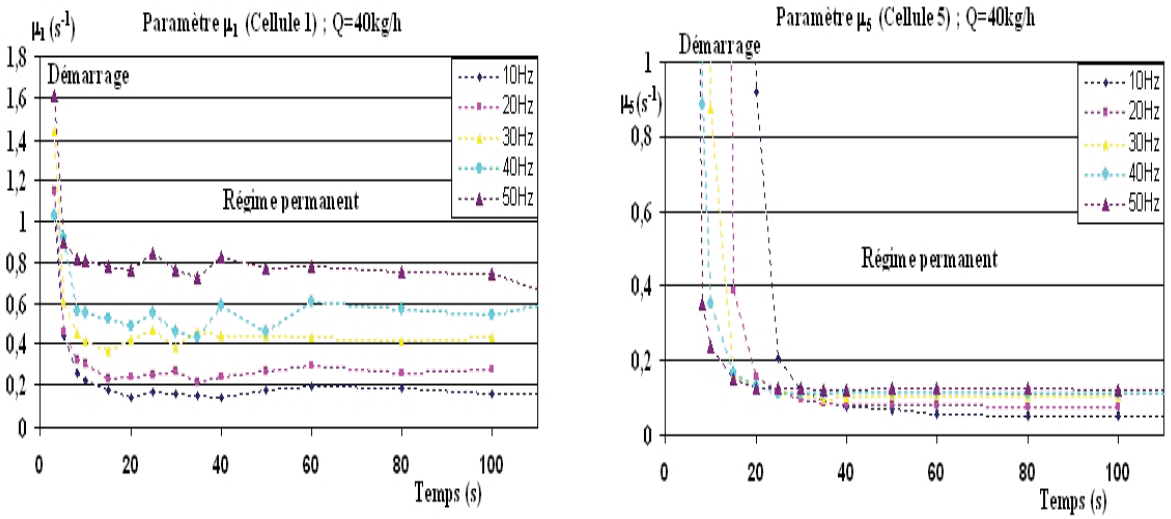


FIGURE 4.19 – Évolution expérimentale du paramètre μ_i pendant la phase de démarrage et en régime permanent

Si nous nous intéressons maintenant uniquement au régime permanent, nous pouvons remarquer que le paramètre $\mu_i = \bar{\mu}_i$ reste constant (voir figure 4.19). Sa valeur peut être déterminée empiriquement en utilisant les équations (3.28 et 3.29). Ainsi, pour les quatre premières cellules (i=1 :4) nous écrivons :

$$\bar{\mu}_i = \frac{Q}{Mr_i} = \frac{Q * N}{k_i(Q)} \tag{4.58}$$

Ensuite, pour la 5ème cellule on écrit :

$$\bar{\mu}_5 = \frac{Q}{Mr_5} = \frac{Q}{\frac{k_5(Q)}{N} + b_5} \tag{4.59}$$

Mr_i est la masse retenue dans la cellule i en régime permanent.
Par conséquent, si la vitesse d'agitation N est connue, la valeur du paramètre $\bar{\mu}_i$ peut être déterminée empiriquement. La relation entre $\bar{\mu}_i$ avec la vitesse d'agitation N (pour un débit de 40 kg/h) est présentée sur la figure 4.20.

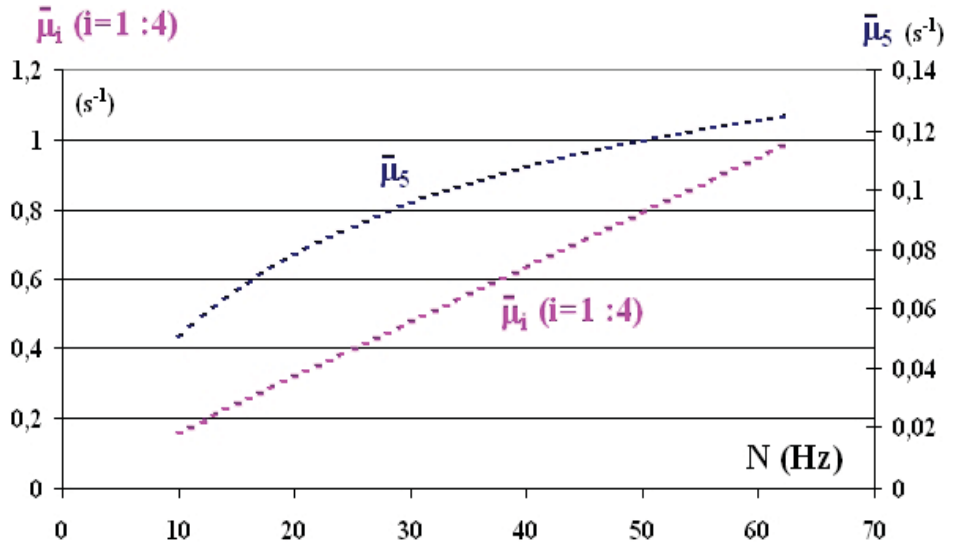


FIGURE 4.20 – Paramètre $\bar{\mu}_i$ en régime permanent pour différentes N (Q=40kg/h)

Dans le cas de ce régime permanent, et d'après l'équation 4.43, la matrice P s'écrit sous la forme suivante :

$$P = \begin{pmatrix} 1-(1+R)\bar{\mu}_1\Delta t & R\bar{\mu}_2\Delta t & 0 & 0 & 0 & 0 \\ (1+R)\bar{\mu}_1\Delta t & 1-(1+2R))\bar{\mu}_2\Delta t & R\bar{\mu}_3\Delta t & 0 & 0 & 0 \\ 0 & (1+R)\bar{\mu}_2\Delta t & 1-(1+2R)\bar{\mu}_3\Delta t & R\bar{\mu}_4\Delta t & 0 & 0 \\ 0 & 0 & (1+R)\bar{\mu}_3\Delta t & 1-(1+2R)\bar{\mu}_4\Delta t & R\bar{\mu}_3\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & (1+R)\bar{\mu}_4\Delta t & 1-(1+R)\bar{\mu}_5\Delta t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1\bar{\mu}_5\Delta t & 1 \end{pmatrix} \quad (4.60)$$

Dans cette matrice, R est défini comme étant un paramètre de re-circulation unique pour toutes les cellules représentant le mélangeur (voir équation 4.42) :

$$R = \alpha_{i-1,i} \qquad et \qquad 1+R = \alpha_{i+1,i}$$

Sachant que les probabilités de transition entre les cellules dépendent principalement de Q et de N, et qu'en régime transitoire, ces deux variables opératoires restent constantes, on peut alors supposer que cette matrice des probabilités ne change pas pendant ce régime. En langage Markovien, ceci revient à dire que la chaîne est homogène. Dans ce cas, la connaissance du paramètre de re-cirulation interne R est suffisante pour décrire la phase transitoire de démarrage car les valeurs du deuxième paramètre du modèle $\bar{\mu}_i$ peuvent être estimées empiriquement par les équations 4.58 et 4.59.

4.3.1.2 Identification de taux de re-circulation en régime permanent R

L'identification du paramètre R peut être réalisée numériquement par la méthode d'optimisation de Levenberg Marquardt ; pour cela, on définit un critère D qui est une distance d'état entre la somme des 5 masses retenues expérimentales (Mc_1exp, Mc_2exp, Mc_3exp, Mc_4exp et Mc_5exp) mesurées à différents temps de la phase transitoire de démarrage et les sorties du modèle calculées à ces mêmes temps par l'équation de Markov 4.56, ceci en utilisant la matrice 4.60 :

$$D = \sum_{j=1}^{5} \sum_{i=1}^{m_e} (Mc_j(i) - Mc_j exp(i))^2 \tag{4.61}$$

m_e nombre de mesures expérimentales.

Ce critère D doit être minimisé pour pouvoir trouver le paramètre R optimal qui permet d'avoir un comportement du modèle le plus proche possible de celui du système. La méthode de Levenberg Marquardt a été utilisée « sous Matlab » pour estimer la valeur de R qui minimise ce critère D.

Sur la figure 4.21 nous présentons l'évolution de R identifié en fonction de la vitesse d'agitation. D'après ces résultats, nous remarquons que plus la vitesse est élevée plus la re-circulation interne est importante, et plus l'échange entre les différentes régions du mélangeur est intense. Par conséquent, l'homogénéisation est certainement meilleure à plus grande vitesse. Ceci reste à confirmer par la caractérisation d'un mélange de différents produits dans ces conditions.

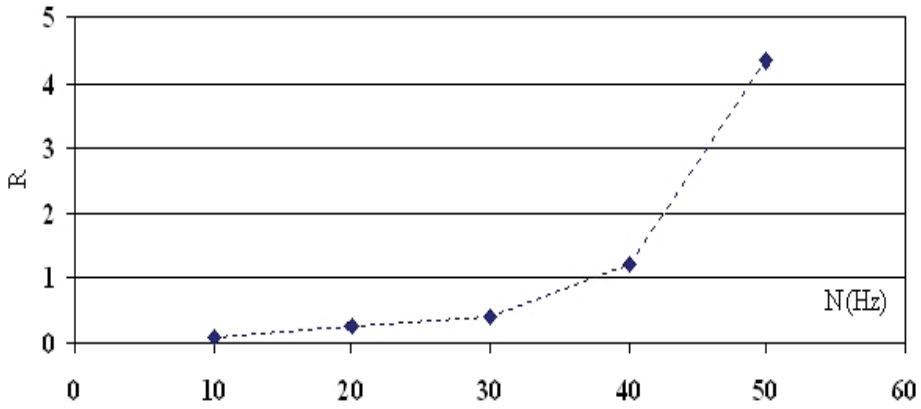


FIGURE 4.21 – Identification du taux de re-circulation R dans le cas d'une chaîne homogène

4.3.1.3 Confrontation modèle homogène- expérience

Dans cette partie, nous présentons quelques exemples de simulations réalisées en utilisant ce modèle Markovien d'écoulement établi selon une chaîne homogène. Le modèle décrit l'évolution des débits internes ($Q_{i+1,i}$ et $Q_{i-1,i}$) et des masses retenues Mc_i. Ces dernières peuvent être comparées directement aux masses retenues expérimentales. Cependant, les débits internes dans les deux sens de circulation ne sont pas mesurés. Comme illustré sur la figure 4.22, uniquement le débit intermédiaire global $Qout_i$ (allant d'une cellule i à la cellule suivant (i+1)) est mesuré (voir partie 2.3.3.). Ainsi, nous nous contentons de comparer ici la différence ($Q_{i+1,i}$ - $Q_{i,i+1}$) simulée par le modèle avec celle mesurée expérimentalement $Qout_i$, car théoriquement $Qout_i = Q_{i+1,i} - Q_{i,i+1}$

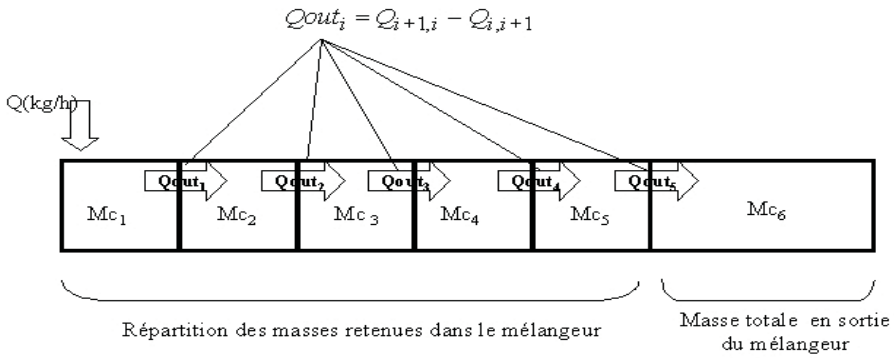


FIGURE 4.22 – Débits internes apparents

La comparaison entre les simulations et les expériences réalisées à différentes vitesses d'agitation N est présentée sur la figure 4.23.

Tant que le régime reste permanent, les résultats du modèle sont acceptables. Cependant, dans la phase de démarrage, le modèle est moins satisfaisant. En particulier, nous constatons que selon le modèle, dès que les particules arrivent à la cellule 5, elles commencent instantanément à sortir. De ce fait, le débit de sortie calculé par le modèle (Qout) augmente avant le débit expérimental. La représentation du procédé par une chaîne homogène, en supposant que les probabilités de transition entre les cellules ne dépendent pas des masses retenues dans ces cellules, ne permet pas de décrire correctement la phase transitoire de démarrage. Dans la suite de ce travail, nous allons chercher à relier cette probabilité à l'état des cellules, ce qui revient à considérer une chaîne non homogène.

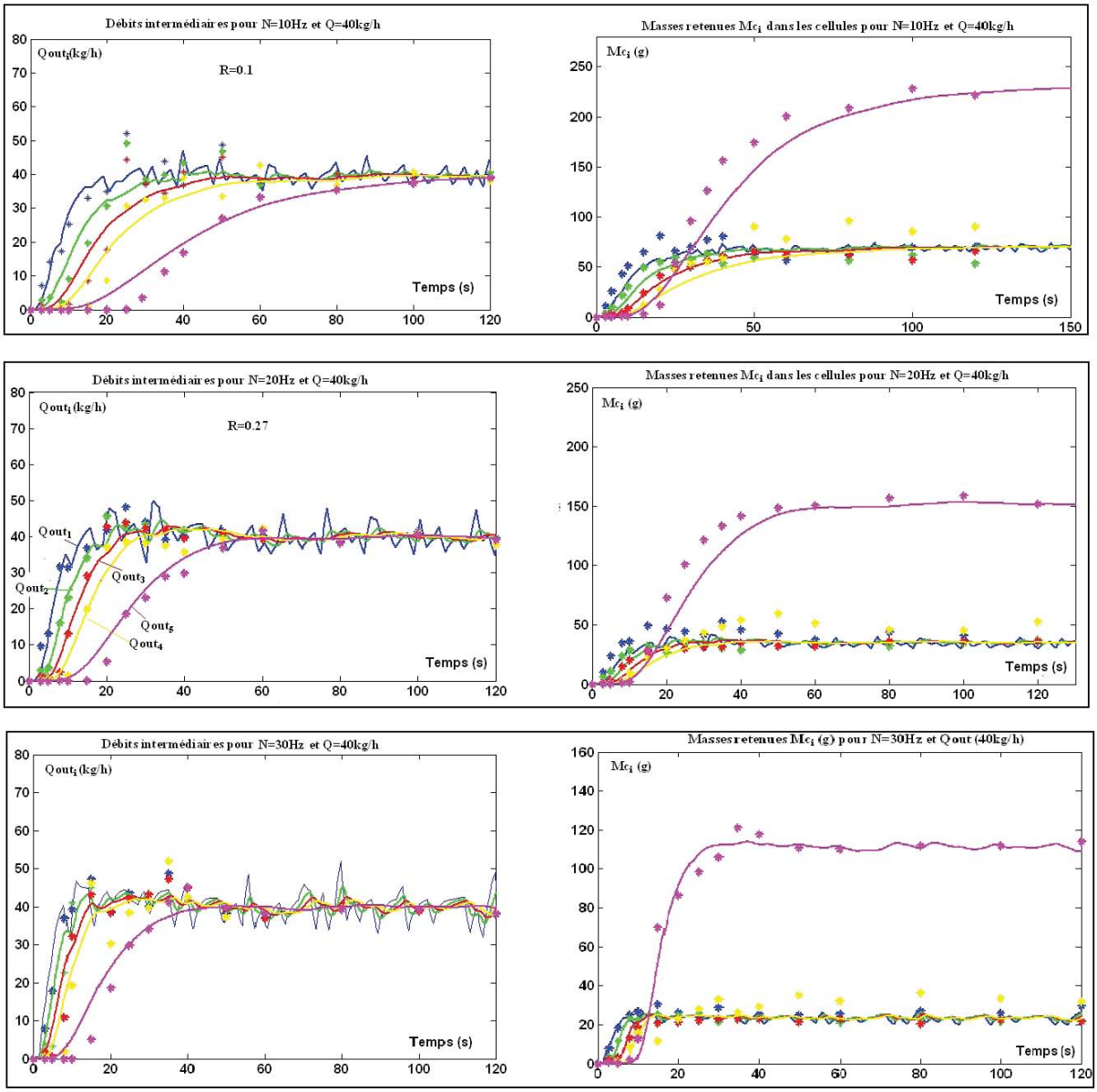


FIGURE 4.23 – Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage (Q=40kg/h)

4.3.2 Modèle markovien non homogène

4.3.2.1 Élaboration du modèle

Le modèle développé dans cette deuxième partie est basé sur la simplification de la représentation proposée précédemment sur la figure 4.18. Sachant qu'il n'est pas possible de mesurer l'évolution expérimentale des débits internes $Q_{i+1,i}$ et $Q_{i-1,i}$, nous avons choisi de modéliser le système en considérant uniquement le débit intermédiaire global, $Qout_i$ allant de la cellule i à la cellule i+1, qui représente la différence entre le débit interne dans le sens de

l'écoulement et celui dans le sens inverse :

$$Qout_i = Q_{i+1,i} - Q_{i,i+1}$$

Dans ce cas, le système peut être représenté par un modèle des mélangeurs en cascade selon le schéma de la figure suivante :

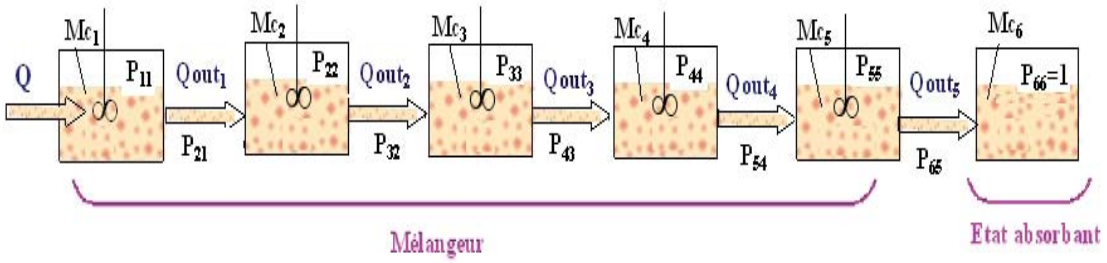


FIGURE 4.24 – Représentation Markovienne simplifiée

Cette représentation se traduit par une chaîne markovienne s'écrivant selon le système matriciel suivant :

$$\begin{pmatrix} Mc_1(k+1) \\ Mc_2(k+1) \\ Mc_3(k+1) \\ Mc_4(k+1) \\ Mc_5(k+1) \\ Mc_6(k+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{1,1} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ P_{2,1} & P_{2,2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & P_{3,2} & P_{3,3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{4,3} & P_{4,4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P_{5,4} & P_{5,5} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{6,5} & P_{6,6} \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} Mc_1(k) + \Delta F_1(k) \\ Mc_2(k) \\ Mc_3(k) \\ Mc_4(k) \\ Mc_5(k) \\ Mc_6(k) \end{pmatrix} \tag{4.62}$$

La mesure du débit associé à la cellule "i" ($Qout_i$) en fonction de la masse retenue Mc_i permettra d'identifier expérimentalement toutes les probabilités de transition de cette matrice. Ainsi, pour la cellule 1 nous écrivons :

$$P_{21} = \frac{Qout_1 * \Delta t}{Mc_1 + \Delta F_1}; \quad et \quad P_{1,1} = 1 - P_{21} \tag{4.63}$$

Ensuite, pour les cellules de 2 à 5 :

$$P_{i+1,i} = \frac{Qout_i * \Delta t}{Mc_i}; \quad et \quad P_{i,i} = 1 - P_{i+1,i} \tag{4.64}$$

Et finalement, pour la dernière cellule :

$$P_{6,6} = 1 \tag{4.65}$$

4.3.2.2 Détermination de la matrice des probabilités de transition

Pour déterminer la matrice des probabilités de transition de ce système (équation 4.62), nous allons supposer dans un premier temps que la probabilité que les particules avancent d'une cellule à l'autre ($P_{i+1,i}$) suit la même loi que celle obtenue dans le cas d'un d'un modèle simplifié à deux cellules (partie 4.1). Par la suite, nous vérifierons la validité de cette hypothèse à partir de la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux qui sont calculés sur la base de cette hypothèse.

Pendant la phase de démarrage, nous supposons que la probabilité que les particules avancent d'une cellule à l'autre est une fonction linéaire de la masse retenue dans cette cellule :

$$pour \;\; M_{minj} \leq Mc_j \leq Mr_j \quad \Rightarrow \quad P_{j+1,j} = a_j(Mc_j - M_{minj}) \tag{4.66}$$

Mr_j est la masse retenue en régime permanent dans la cellule j ; et M_{minj} est la masse minimale (dans la cellule j) à partir de laquelle les particules commencent à avancer vers la cellule suivante (j+1).
Une fois que la masse retenue dans une cellule j atteint son niveau de remplissage maximal ($Mc_i = Mr_i$), la probabilité que les particules transitent vers la cellule suivante (j+1) devient constante. Dans ce cas nous écrivons :

$$pour \;\; M_{minj} = Mr_j \quad \Rightarrow \quad P_{j+1,j} = P_{j+1,j\ max} \tag{4.67}$$

D'après les résultats expérimentaux obtenus dans la partie 3.3.3, nous savons que seule la dernière cellule (cellule 5) nécessite d'avoir une masse minimale pour que les particules avancent vers la cellule 6 qui représente la sortie du mélangeur : ($M_{min5} = 40$) ; les autres cellules (de 1 à 4) n'ont pas de masse minimale ($M_{minj} = 0$). Ainsi, en utilisant l'équation 4.66, nous pouvons exprimer les débits internes associées à chaque cellule par les expressions suivantes :

- pour la cellule 1 :

$$Qout_1(n) * \Delta t = a_1 * Mc_1 * (Mc_1(n) + \Delta F_1(n)) \tag{4.68}$$

$$avec \quad a_1 = \frac{P_{21max}}{Mr_1} \quad et \quad P_{21max} = \frac{Q * \Delta t}{Mr_1 + Q * \Delta t}$$

- pour les cellules 2 à 4 :

$$Qout_i * \Delta t = a_i * Mc_i^2 \tag{4.69}$$

$$avec \quad a_i = \frac{P_{i+1,imax}}{Mr_i} \quad et \quad P_{i+1,imax} = \frac{Q * \Delta t}{Mr_i}$$

-pour la cellule 5 :

$$Qout_5 * \Delta t = a_5 * Mc_5(Mc_5 - M_{min5}) \tag{4.70}$$

$$avec \quad a_5 = \frac{P_{65max}}{Mr_5 - M_{min5}} \quad et \quad P_{65max} = \frac{Q * \Delta t}{Mr_5}$$

Ces relations empiriques (4.68, 4.69 et 4.70) sont basées sur l'existence d'une éventuelle linéarité entre $P_{i+1,i}$ et M_i . La validation de cette hypothèse peut être vérifiée en comparant les débits intermédiaires mesurés pour différentes vitesses d'agitation avec ceux qui sont calculés empiriquement avec ces équations. Les résultats obtenus pour un débit d'alimentation de 40 kg/h sont présentés sur la figure 40. Seules les cellules 1, 2 et 5 sont présentées, les cellule 3 et 4 (similaires à la cellule 2) sont présentées en annexe 5.

L'évolution des probabilités de transition en fonction des masses retenues dans chaque cellule pendant la phase de démarrage est également présentée dans cette même figure 40. Les valeurs de ces probabilités sont calculées par les équations empiriques 4.66 et 4.67.

La comparaison entre les résultats calculés empiriquement et ceux qui sont mesurés expérimentalement (du débit de sortie en fonction de la masse retenue), nous permet de nous conforter dans notre approche.

On conclut ainsi que pendant la phase de démarrage, les débits internes ($Qout_i$) «apparents » dépendent des masses retenues dans chaque région du mélangeur selon un polynôme du second ordre. Pour un débit fixe, les paramètres de ce polynôme sont reliés empiriquement à la vitesse d'agitation N. De plus, une fois que la masse accumulée en cellule 5 atteint une certaine masse minimale (M_{min5}), le débit de sortie commence à augmenter (pendant la phase de démarrage) selon cette même loi polynomiale.

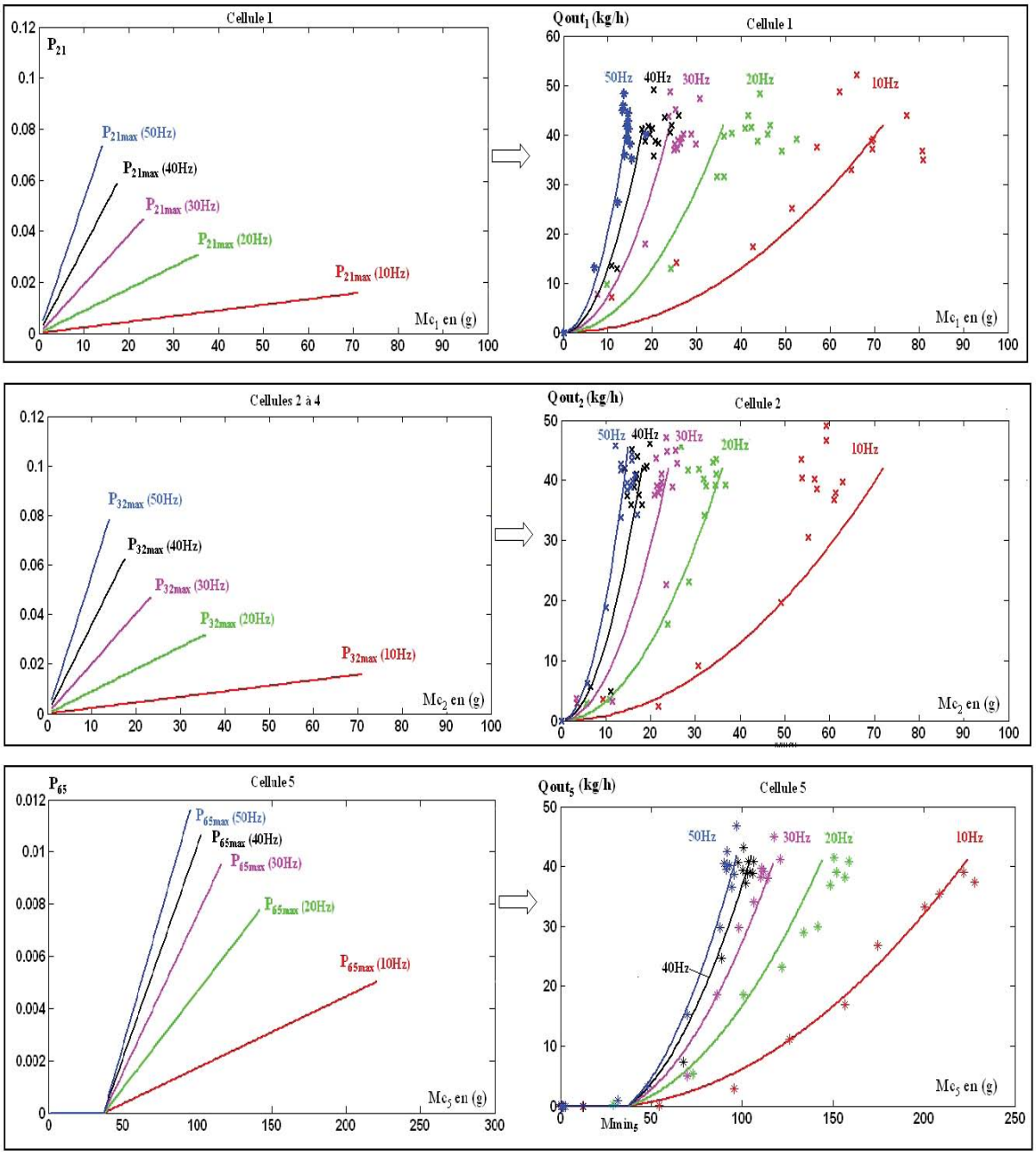


FIGURE 4.25 – Évolution des débits intermédiaires $Qout_i$ en fonction des masses retenues Mc_i, pendant le démarrage, pour différentes vitesses N ($\Delta t = 0.1s$)

4.3.2.3 Confrontation modèle non homogène- expérience

Pour valider ce modèle non homogène, nous présentons quelques exemples de simulations que nous comparons au résultats expérimentaux obtenus pour différentes vitesses d'agitation (figure 4.26). D'autres exemples sont présentés en annexe 7.

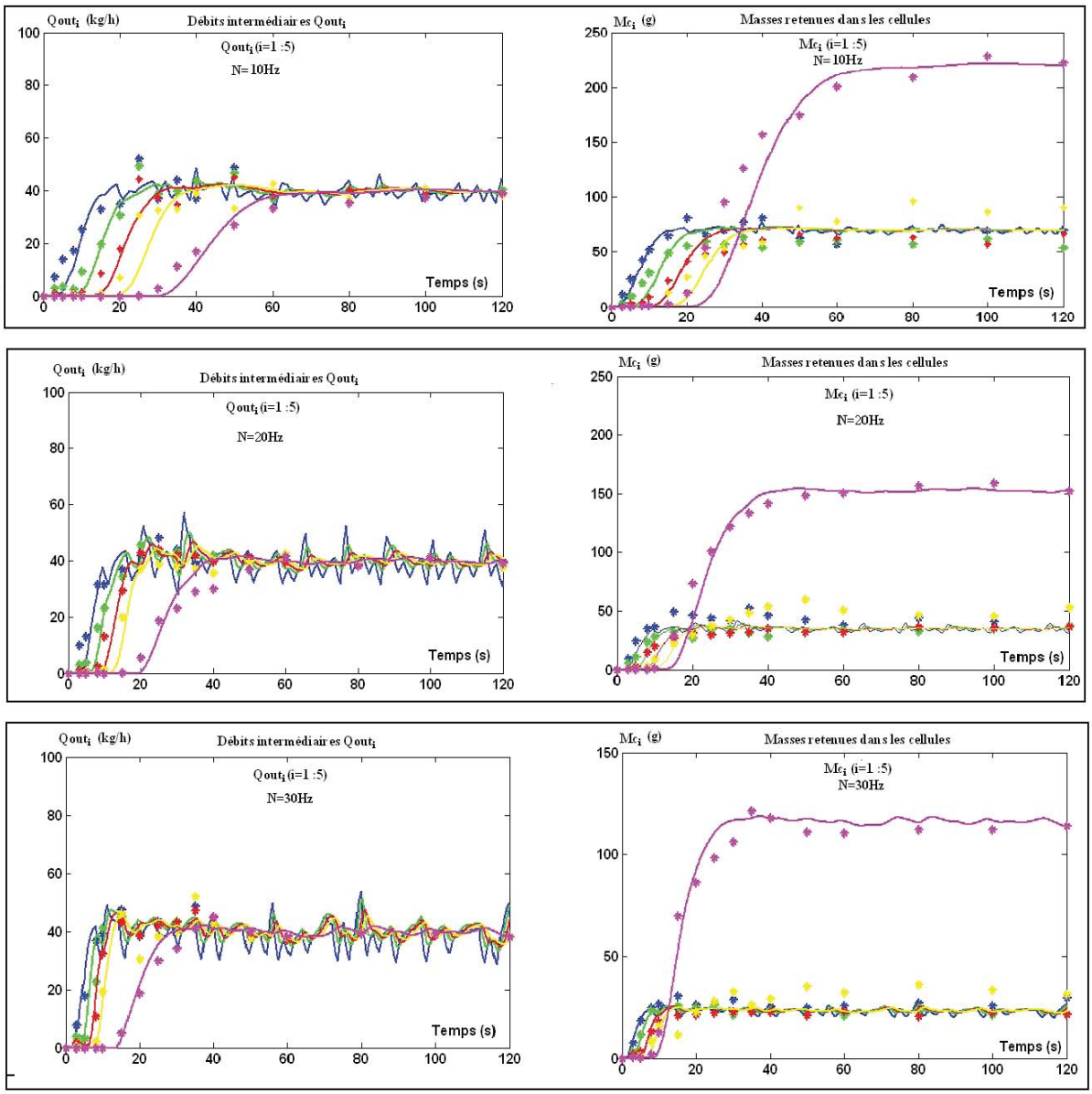


FIGURE 4.26 – Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage et en régime permanent pour différentes N

A travers ces différents exemples, nous comparons les débits internes $Qout_i$ et les masses retenues Mc_i obtenus par des simulations qui sont basées sur la chaîne de Markov (l'équation 4.62) avec des mesures réalisées pendant le démarrage et en régime permanent.
D'après l'ensemble des résultats obtenus, nous remarquons que le modèle markovien parvient à décrire convenablement la dynamique du mouvement des poudres à l'intérieur du mélangeur quel que soit le régime de fonctionnement, stationnaire ou transitoire de démarrage.

Il reste encore à savoir à quel point cette approche peut être envisagée pour décrire la dynamique du système dans le cas d'une brusque perturbation, comme dans celui d'un changement de vitesse d'agitation N.

Sur la figure 4.27, nous présentons deux exemples de comparaison entre les simulations et les résultats expérimentaux obtenus pour un échelon négatif de la vitesse de 50 à 20 Hz, et pour un échelon positif de 20 à 50 Hz. Dans ces deux exemples l'alimentation se fait avec un débit de 30kg/h.

Notons ici que pour calculer la matrice des probabilités de transition, il a fallu estimer les masses retenues dans les 5 cellules en régime permanent. Pour cela, les équations obtenues à 40 kg/h (3.28 et 3.29) ont été étendues au cas d'un débit de 30 kg/h :

Pour les cellules 1 à 4 :

$$Mc_i = \frac{k'_i * Q}{N} \tag{4.71}$$

avec $k'_i = 64g^{-1}$ et Q en (g/s).

Pour la cellule 5 :

$$Mc_i = \frac{k'_5 * Q}{N} + b_5 \tag{4.72}$$

avec $k'_5 = 141s^{-1}$ et $b_5 = 60g$ et Q en (g/s).

Les simulations présentées dans ces exemples illustrent l'évolution des masses retenues dans les cellules (Mc_i), du débit de sortie ($Qout$) et de la masse retenue totale (appelée M_1) qui est calculée par :

$$M_1(t) = \sum_{i=1}^{5} Mc_i(t)$$

Comme le montre la figure 4.27, la comparaison entre les simulations de la masse retenue totale et du débit de sortie avec les mesures réalisées permet de vérifier la capacité de ce modèle à prévoir l'effet d'un échelon de vitesse N sur la dynamique du système.

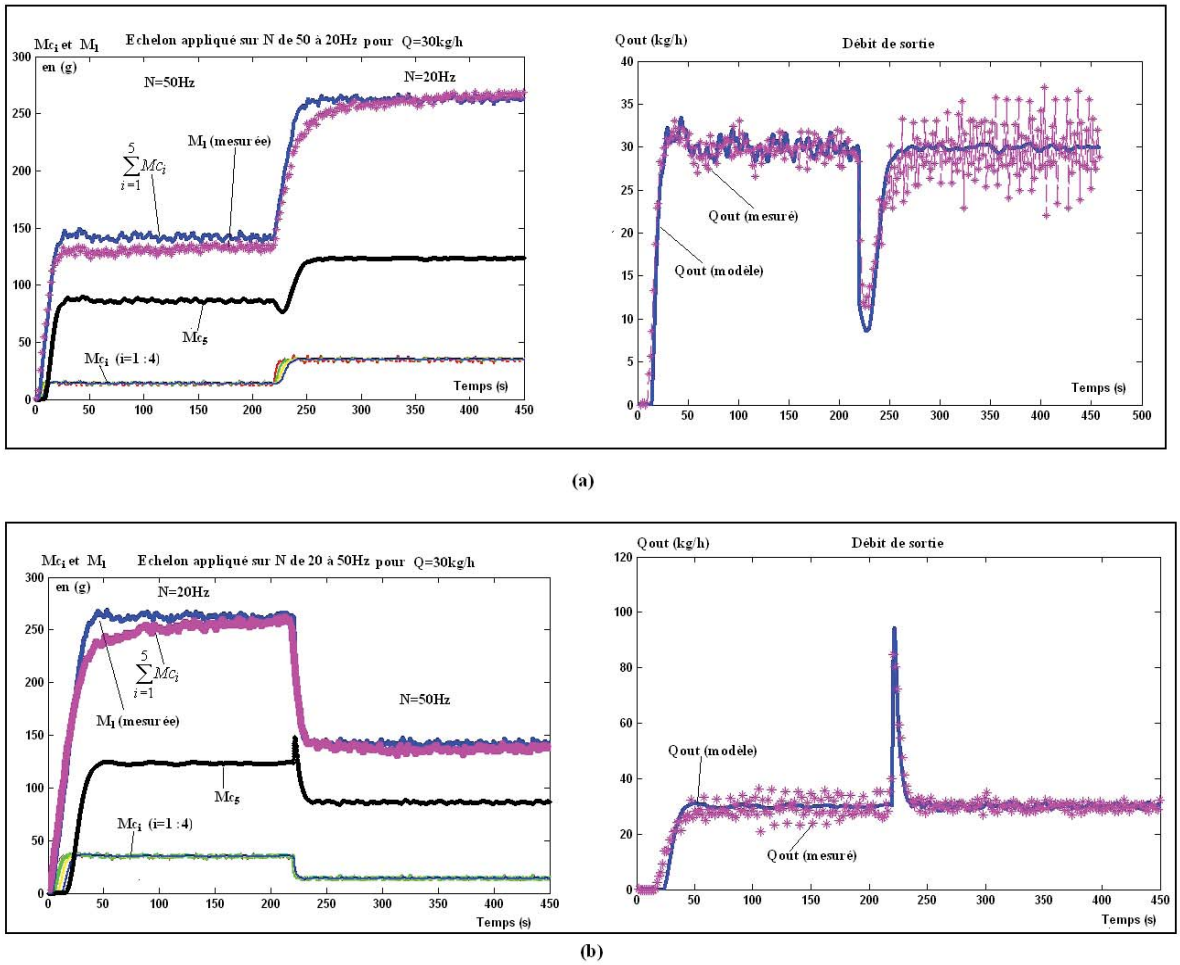


FIGURE 4.27 – Effet d'un échelon de N sur l'évolution du système : confrontation expérience-modèle (a) échelon de 50 à 20 Hz (b) échelon de 50 à 20 Hz (Q=30kg/h)

D'après l'ensemble des résultats obtenus dans cette partie, nous pouvons dire qu'à chaque instant t, la connaissance des conditions opératoires (Q,N) et des masses retenues dans les différentes zones du mélangeur, permet de déterminer à cet instant la matrice des probabilités de transition entre les différentes cellules. Par conséquent, l'évolution du système dans le temps peut être prédite par une chaîne de Markov qui correspond à un modèle mésoscopique non homogène.

En particulier si la masse retenue dans une cellule i est inférieure à la masse seuil Mr_i, l'écoulement dans cette cellule se fait en régime transitoire. Dès que la masse retenue dans la cellule i atteint la masse seuil Mr_i, elle devient stable. Ainsi, le débit associé à cette cellule atteint sa valeur maximale et cesse de varier ($Qout_i = Q$). Finalement, quand toutes les cellules atteignent un niveau de remplissage fixe, le régime permanent est établi dans l'appareil selon une chaîne de Markov homogène (P=cste)

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les modèles développés pour décrire l'agitation d'un produit "pur" (couscous moyen) pendant les phases permanentes et transitoires du procédé. En particulier, un premier modèle markovien simplifié a été développé pour décrire l'écoulement des poudres pendant l'agitation. Le principal paramètre du modèle utilisé est une matrice des probabilités de transition identifiée expérimentalement. Les résultats obtenus montrent que lorsque la masse retenue dans le mélangeur est supérieure à une valeur seuil, l'écoulement est établi en régime permanent selon une chaîne de Markov homogène. Cependant, si la masse retenue est inférieure à la masse seuil, le régime d'écoulement est décrit par une chaîne de Markov non linéaire caractérisée par une dépendance de la probabilité de transition à l'état présent du système, à la vitesse d'agitation et au débit d'alimentation. Les limites de ces régimes, linéaire ou non linéaire, sont déterminées à partir des variables opératoires (Q,N) par des relations empiriques.

Sur la base des connaissances acquises à partir de ce premier modèle, un second modèle Markovien a été développé pour décrire l'état interne du système, en termes de répartition des particules à l'intérieur du mélangeur et de débits internes "apparents" quel que soit le régime.

La modélisation du procédé de mélange en continu dans les régimes permanent, et surtout transitoire, est une étape indispensable avant la conception d'un système de commande de ce procédé. Dans la perspective de développer une stratégie de commande avancée, qui permettrait d'automatiser l'installation de mélange de poudres en continu, un deuxième modèle doit être développé pour décrire l'homogénéité de mélange en fonction des paramètres opératoires (Q, N). C'est cet aspect que nous développerons dans le chapitre suivant. En particulier , nous chercherons à savoir a quel point l'approche de modélisation développée ici pour décrire l'agitation, en régime de fonctionnement permanent et transitoire, peut être envisagée pour décrire l'écoulement et l'homogénéité d'un mélange de différents produits granulaires.

5

Étude des mélanges

Introduction

Après avoir analysé l'influence des différents paramètres opératoires du procédé sur l'agitation des poudres en continu nous allons nous intéresser dans ce chapitre à l'effet de l'action de l'agitation sur la qualité des mélanges obtenus.

Dans un premier temps nous examinons l'effet de la vitesse du mobile d'agitation sur la rétention des particules de chaque constituant en mélange, dans un but de trouver un lien entre l'évolution de la composition du mélange et la masse retenue des particules des produits purs, régie par cette vitesse d'agitation. Nous examinons ensuite l'effet de l'échelle d'observation et de la vitesse d'agitation sur l'évolution de la qualité du mélange durant les phases transitoires et en régime permanent. Pour cela, des expériences seront réalisées avec deux formulations différentes : un mélange de 50/50 et un mélange de 12,5/87,5. Notons que l'effet du débit ne sera pas examiné dans ce travail, les deux mélanges étudiés étant réalisés avec le même débit total d'alimentation Q=40kg/h.

La dernière partie de ce chapitre sera dédiée à la modélisation de la composition du mélange en régime permanent et à son évolution durant les phases transitoires à partir du modèle markovien.

5.1 Caractérisation du mélange à l'intérieur du mélangeur

5.1.1 Répartition massique

Dans cette partie nous examinons la répartition des particules des mélanges étudiés à l'intérieur du mélangeur, à travers la détermination des masses retenues dans les différentes cellules. En pratique, deux doseurs alimentent en continu le mélangeur en particules de couscous moyen de couleur claire et en particules de couscous fin coloré en noir. Selon la vitesse d'agitation utilisée, les masses retenues en chaque constituant du mélange peuvent être plus ou moins importantes.
Nous avons opté pour ce mélange, composé de deux produits similaires et ayant presque les mêmes caractéristiques à l'exception de la taille des particules, car nous voulons savoir s'il est possible d'appliquer les connaissances acquises en agitation du couscous moyen sur l'agitation du mélange. Pour cela, nous devrons comparer le comportement du mélange étudié à celui des produits purs qui le composent.

Mélange équi-massique (mélange 1)

Dans un premier temps, nous nous intéressons à un mélange équi-massique. Chaque constituant est introduit dans la chambre de mélange avec un débit de $20 kg.h^{-1}$. La distribution massique des particules de ce mélange dans les différentes régions (ou cellules) du mélangeur a été mesurée en régime permanent pour différentes vitesses d'agitation (voir partie 2.3.2).

La masse retenue du mélange dans chaque cellule est comparée à celle retenue dans le cas de l'agitation des deux produits purs (couscous moyen et couscous fin) dans les mêmes conditions. Sachant que les masses retenues dans les quatre premières cellules sont similaires, une seule cellule parmi ces quatre est présentée sur la figure 49 (a), les autres cellules étant présentées en annexe 8. A son tour, la cinquième cellule est présentée sur la figure 49 (b).

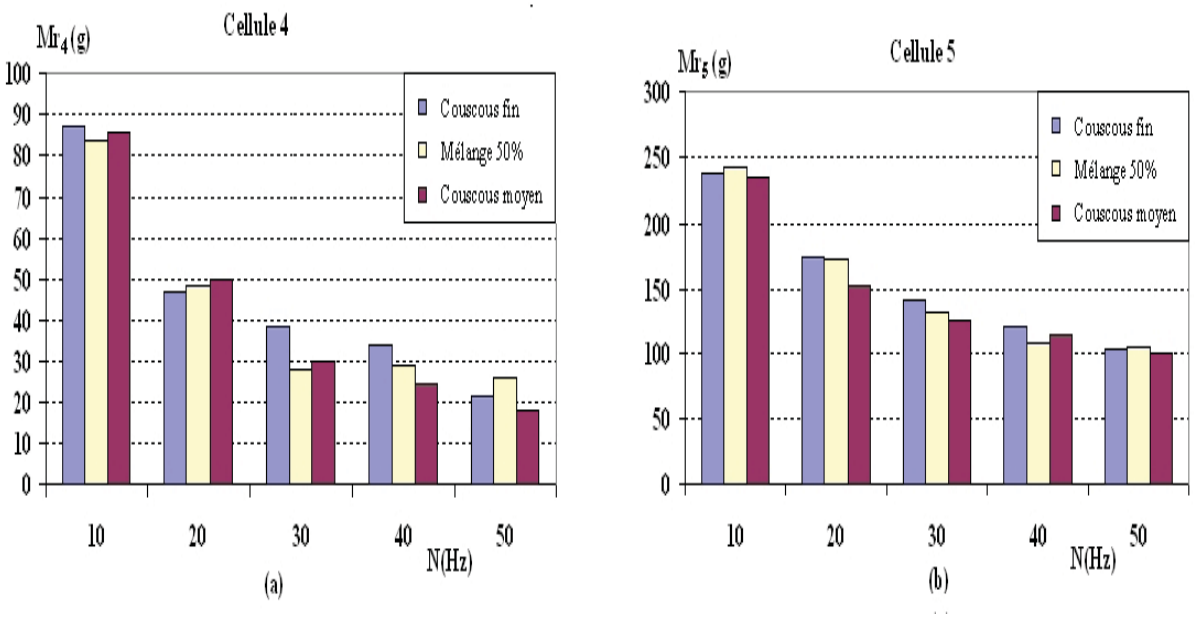


FIGURE 5.1 – Masses retenues du mélange à 50% comparées aux masses retenues des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$)

D'après les résultats obtenus, nous remarquons que pour le même débit d'alimentation ($40kg.h^{-1}$), la distribution des particules de mélange est très similaire à celle des produits purs (couscous moyen et couscous fin).

En particulier, malgré l'existence d'une légère différence entre les masses retenues des deux produits purs (couscous moyen et couscous fin), nous pouvons considérer que les deux produits purs ont des caractéristiques de coulabilité très proches, la différence observée étant relativement minime.

Ainsi, il est vraisemblable qu'en mélangeant ces deux produits, nous obtenons une dynamique d'écoulement similaire aux produits purs, et une masse retenue du mélange comparable avec celles de ses constituants (voir figure 49).

Mélange surdosé en couscous moyen (mélange 2)

Les résultats obtenus ici pour ce mélange à 50% sont confirmés par d'autres expériences réalisées à partir d'un autre mélange de même débit total, mais de composition différente (12,5% de couscous fin et 88,5% de couscous moyen). La figure 5.2 illustre une comparaison entre les masses retenues de ce deuxième mélange et celles des produits purs dans les cellules 4 et 5. Les autres cellules sont représentées en annexe 9.

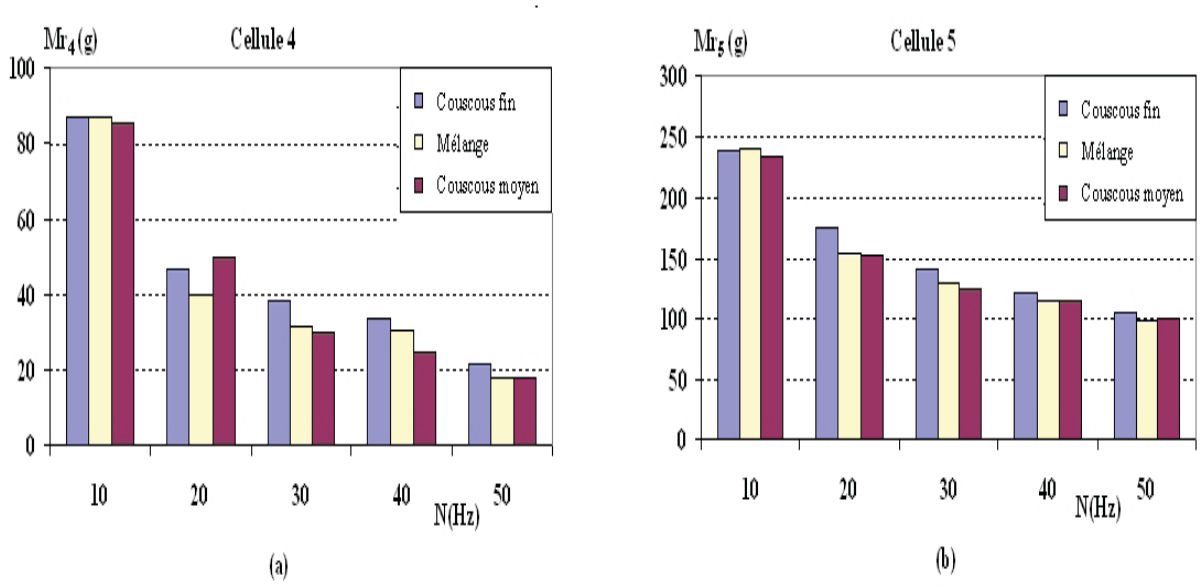


FIGURE 5.2 – Masses retenues du mélange à 12.5% du couscous fin comparées celles des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$)

La répartition des particules de ce mélange précis peut aussi être décrite par la même relation empirique développée précédemment, dans le chapitre 3 (équations 3.28 et 3.29), pour décrire le masses retenues Mr_i du produit pur (couscous moyen), et qui s'écrit, pour un débit de 40kg/h, sous la forme suivante :

$$Mr_i = \frac{k_i}{N} + b_i$$

Les constantes k_i et b_i associées à chaque cellule i ont été identifiées dans le chapitre 3. Dans la suite de ce travail, les masses retenues du mélange dans les différentes cellules i seront estimées selon cette précédente équation.

5.1.2 Temps de passage des produits purs et du mélange

L'acquisition des données des masses retenues dans les différentes cellules donne un accès direct aux temps de passage du mélange :

$$\tau = \frac{Mr}{Qout} = \frac{\sum_{i=1}^{5} Mr_i}{Qout}$$

Mr_i masse retenue du mélange dans la cellule i ; Mr masse retenue totale ; Qout débit de sortie.

Le tableau 5.1 illustre une comparaison entre le temps de passage des produits purs et ceux des mélanges, pour différentes vitesses d'agitation et pour un débit total de $40 kg.h^{-1}$.

TABLE 5.1 – Temps de passage du mélange comparé au temps de passage de ses composés purs, pour différentes vitesses N

N(Hz)	$\tau_{couscous\ fin}$	$\tau_{couscous\ moyen}$	$\tau_{mélange}$ à 50%	$\tau_{mélange}$ à 12,5%
10	49,59	48,74	48	48,23
20	30,86	27,70	30,54	29,22
30	23,58	20,77	20,56	20,54
40	19,33	16,80	17,91	18,28
50	16,08	14,175	16,57	14,4

On constate que le temps de passage du couscous fin est légèrement supérieur à celui du couscous moyen, même si la différence peut être considérée comme négligeable. En comparant les temps de passage des mélanges étudiés, nous remarquons qu'ils sont globalement compris entre les temps de passage des deux produits purs, et qu'ils ne sont pas très sensible à la composition. Ceci est principalement dû aux propriétés d'écoulement des deux constituants qui sont similaires.

Par ailleurs, nous constatons que le temps de mélange est d'autant plus faible que la vitesse est importante. Ceci signifie qu'à chaque fois que nous chercherons à améliorer la dispersion des particules en augmentant la vitesse d'agitation, le temps de passage sera réduit.

5.1.3 Composition du mélange à l'intérieur du mélangeur

Il s'agit de savoir comment les deux produits se distribuent à l'intérieur du mélangeur et quelle est la teneur de chaque constituant dans chaque cellule. Pour cela, nous avons procédé à des mesures des masses retenues de chaque produit dans les différentes cellules du mélangeur en régime permanent. A partir de ces mesures, nous avons pu déterminer la composition massique de chaque cellule par l'équation 5.1

$$Xf_i = \frac{Mf_i}{Mf_i + Mm_i} \tag{5.1}$$

Xf_i est la fraction massique de couscous fin dans la cellule "i" ; Mf_i etMm_i sont respectivement les masses de couscous fin et de couscous moyen dans cette cellule " i" .

La figure 5.3 montre les résultats obtenus dans le cas du premier mélange étudié (mélange à 50%) selon la vitesse d'agitation N utilisée.

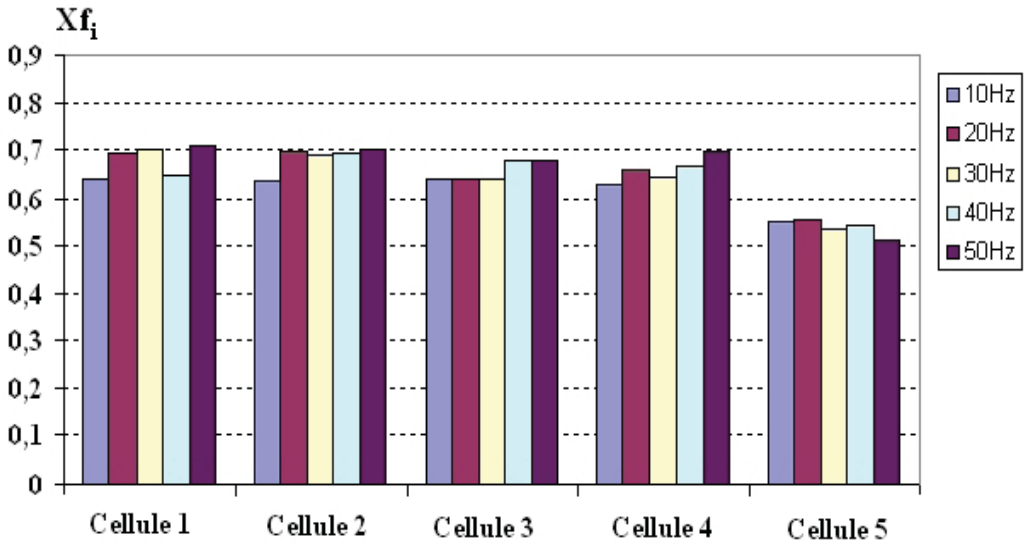


FIGURE 5.3 – Teneur en couscous fin dans les différentes cellules du mélangeur : cas du mélange 1 en régime permanent ; $Q = 40 kg.h^{-1}$

D'après ces résultats, nous remarquons que la composition de chaque cellule est différente de celle du mélange étudié. En d'autres termes, la composition du mélange à l'intérieur du mélangeur ne correspond pas à la composition nominale. Plus particulièrement, nous remarquons que la teneur en couscous fin dans les 4 premières cellules avoisine les70% de la masse retenue dans chacune d'entres elles. Ce n'est qu'une fois que les particules arrivent à la dernière zone du mélangeur (ou cellule 5) que la composition du mélange commence à se rapprocher de la composition moyenne. La ségrégation observée dans les cellules précédentes est moindre, le couscous fin constituant environ 51 à 56% de la composition du mélange retenue dans cette dernière cellule.

Finalement, la fraction de couscous fin dans toutes les régions du mélangeur (cellules) est supérieure à celle du couscous moyen. Ceci signifie que dans le cas de ce mélange, les particules de plus petites tailles ont des masses retenues supérieures à celles des grosses.
Par ailleurs, on note que la composition de toutes les cellules, représentant le mélangeur, n'est pas très sensible à la vitesse d'agitation N.
Les résultats obtenus dans le cas du mélange équi-massique, sont confirmés par le deuxième

mélange étudié (figure 5.4).

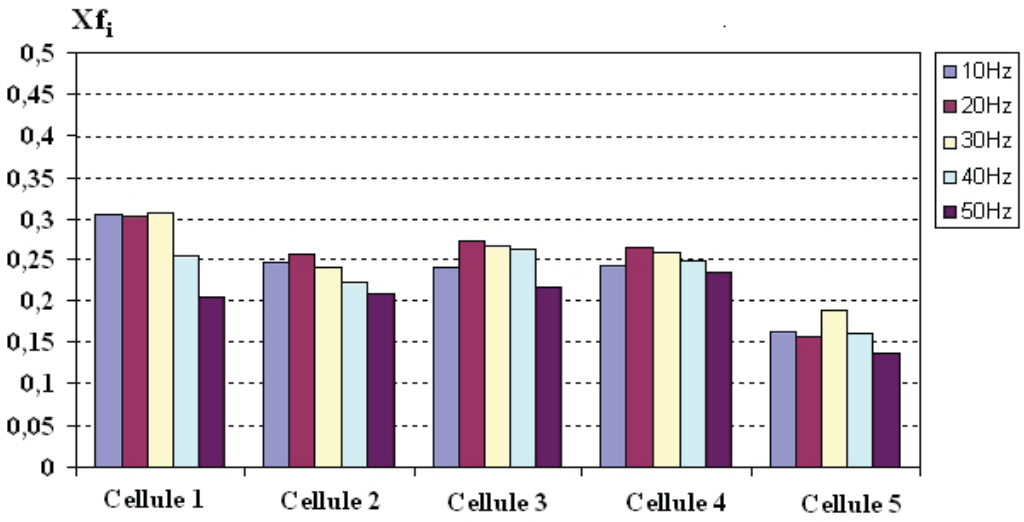


FIGURE 5.4 – Teneur en couscous fin dans les différentes cellules du mélangeur : cas du mélange 2 en régime permanent ; $Q = 40 kg.h^{-1}$

Nous remarquons à nouveau que la composition massique des cellules en couscous fin dépasse largement la composition du mélange réalisé (12,5%). En particulier, les quatre premières cellules contiennent entre 25 et 30% de ce produit. Ce n'est qu'au niveau de la sortie du mélangeur (en cellule 5) que la fraction du couscous fin se voit réduite et se rapproche de celle attendue en sortie du mélangeur (12.5%).

5.1.4 Détermination des masses retenues limites

Par analogie au cas de l'agitation d'un produit pur, nous cherchons ici à déterminer les deux masses retenues limites, de chaque constituant dans chaque cellule, qui permettent de définir les régimes d'écoulement transitoire et permanent (voir les parties 3.2.2 ; 3.3.3 et 4.3.2). Il s'agit de la masse minimale dans une cellule "i" à partir de laquelle les particules commencent à avancer vers la cellule suivante "i+1", et de la masse seuil à partir de laquelle le régime permanent est atteint dans une cellule donnée.

Soit Mrm_i et Mrf_i respectivement les masses retenues en régime permanent du couscous moyen et du couscous fin dans la cellule" i". Durant ce régime, la masse retenue de chaque constituant dans une cellule donnée peut être calculée à partir de la masse retenue totale dans cette cellule selon l'équation suivante :

$$Mrf_i = Xf_i * Mri \quad et \quad Mrm_i = (1 - Xf_i) * Mr_i \tag{5.2}$$

Xf_i est la fraction du couscous fin dans la cellule "i".
Ainsi, en utilisant les équations 3.28 et 3.29, il est possible d'exprimer les masses retenues de chaque constituant dans les différentes cellules du mélangeur en fonction des conditions opératoires (Q,N) :

$$Mrf_i = Xf_i * (k_i * \frac{Q}{N} + b_i) \quad et \quad Mrm_i = (1 - Xf_i) * (k_i * \frac{Q}{N} + b_i) \tag{5.3}$$

Notons ici que, pour les quatre premières cellules, nous pouvons considérer qu'en moyenne $Xf_i = 0,65$ dans le cas du mélange 1 (mélange à 50% de couscous fin), et $Xf_i = 0,25$ pour le mélange 2 (mélange à 12%). Pour la cinquième cellule, sa composition se rapproche de la composition du mélange total : $Xf_5 = 0,54$ pour le mélange 1 et $Xf_i = 0,15$ pour le mélange 2.

Quant à la masse minimale, nous remarquons d'après les résultats expérimentaux qu'elle n'existe qu'en cinquième cellule du fait que la surface de sortie du mélangeur est petite, ce qui conduit les particules à heurter l'extrémité du mélangeur et les empêche de le quitter librement. Dans les 4 autres cellules, les masse minimales (que nous appelons ici $Minf_i$ pour le couscous fin en cellule i et $Minm_i$ pour le couscous moyen) sont nulles :
pour $1 \leq i \leq 4$ $\qquad Minf_i = Minm_i = 0$

Sur la figure 5.5, nous avons représenté l'évolution de la masse minimale dans la 5ème cellule en fonction de la vitesse d'agitation dans les deux cas étudiés.

Les résultats obtenus sont similaires à ceux qui sont obtenus dans le cas de l'agitation d'un produit pur. Comme nous pouvons le constater, la vitesse d'agitation ne semble pas influencer la masse minimale de manière considérable. Par conséquent, nous considérerons dans la suite de ce travail que pendant la phase de démarrage, quelle que soit la vitesse d'agitation, les particules commencent à quitter le mélangeur dès que la masse retenue dans la dernière cellule atteint environ 50g (valable pour un débit d'alimentation de 40kg/h).

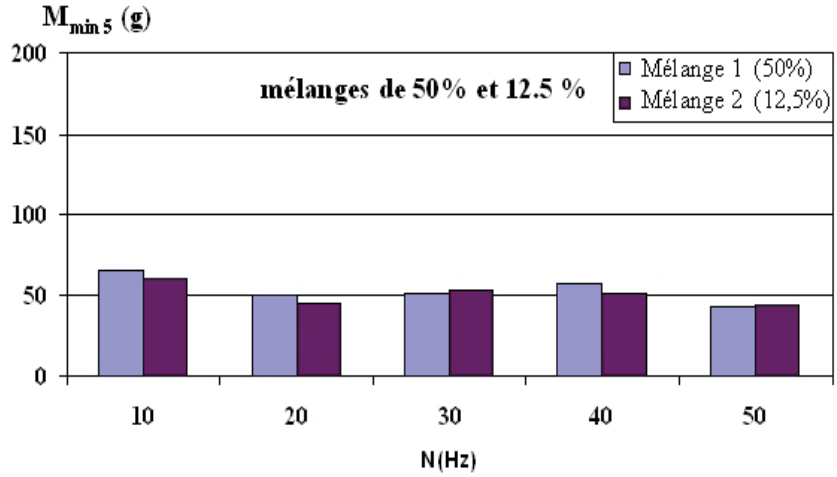


FIGURE 5.5 – Masse minimale dans la cellule 5 pour différentes vitesses N

Pour connaître la masse minimale de chaque constituant, nous avons mesuré la composition de la masse minimale retenue dans la cellule 5 au moment ou les premières particules apparaissent en sortie. Comme nous pouvons le constater sur la figure 5.6, le mélange représentant la masse minimale dans la cellule 5 n'est pas homogène car la teneur en couscous fin est inférieure à celle du mélange total.

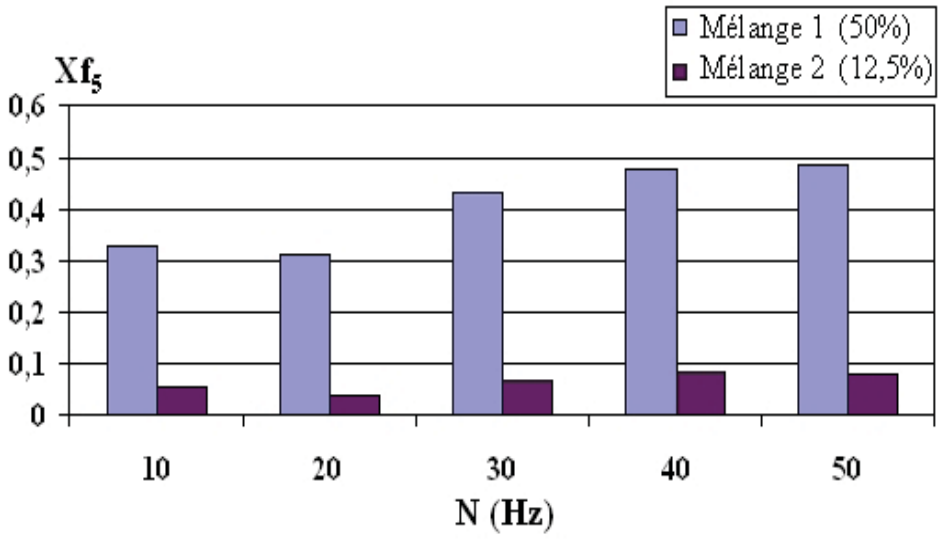


FIGURE 5.6 – Composition de la masse minimale dans la cellule 5 pour différentes vitesses N

Ces résultats permettent de conclure que les particules fines n'ont pas la même vitesse d'avancement dans l'appareil que les plus grosses. En effet, si les particules de couscous moyen sont majoritaires en sortie de l'appareil (dans cette phase de démarrage), ceci signifie

que les particules de couscous fin sont encore retenues dans les premières cellules à cet instant.
Finalement, précisons que pour simuler le démarrage du procédé par la chaîne de Markov, nous n'avons pas besoin de connaître la masse minimale de chaque constituant, il suffit de connaitre la masse minimale totale $Mmin_5$ puisqu'en utilisant la chaîne de Markov, il est possible de déterminer théoriquement la masse minimale de chaque composé.

5.2 Effets de la l'agitation, de l'échelle d'observation et de la composition sur l'homogénéité d'un mélange binaire

Le contrôle en ligne de l'homogénéité de mélange a été réalisé par la technique d'analyse d'images décrite au chapitre 2. La démarche suivie consiste à filmer la totalité du mélange en sortie du mélangeur, et à analyser les images acquises pour déterminer la composition exacte du mélange en temps quasi réel.

La taille d'échantillon est un paramètre à prendre en compte dans cette étude car un mélange qui est considéré comme non homogène à une petite échelle d'observation peut se transformer en un mélange parfaitement homogène si la fenêtre d'observation est agrandie. Pour cette raison, au cours de cette étude expérimentale, la qualité du mélange sera étudiée pour quatre tailles d'échantillons différentes. Une fois que l'échelle d'observation est choisie et que les échantillons sont analysés, l'homogénéité de mélange est déterminée grâce au coefficient de variation des teneurs en couscous fin dans les échantillons filmés. Ce coefficient est calculé en continu à partir de la variance et de la composition moyenne sur un nombre bien déterminé d'échantillons que nous appelons "m".

Dans cette étude, l'effet de la vitesse d'agitation, et celui de la composition du mélange sur l'efficacité du mélangeur et sa capacité à atteindre un bon degré d'homogénéité sera quantifié à partir des valeurs de coefficient de variation qui fournissent un élément de comparaison entre les différents mélanges obtenus.

5.2.1 Étude d'un mélange binaire de 50% de composition (Mélange 1)

5.2.1.1 Phase de démarrage et régime permanent

Effet de l'échelle d'observation

Nous nous intéressons ici à l'évolution de la composition massique du mélange équimassique pendant la phase de démarrage du procédé ainsi qu'en régime permanent. La composition du mélange est représentée à travers l'évolution de la teneur en couscous fin ($X_f(t)$). Les expériences sont réalisées avec différentes vitesses d'agitation, et les résultats obtenus sont traités en fonction des échelles d'observation souhaitées.

La figure 5.7 illustre quelques exemples expérimentaux de l'évolution de la teneur en couscous fin pour différentes échelles d'observation et différentes vitesses d'agitation.

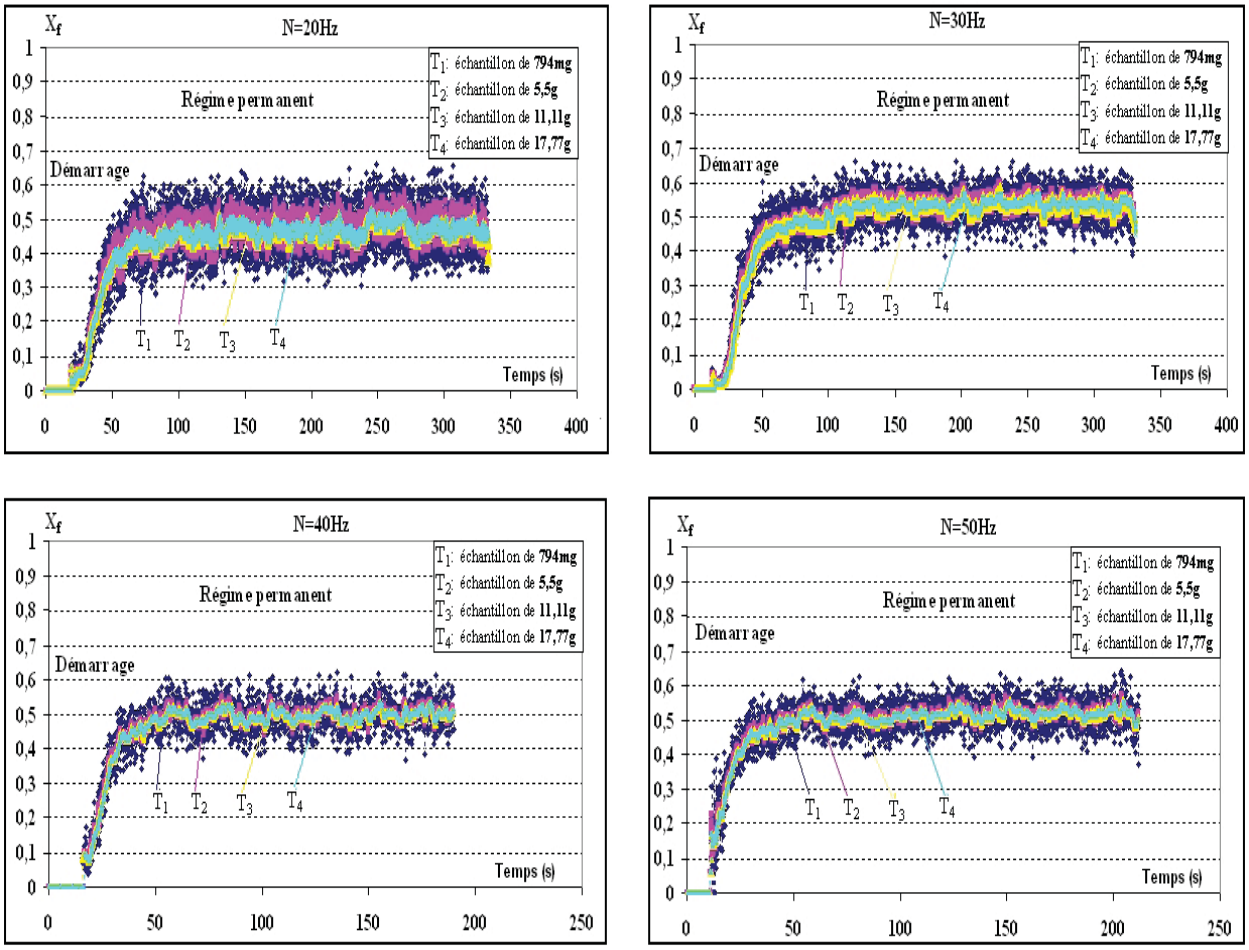


FIGURE 5.7 – Évolution de la composition du mélange 1, à différentes échelle d'observations et différentes vitesses d'agitation, en cours du démarrage et en régime permanent

Comme on peut le constater, la taille d'échantillon a un effet important sur le degré des fluctuations observées au niveau de la composition du mélange. On peut confirmer que l'échelle d'observation influence notre jugement sur la qualité du mélange obtenu car l'amplitude de ces fluctuations représente de manière indirecte la variance du mélange. Pour des tailles d'échantillons élevées (courbes bleu clair), les fluctuations sont considérablement réduites. Ainsi, un mélange qui est considéré non homogène pour des échantillons de quelques milligrammes (courbe bleu foncé) peut se transformer en un mélange homogène si l'échelle d'observation est élargie à une taille de quelques grammes.

L'amplitude de la variation de ces fluctuations peut être quantifié par le calcul de la variance et du coefficient de variation. A chaque instant t, ces paramètres peuvent être calculés sur les m derniers échantillons analysés. Étant donné que nous avons réalisé un échantillonnage complet pour le mélange étudié, la valeur choisie de m permet de déterminer la taille du mélange total examiné à chaque instant. Les résultats présentés dans la suite de ce travail seront calculés à partir d'une valeur de m égale à 200 échantillons. Ceci signifie que le mélange jugé à chaque instant t correspond à une masse totale de 16g.

Un exemple illustrant l'évolution de la composition de mélange X_f, de la composition moyenne $\bar{X}_f$, de la variance vraie σ^2 et du coefficient de variation Cv pendant la phase de démarrage et en régime permanent est présenté sur la figure 5.8. Cet exemple est réalisé avec une vitesse d'agitation N=40Hz. Les résultats présentés ici correspondent à une échelle d'observation d'une taille de 794mg par échantillon, et les standards pharmaceutiques sont présentés pour contraster ces résultats.

Notons ici que les échantillons analysés pendant la phase de démarrage ont une masse inférieure à celle de l'échelle d'observation choisie, car le débit de sortie augmente progressivement pendant cette phase transitoire et n'atteint sa valeur de référence qu'une fois le régime permanent établi. Ainsi, les images analysées pendant cette phase contiennent moins de particules qu'en régime stationnaire.

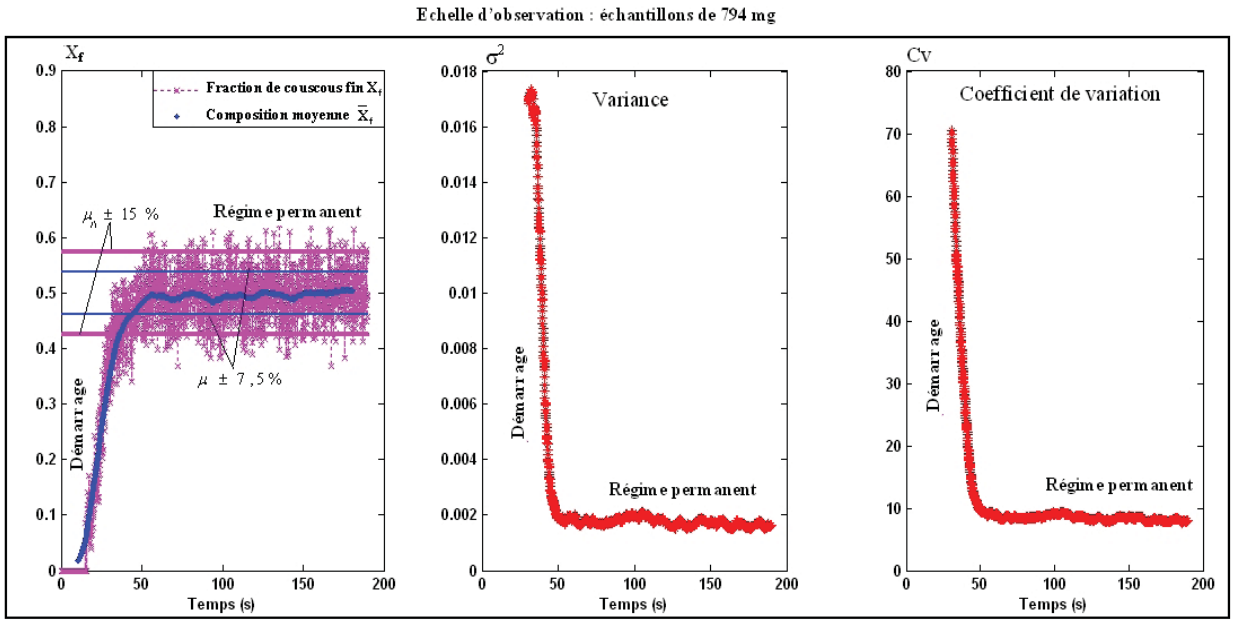


FIGURE 5.8 – Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent (échantillons de 794mg, $Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 40Hz$)

D'après les résultats de cet exemple, nous remarquons que pendant la phase de démarrage la qualité du mélange obtenue ne satisfait pas les critères exigés en terme des valeurs de X_f, $\bar{X}_f$, σ^2 et Cv . Ceci est dû principalement à la différence existant entre les taux de rétentions de chaque composant.
En particulier, pendant la phase de remplissage du mélangeur, les particules de grosses tailles sont moins retenues que les particules de petites tailles ce qui explique l'allure observée pour la teneur de couscous fin pendant cette phase.
Notons également qu'en se rapprochant du régime permanent la composition du mélange s'améliore progressivement. Ceci se traduit par une baisse continue de la variance et du coefficient de variation.

Une fois que les masses retenues des deux composés du mélange atteignent des niveaux stables, le régime permanent s'établit et l'accumulation des particules dans la chambre de mélange devient quasi inexistante. Dans ce régime stationnaire, le débit de sortie de chaque composé se rapproche de celui de l'entrée, avec une composition fluctuante autour de celle désirée.

Dans le cas présent, le mélange obtenu en régime permanent ne correspond pas aux critères d'acceptation. La composition moyenne mesurée, appelée $\bar{X}_f$, est bien dans l'intervalle de $[\mu + 7.5\%\mu;\ \ \mu - 7,5\%\mu]$, (avec, μ est la composition théorique), mais certains échantillons ont une composition massique de couscous fin hors de l'intervalle $[\mu + 15\%\mu;\ \ \mu - 15\%\mu]$ et le Cv est supérieur à 6% ($Cv = 8\%$).
Ceci n'est pas surprenant car l'échelle d'observation considérée est très faible (794 mg) et que nous avons pris tous les échantillons du mélange. En prenant uniquement quelques dizaines d'échantillons au hasard comme le font les industriels, le mélange a plus de chances de satisfaire ces critères d'homogénéité. De plus, en élargissant l'échelle d'observation, ce même mélange peut être jugé homogène à cette échelle.

L'effet de l'échelle d'observation sur le degré d'homogénéité est illustré sur la figure 52. Comme nous pouvons le constater, le mélange satisfait les critères d'acceptation pour des tailles d'échantillons plus grandes (5,5g, 11,11g et 17,77 g). Pour ces trois échelles d'observation, les fluctuations de la composition sont en effet réduites à moins de ±15% et le coefficient de variation est devenu inférieur à 6%, comme illustré sur le tableau 5.2.

TABLE 5.2 – Coefficient de variation pour différentes échelles d'observation, N=40Hz

Échelle d'observation	$T_1 = 794mg$	$T_2 = 5,5g$	$T_3 = 11,11g$	$T_4 = 17,77g$
Cv (%)	8	4	3	2,5

Par ailleurs, les résultats obtenus dans le cas de cet exemple réalisé à 40Hz ont été confirmés par d'autres expériences réalisées à d'autres vitesses d'agitation (voir annexe 10). Celles-ci montrent bien que la qualité du mélange n'a de sens que si l'échelle d'observation est préalablement bien définie.

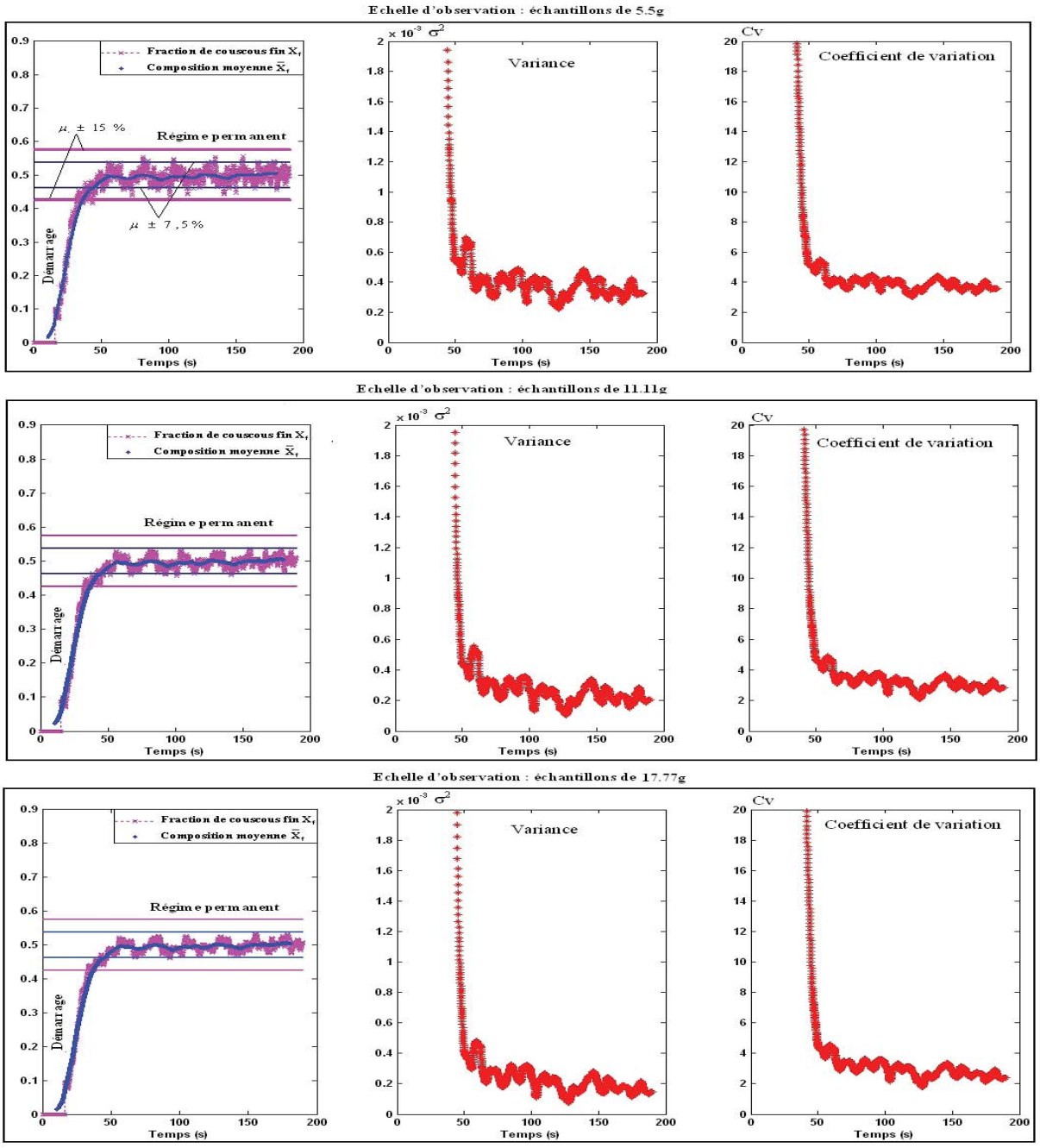


FIGURE 5.9 – Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 40Hz$)

Effet de la vitesse d'agitation

Dans cette partie nous nous intéressons à l'effet de la vitesse d'agitation N sur l'homogénéité du mélange. Dans un premier temps nous cherchons à comparer l'évolution de la composition du mélange pour différentes vitesses d'agitation. Sur la figure 5.10, nous présentons l'évolution expérimentale de la teneur en couscous fin pour différentes vitesses N.

L'échelle d'observation choisie ici correspond à des échantillons de taille : $T_2 = 5,5g$.

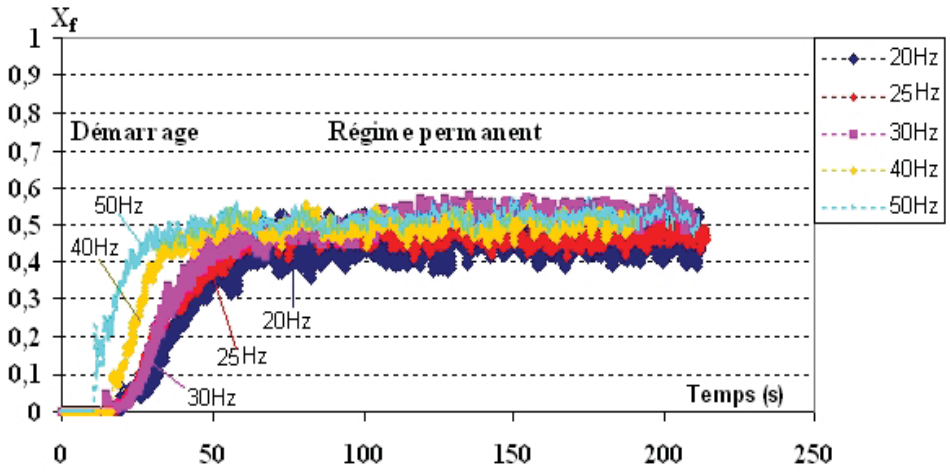


FIGURE 5.10 – Évolution de la composition du mélange 1 à différentes vitesse d'agitation ; échantillons de = $5,5g$; $Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$

D'après ces résultats, on voit que pour une taille d'échantillon donnée les fluctuations sont réduites lorsque la vitesse d'agitation est augmentée. L'amplitude de variation de ces fluctuations sera quantifiée ultérieurement par le calcul du coefficient de variation.
D'un autre côté, nous pouvons constater que plus la vitesse N est importante, plus la phase transitoire (démarrage) est courte, et donc plus la composition massique attendue (en régime permanent) est rapidement atteinte.

Par ailleurs, en représentant dans le même graphique l'évolution des fractions massiques des deux composés, on s'aperçoit que les premières particules quittant le mélangeur sont en majorité les plus grosses particules, comme illustré sur la figure 5.11.

Les résultats obtenus pendant la phase de démarrage rappellent que les deux composés du mélange n'ont pas le même taux de rétention. En effet, pendant cette phase transitoire, les petites particules (couscous fin) sont retenues d'avantage que les grosses. Ainsi, en régime permanent la composition à l'intérieur de l'appareil ne correspond pas forcément à celle attendue en sortie. Ces résultats permettent en quelque sorte de confirmer les données obtenues dans la partie 5.2.3.

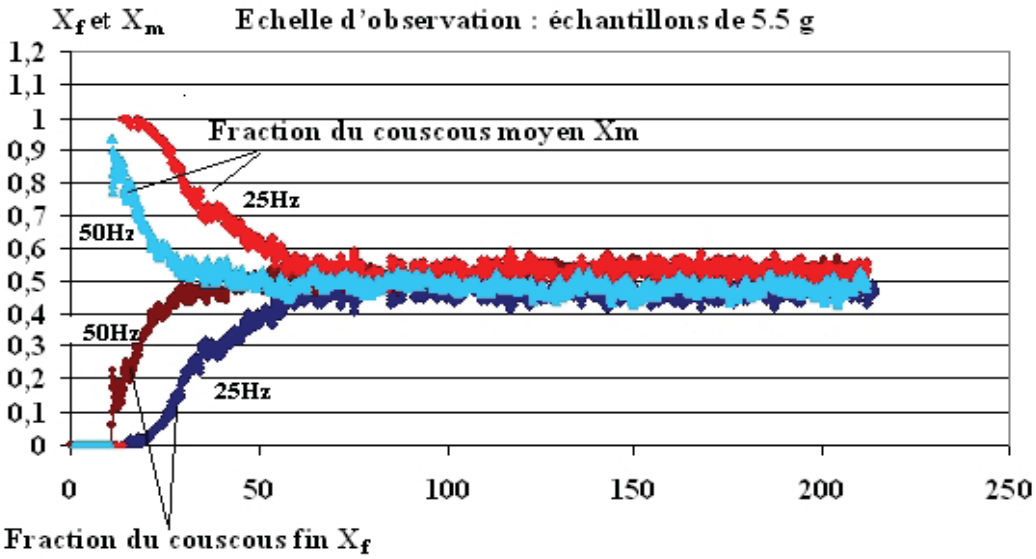


FIGURE 5.11 – Évolution des fractions massiques de couscous moyen et de couscous fin, durant le démarrage et en régime permanent, pour deux différentes vitesses ($Q = 40kg.h^{-1}$)

Afin de quantifier l'effet de la vitesse d'agitation N sur la qualité du mélange, nous calculons l'évolution du coefficient de variation Cv pour différentes vitesses d'agitation. Sur la figure 5.12, l'évolution de Cv est présenté pour différentes tailles d'échantillons (794mg, 5,5g, 11,11 et 17,77g). Pendant la phase de démarrage le coefficient de variation diminue rapidement avant d'atteindre une valeur quasi stable en régime permanent. Le tableau 5.3 permet d'avoir une idée sur les valeurs de Cv en régime stationnaire pour différentes vitesses d'agitation, ceci en négligeant l'amplitude des fluctuations observées.

TABLE 5.3 – Coefficient de variation en régime permanent, pour différentes vitesses et pour différentes échelles d'observation

Échelle d'observation	$T_1 = 794mg$	$T_2 = 5,5g$	$T_3 = 11,11g$	$T_4 = 17,77g$
Cv(%) : N=10Hz	16	8,5	7	4,5
Cv(%) : N=20Hz	14	8	3	3,5
Cv(%) : N=30Hz	7	3	3	2,5
Cv(%) : N=40Hz	8	4	3	2
Cv(%) : N=50Hz	7	3	3	2

D'après l'ensemble des résultats obtenus, nous constatons que, pour une faible échelle d'observation, l'effet de la vitesse d'agitation est considérable. En particulier, jusqu'à une taille d'échantillon de 5,5 g, les faibles vitesses d'agitation (vitesses testées 10, 15, 20Hz) produisent des fluctuations importantes de la composition du mélange. Ceci se traduit par

des valeurs élevées de Cv. Cependant, pour de plus fortes vitesses d'agitation (vitesses testées 25, 30, 40, 50 Hz) la dispersion des particules est meilleure, et par conséquent les valeurs de coefficient de variation sont nettement améliorées (réduites), l'amplitude des fluctuations diminuant avec N.

Dans ces deux régimes d'agitation correspondant à des faibles et à des plus fortes vitesses N, la valeur de Cv ne semble pas être influencée par la vitesse d'agitation. En particulier, pour toute vitesse N supérieure à 25Hz le Cv est quasiment le même, sa valeur dépendant principalement de l'échelle d'observation choisie :

pour T_1 : $7 \leq Cv \leq 8$ et pour T_2 : $3 \leq Cv \leq 4$

De même, pour des faibles vitesses la valeur de Cv est presque constante :

pour T_1 : $14 \leq Cv \leq 16$ et pour T_2 : $8,5 \leq Cv \leq 8$

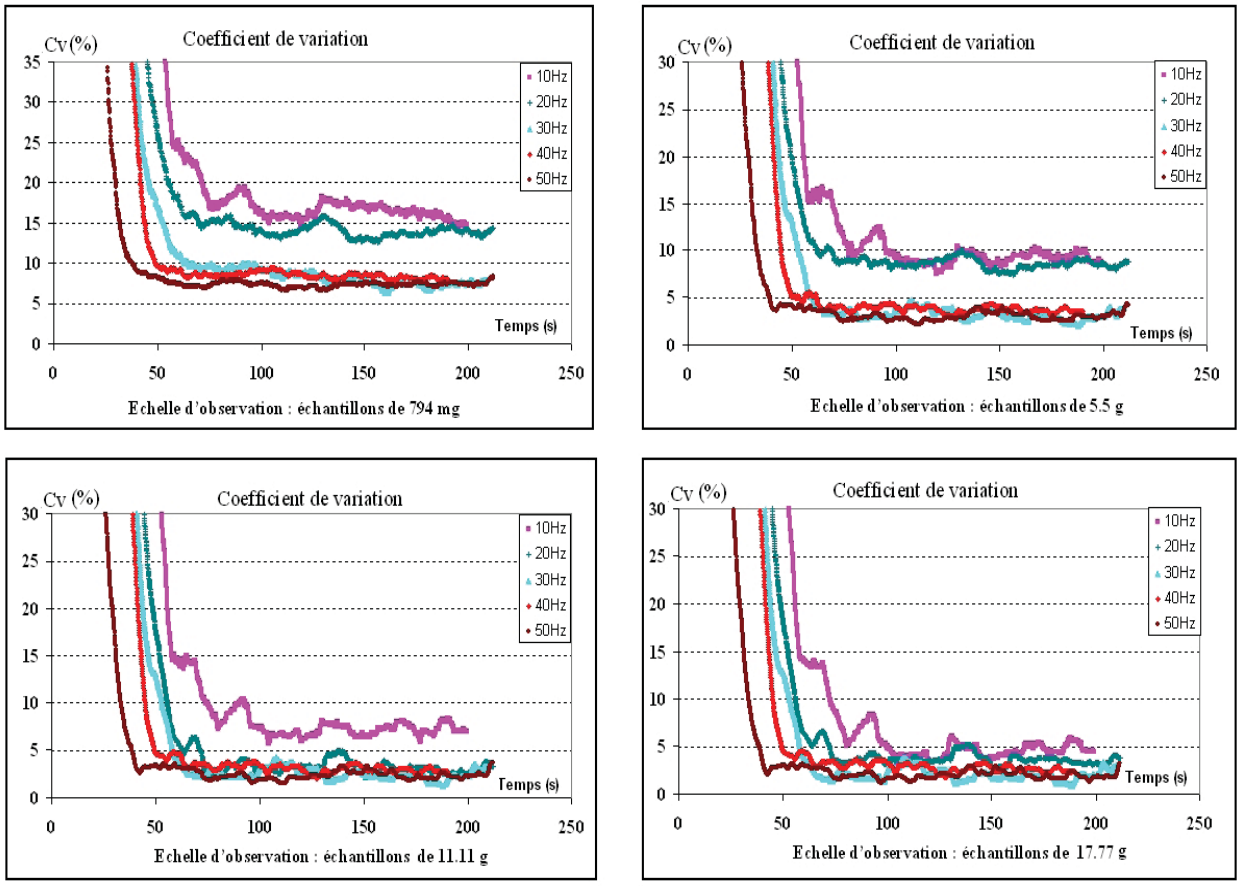


FIGURE 5.12 – Coefficient de variation CV pour différentes vitesses N et différentes échelles d'observation

Par opposition au cas précédent, si l'échelle d'observation est définie à partir des échantillons de "tailles" élevées (par exemple 11g et 17 g), on s'aperçoit que l'effet de l'agitation sur la variance (et par conséquente sur le Cv) diminue progressivement jusqu'à ce qu'il devienne négligeable. En quelque sorte, dans le cas d'une forte échelle d'observation, la vitesse N n'influence pas l'amplitude des fluctuations de composition du mélange car ces fluctuations sont déjà minimes à cette échelle.

5.2.1.2 Effet de perturbations sur la qualité du mélange

Nous allons nous intéresser ici à l'effet d'un changement de vitesse d'agitation sur l'homogénéité du mélange. Dans un premier exemple, nous présentons l'effet d'un échelon négatif appliqué à la vitesse N sur l'évolution des différents critères qui définissent l'homogénéité d'un mélange, à savoir : la composition de chaque échantillon analysé, la composition moyenne et le coefficient de variation. De même, dans une deuxième partie nous présenterons l'effet d'un échelon positif de vitesse sur la qualité du mélange.

Échelon négatif de vitesse

Comme le montre la figure 5.13, l'échelle d'observation choisie pour les échantillons de cet exemple est de 5,5g.

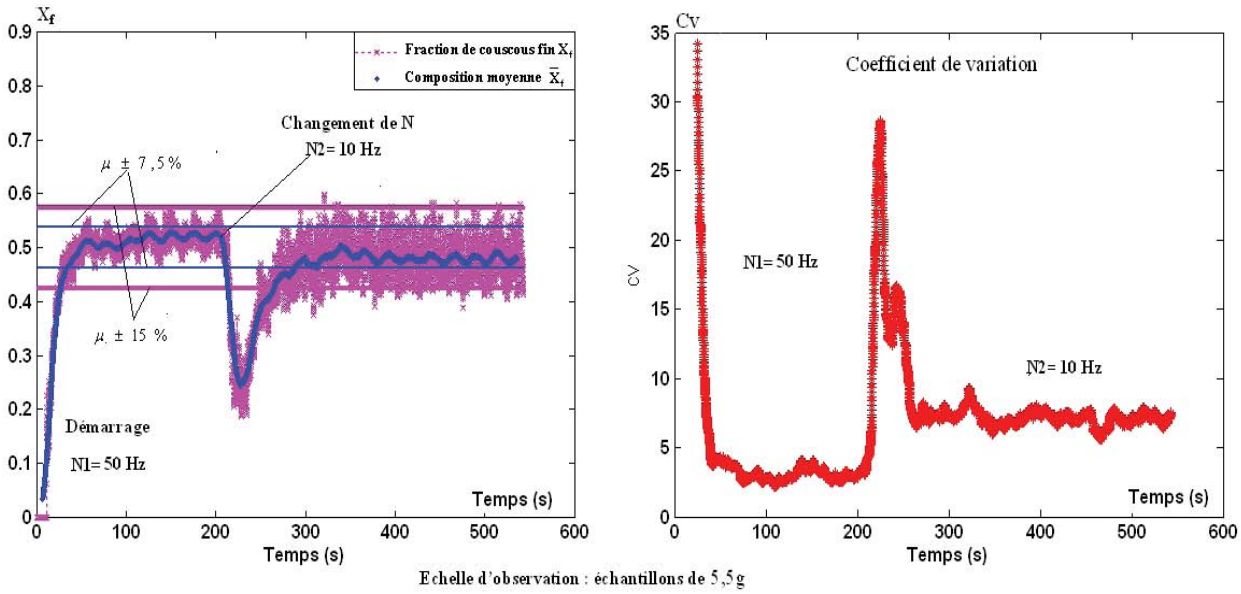


FIGURE 5.13 – Effet d'une brusque variation de la vitesse N de 50 à10 Hz sur la qualité du mélange

Comme nous pouvons le constater sur cette figure, pendant la phase de démarrage, qui est réalisée avec une vitesse de 50Hz, la teneur en couscous fin augmente progressivement jusqu'à ce qu'elle atteignent une valeur moyenne légèrement supérieure à 50%. Dans ce régime, le mélange étudié peut être considéré comme homogène car, Cv étant inférieur à 6%, les fluctuations de la teneur en couscous fin et les fluctuations de la composition moyenne ne dépassent pas les limites autorisées.
200 secondes après le démarrage, la vitesse d'agitation N est brusquement changée de 50 à 10 Hz. La fraction de couscous fin diminue instantanément puis ré-augmente progressivement, avant que le nouveau régime permanent correspondant à la vitesse N=10Hz ne soit établi. Pendant cette phase transitoire, qui est aussi caractérisée par une augmentation de la masse retenue, les particules fines sont retenues d'avantage que les grosses puisque le mélange obtenu a alors une teneur en couscous fin inférieure à celle du couscous moyen.

Finalement, nous constatons que le mélange obtenu en régime permanent à faible vitesse (10Hz) correspond à une légère diminution de la composition moyenne par rapport à celle obtenue initialement à 50Hz. De plus, le coefficient de variation est devenu supérieur à 6%, et les fluctuations de composition dépassent les marges autorisées (±15%). Par conséquent, on peut dire que le mélange réalisé après l'échelon négatif est non homogène du point du vue des spécifications que l'on pourrait imposer.

Échelon positif de vitesse

A travers un deuxième exemple illustré sur la figure 5.14, nous examinons maintenant l'effet d'une brusque augmentation de la vitesse d'agitation sur la qualité du mélange. Dans cet exemple le démarrage de l'opération est réalisé avec une faible vitesse d'agitation (N=10Hz). Pendant cette phase "de remplissage" le mélangeur a "du mal" à assurer la composition attendue (50%). L'allure obtenue montre en effet que la fraction de sortie tends vers 40% au lieu de 50%. Ce résultat n'est pas surprenant car pendant cette phase le régime permanent n'est pas encore atteint et le taux de rétention du couscous fin n'est pas encore à son niveau nominal.
Pour améliorer la qualité de ce mélange, durant le démarrage, nous avons procédé à une brusque augmentation de la vitesse d'agitation de 10 à 30Hz. Après cet échelon, l'effet est

immédiat car la teneur en couscous fin augmente et se rapproche de la gamme souhaitée. Comme nous pouvons le constater dans ce deuxième régime, les fluctuations de composition sont réduites et le Cv devient inférieur à 6%. Cependant, quelques échantillons sont encore hors de l'intervalle de ±15% .

Pour rendre ce mélange acceptable il faut améliorer son degré d'homogénéité. Pour cela, nous avons appliqué un troisième échelon sur N en passant de 30 à 60 Hz ; cette fois-ci le mélange obtenu est conforme aux critères exigés puisque la composition moyenne, la composition de tous les échantillons et le Cv, obtenus après cet échelon, respectent les normes.

Notons ici que ce dernier échelon (de 30 à 60 Hz) n'as pas influencé considérablement la valeur de Cv ; les fluctuations sont légèrement réduites, mais surtout elles sont translatées de telle manière qu'elles se retrouvent à l'intérieur de l'intervalle de ±15%.

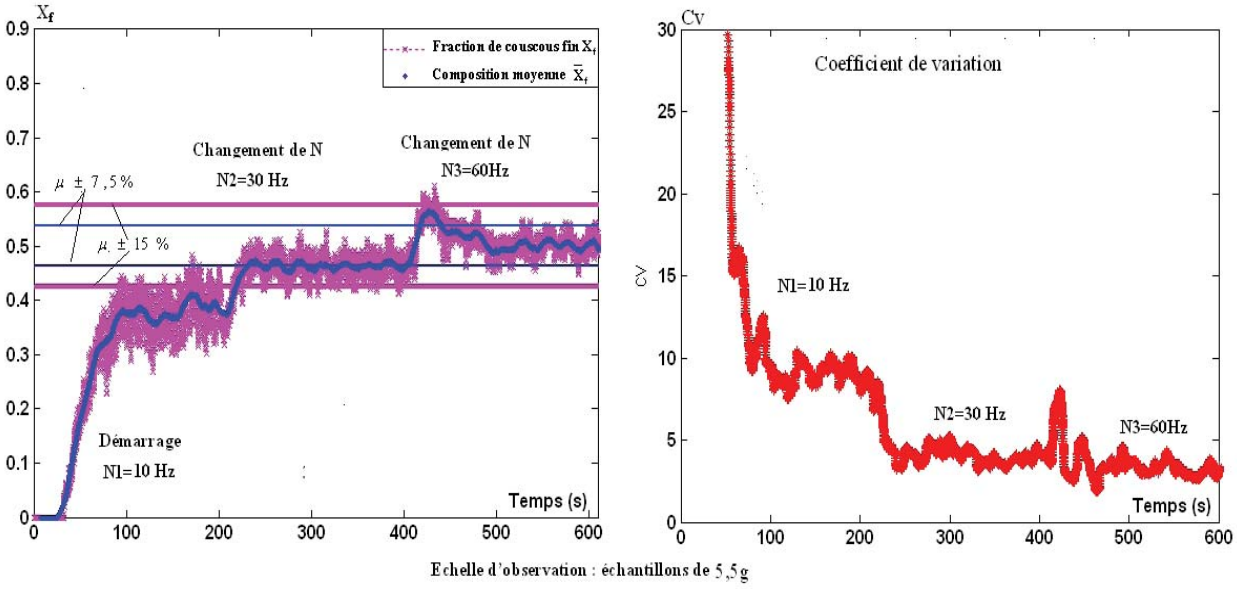


FIGURE 5.14 – Effet de brusques variations de la vitesse N de 10 à 30 puis 50 Hz ("double échelon positif")

D'autres exemples d'échelons appliqués sur la vitesse d'agitation N, sont présentés en annexe 11. D'après l'ensemble des résultats obtenus, nous pouvons faire ressortir un lien direct entre l'effet de l'agitation sur l'homogénéité et la masse retenue des constituants du mélange. Il semble que tout échelon positif appliqué sur N permet d'augmenter instantanément la teneur en composé le plus retenu (ici le couscous fin). Cette teneur baisse ensuite progressivement avant d'atteindre à nouveau une valeur moyenne stable, légèrement supérieure à celle correspondant à la vitesse utilisée avant la perturbation.

A l'opposé, tout échelon négatif a un influence inverse sur l'évolution de la composition du mélange. En réduisant la vitesse N, la teneur en couscous fin diminue instantanément. Elle remonte ensuite progressivement avant de fluctuer autour d'une valeur moyenne lorsque le régime permanent est atteint. Cette dernière est légèrement inférieure à celle obtenue avant l'échelon.

Par exemple, si la vitesse d'agitation assure un Cv acceptable (inférieur à 6%) mais que les fluctuations de la teneur en composé le plus retenu dépassent la limite inférieure de l'intervalle autorisé, une légère augmentation de N permettra de corriger la qualité du produit sans toutefois que le Cv ne soit considérablement modifié, comme illustré sur la figure 5.14. Cependant, une certaine prudence devait être imposée puisqu'une vitesse d'agitation excessive peut, dans certains cas, conduire à des phénomènes d'attrition ou de démélange. Inversement, si les fluctuations de la teneur en particules fines (les plus retenues) dépassent la limite maximale de l'intervalle de ±15%, la vitesse d'agitation doit être légèrement diminuée pour replacer les fluctuations de la composition dans la gamme désirée. Dans ce cas également, une certaine prudence doit être imposée pour éviter que les fluctuations ne deviennent trop importantes à faible agitation, ce qui conduira forcément à un Cv>6%.

5.2.2 Étude d'un mélange binaire de 12,5% de composition (Mélange 2)

Dans cette partie, nous nous étudions le mélange 2, constitué de couscous moyen et de couscous fin, ce dernier étant minoritaire dans le mélange(12,5% de la composition totale). En particulier, nous cherchons à savoir si le paramètre d'agitation N peut être utilisé tout seul pour ajuster la qualité du mélange en le rendant acceptable en terme d'homogénéité, comme c'était le cas pour le mélange 1.

5.2.2.1 Phase de démarrage et régime régime permanent

Effet de l'échelle d'observation

Comme le montre la figure 5.15, l'évolution de la teneur en couscous fin, pendant la phase de démarrage et également en régime permanent, est présentée en fonction de l'échelle d'observation. En particulier, pour une vitesse N donnée, quatre différentes tailles d'échantillons sont utilisées : 794mg, 5,5g, 11,11g et 17,77g.

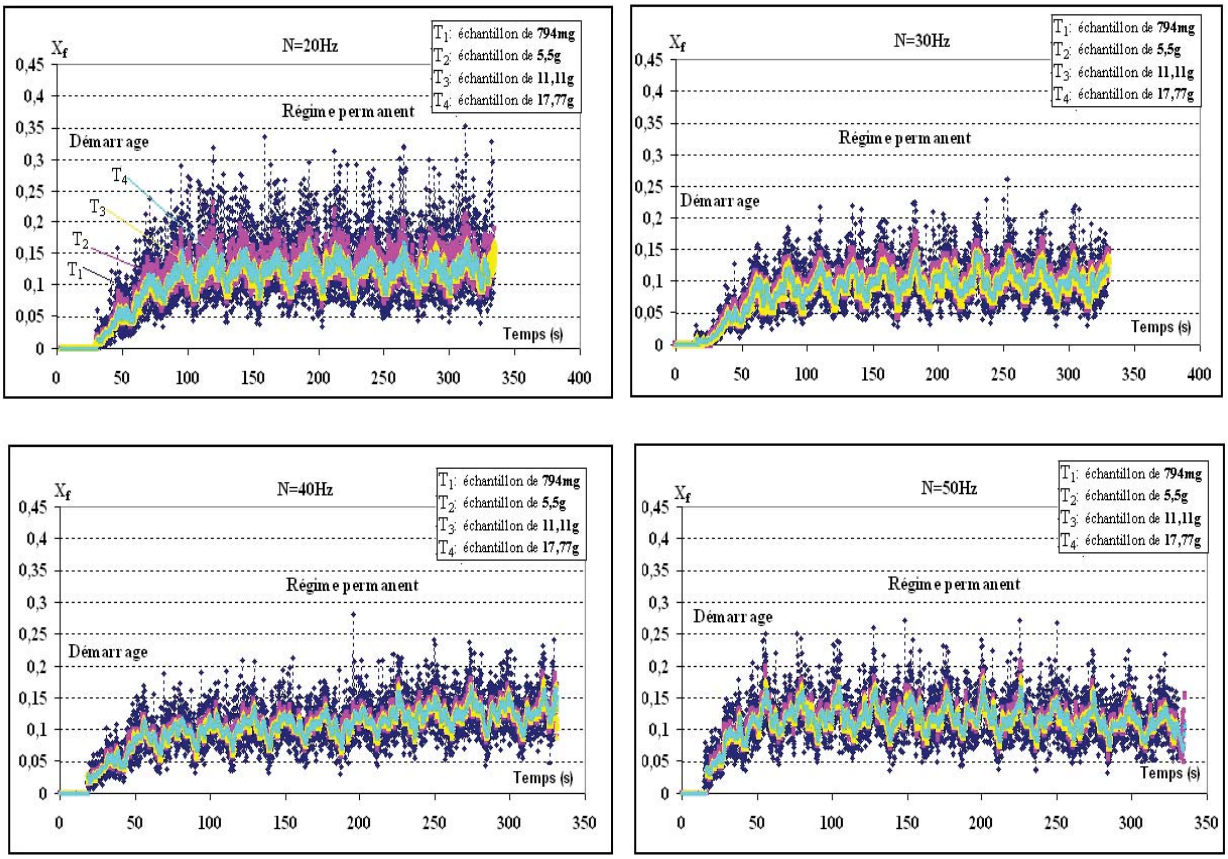


FIGURE 5.15 – Évolution de la composition du mélange 2 à différentes échelle d'observations en cours de démarrage et en régime permanent

D'après ces résultats préliminaires, nous pouvons constater que l'échelle d'observation a un effet important sur l'amplitude des fluctuations : plus la taille d'échantillon est grande, plus les fluctuations sont réduites.
D'un autre coté, l'effet de la vitesse d'agitation N sur l'amplitude des fluctuations de la composition n'est pas très significatif. Ainsi, afin d'évaluer quantitativement cette amplitude, il est nécessaire de calculer l'évolution du coefficient de variation.

Effet de la vitesse d'agitation

Pour évaluer l'effet de la vitesse d'agitation sur la qualité du mélange, nous comparons l'évolution du Cv pour différentes vitesses d'agitation, comme illustré sur la figure 5.16.

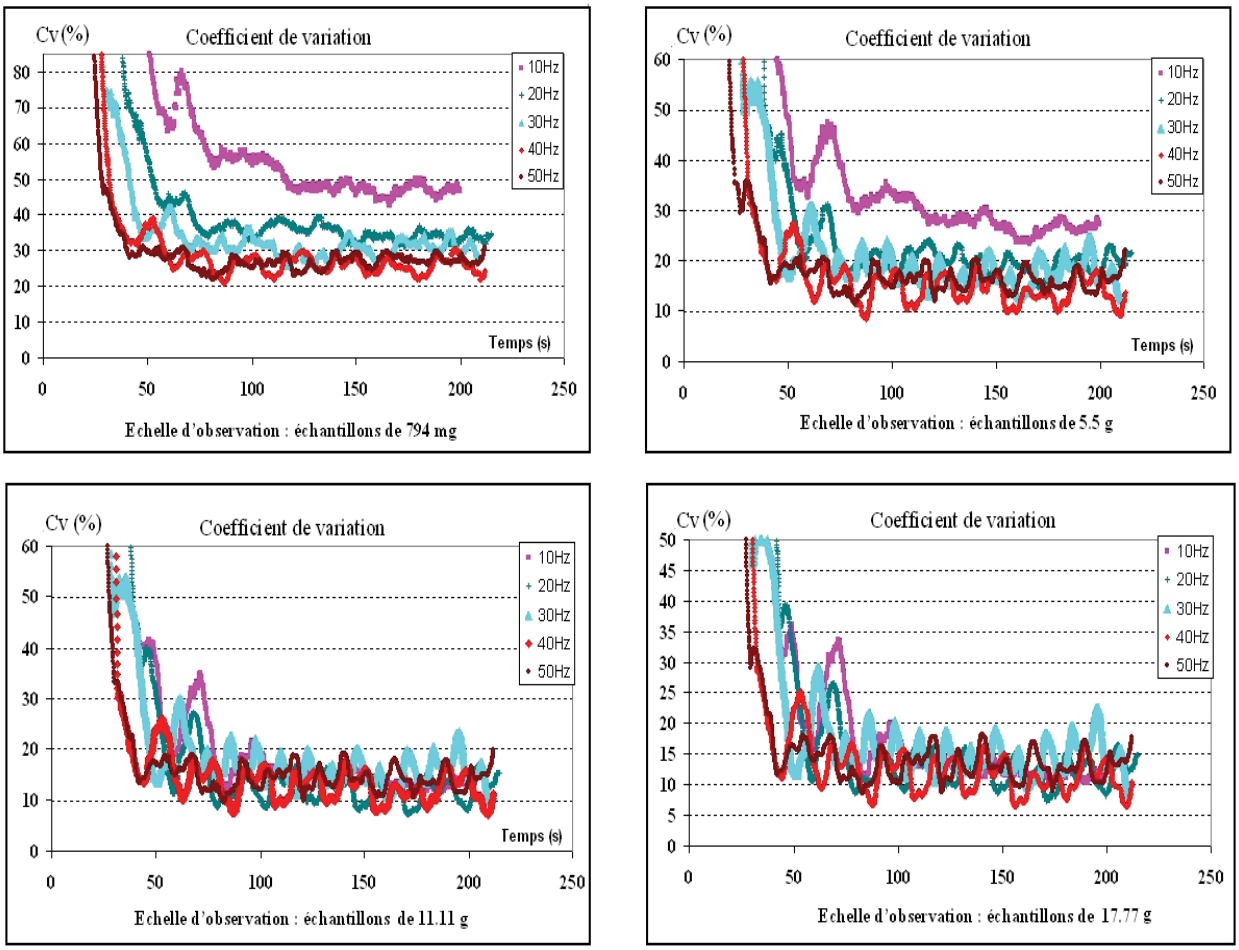


FIGURE 5.16 – Évolution du coefficient de variation pour différentes vitesses N, mélange 2

Cet exemple montre à nouveau qu'à partir d'une forte échelle d'observation, l'influence de la vitesse d'agitation sur les fluctuations de la composition devient négligeable.
En comparant ces résultats avec ceux obtenus pour le mélange 1 (figure 5.12 et tableau 5.3), nous pouvons dire que le mélange réalisé à partir d'un constituant minoritaire (de faible concentration) présente, à même vitesse d'agitation, des fluctuations de composition plus importantes. Les valeurs de coefficient de variation sont en effet plus élevées comme illustré dans le tableau 5.4.

Par ailleurs, nous remarquons que pour les quatre tailles d'échantillons étudiés, le coefficient de variation reste supérieur à 6% quelle que soit la vitesse d'agitation utilisée. Plus particulièrement, même à une vitesse de 50 Hz qui permet une meilleure dispersion des particules, il est difficile de placer les fluctuations de la composition correspondant à ±15%

de la valeur attendue, comme illustré sur la figure 5.17. Ceci conduit nécessairement à un Cv>6%.

TABLE 5.4 – Coefficient de variation en régime permanent, pour différentes vitesses N et pour différentes échelles d'observation (mélange2)

Échelle d'observation	$T_1 = 794mg$	$T_2 = 5,5g$	$T_3 = 11,11g$	$T_4 = 17,77g$
Cv(%) : N=10Hz	48	27	15	13
Cv(%) : N=20Hz	34	20	14	13
Cv(%) : N=30Hz	31	16	16	15
Cv(%) : N=40Hz	26	14	14	11
Cv(%) : N=50Hz	26	15	14	15

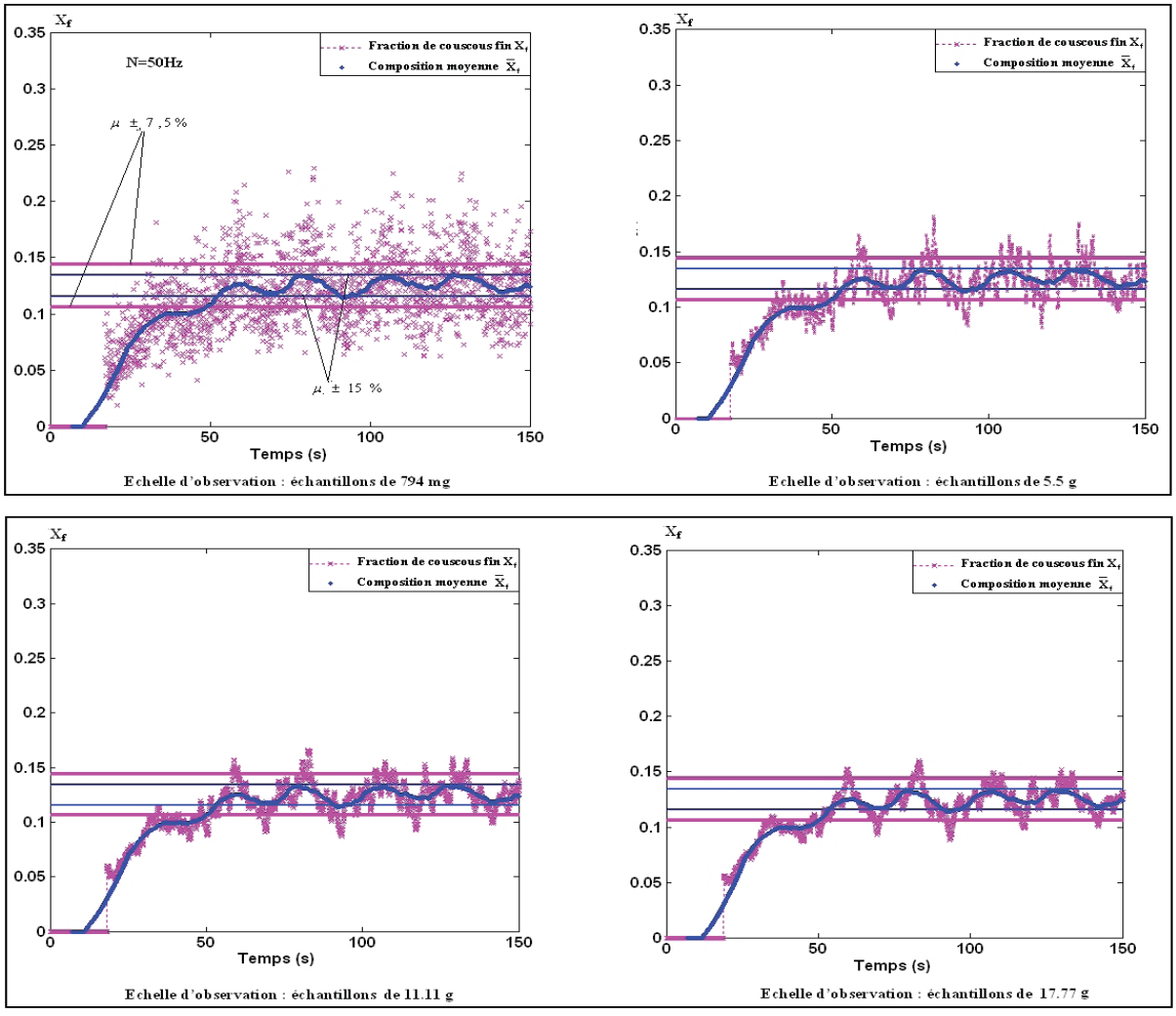


FIGURE 5.17 – Évolution de X_f et de $\bar{X}_f$, pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 50Hz$)

5.2.2.2 Effet de perturbations sur la qualité du mélange

Pour mieux illustrer l'effet de la vitesse d'agitation N sur l'évolution de la qualité du mélange, nous avons procédé à des expériences pour lesquelles la vitesse d'agitation a été changée au cours de l'opération. Parmi ces expériences, nous présentons dans cette partie deux exemples d'application d'un échelon sur N. Le premier concerne une baisse de la vitesse de 50 à 20 Hz (voir figure 5.18 (a)), alors que le deuxième concerne une augmentation de cette vitesse de 10 à 30 Hz (voir figure 5.18 (b)).

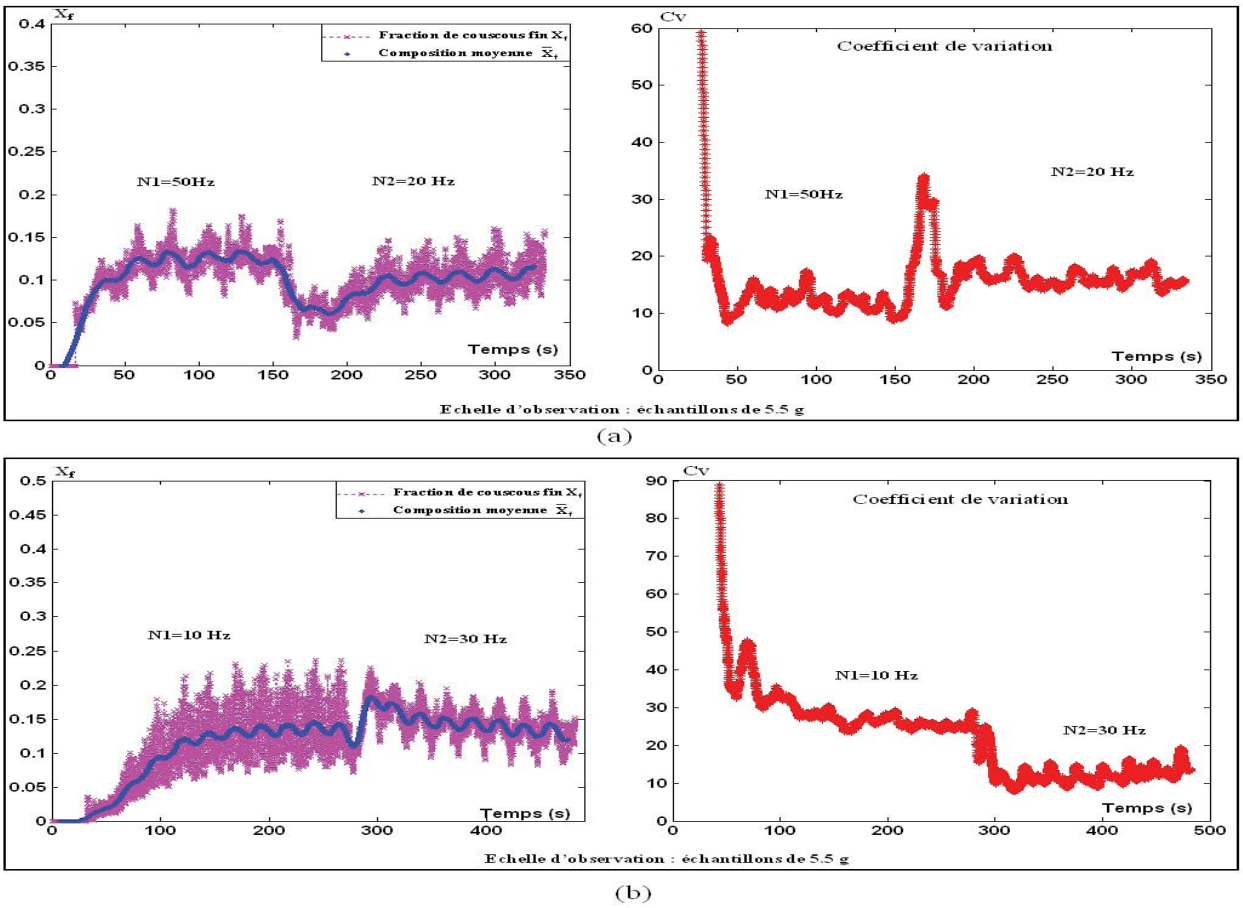


FIGURE 5.18 – Effet d'une brusque variation de la vitesse N sur la qualité du mélange (a) échelon négatif de 50 à 20Hz à t=150s, (b) échelon positif de 10 à 30Hz à t=270s

Pendant la phase transitoire de démarrage, la teneur en couscous fin augmente progressivement avant d'atteindre sa valeur en régime permanent (environ 12,5%). Ceci signifie que pendant la phase transitoire, les particules de couscous fin sont retenues d'avantage que celle du couscous moyen. Ces résultats peuvent être expliqués, comme dans le cas du mélange 1, par la différence de taille existant entre les deux produits et qui favorise la rétention des particules de petite taille.

Une fois que la vitesse d'agitation a été changée de 50 à 20Hz (dans l'exemple (a)), la composition moyenne est légèrement modifiée. Ainsi, dès que la vitesse d'agitation est plus faible, les particules du mélange commencent à sortir moins vite. Durant cette phase, les fines ont plus "de mal" à sortir que les grosses. Ainsi, la fraction du couscous fin se voit diminuer brutalement avant de remonter progressivement jusqu'à ce qu'elle se stabilise autour d'une nouvelle valeur moyenne, légèrement inférieure à celle obtenue avec la vitesse initiale (avant l'échelon).
C'est l'inverse qui se produit quand il s'agit d'un échelon positif (exemple (b)). Si la vitesse N est augmentée, les fines sortent en quantité plus grande, ce qui se traduit par une hausse instantanée de leur fraction dans le mélange obtenu. Immédiatement après, la fraction des fines diminue à nouveau progressivement jusqu'à ce qu'elle revienne fluctuer autour d'une valeur moyenne stable, légèrement supérieure à celle obtenue avant cette perturbation.

En comparant les fluctuations de la composition du mélange avant et après l'échelon, on peut facilement se rendre compte de l'effet que la vitesse d'agitation peut avoir pour atténuer les fluctuations de la composition du mélange et par conséquent améliorer sa qualité. Il ne semble toutefois pas possible dans le cas de ce mélange 2 d'atteindre les spécifications exigées pour qu'il soit considéré comme homogène. Ceci nous conduit forcément à penser que le réglage de la vitesse d'agitation ne suffira pas toujours pour réaliser de bons mélanges, d'autant plus qu'en augmentant la vitesse pour améliorer la dispersion des particules, le temps de mélange diminue d'une manière considérable (voir le tableau 5.1). La vitesse d'agitation influence en effet directement la masse retenue dans le mélangeur, et par conséquent le temps de passage.
Il reste à savoir comment on pourrait améliorer la dispersion des particules sans que le temps de passage (ou la masse retenue) ne soit réduit. Ce n'est qu'en couplant ces deux effets, une meilleure dispersion avec un temps de passage suffisamment grand, que nous pourrons améliorer le degré d'homogénéité de ce mélange à faible concentration.
Ainsi, nous pensons que d'autres paramètres opératoires et technologiques doivent être pris en compte dans la régulation de ce procédé afin de compenser l'effet "néfaste" de la vitesse N sur le temps de passage. Une solution peut résider dans l'ajustement de la vanne de sortie de manière telle que le niveau de remplissage du mélangeur reste stable quelle que soit la vitesse N. Ceci permettrait d'ajuster cette vitesse d'agitation sans changer le temps de passage.

D'autres paramètres peuvent également jouer ce rôle, comme l'inclinaison du mélangeur. Plus le mélangeur est incliné vers le haut plus le taux de remplissage sera grand même à vitesse d'agitation élevée.

5.3 Modélisation markovienne du mélange binaire

Dans cette partie nous conservons la même hypothèse que celle développée dans le chapitre 4, partie 4.3.2. En effet, nous supposons que les connaissances acquises lors de l'étude de l'agitation et de l'écoulement d'un produit pur peuvent être extrapolées au cas d'un mélange binaire. Pour cela, le modèle markovien non homogène sera sollicité à nouveau dans cette partie pour décrire la composition du mélange.

Les résultats de simulations obtenus par la chaîne de Markov seront confrontés aux résultats expérimentaux, pour juger l'aptitude du modèle à prédire l'évolution de la composition du mélange pendant les phases transitoires, notamment celles qui sont observées lors du démarrage du procédé ou encore après un changement de la vitesse d'agitation, variable principale de commande de procédé.

5.3.1 Élaboration du modèle de mélange

Rappelons brièvement que le modèle non homogène que nous avons développé lors du chapitre précédent (partie 4.3.2) est composé de 5 cellules dont 4 sont similaires en terme de masse retenue, et une cinquième qui se situe juste avant "l'obstacle" de la sortie du mélangeur et qui se comporte différemment. En particulier, les particules de cette dernière cellule ne peuvent pas avancer librement comme dans les cellules précédentes car elles sont bloquées par l'obstacle "support" qui délimite la surface de sortie. Ainsi, les particules s'accumulent davantage dans cette zone du mélangeur ce qui conduit à des valeurs de masses retenues bien supérieures. Une 6ième cellule a été rajoutée à ce modèle pour représenter la sortie du mélangeur, elle fait office d'état absorbant (figure 5.19).

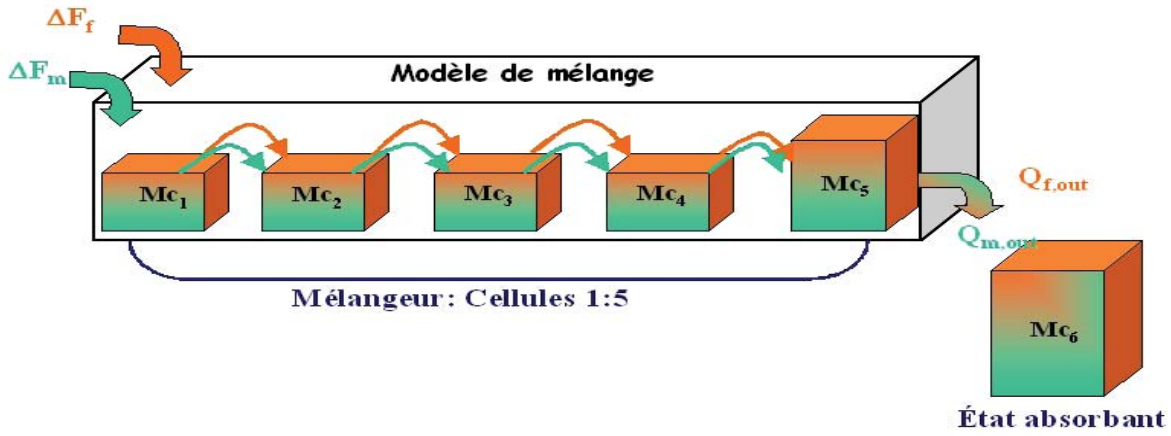


FIGURE 5.19 – Schéma du modèle markovien formé de 5 cellules et d'un état absorbant

Dans cette représentation le mélangeur est alimenté en continu avec les deux constituants. Soient $\Delta F_m(t)$ et $\Delta F_f(t)$, les masses des particules introduites dans le mélangeur entre l'instant t et$(t-\Delta t)$ respectivement pour le couscous moyen et pour le couscous fin. La masse retenue totale dans une cellule "i", appelée Mc_i, est composée de la somme des masses des deux produits retenues dans cette cellule (Mm_i et Mf_i pour le couscous moyen et le couscous fin), nous écrivons ainsi :

$$Mc_i(t) = Mm_i(t) + Mf_i(t) \tag{5.4}$$

Si nous associons aux particules de chaque constituant une matrice des probabilités de transition spécifique, nous pouvons décrire l'écoulement de chaque produit indépendamment de l'autre en utilisant deux systèmes matriciels. Représentons, dans les limites d'une telle hypothèse, l'écoulement du couscous moyen par le système matriciel de l'équation 5.5.

$$\begin{pmatrix} Mm_1(k+1) \\ Mm_2(k+1) \\ Mm_3(k+1) \\ Mm_4(k+1) \\ Mm_5(k+1) \\ Mm_6(k+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} Pm_{1,1} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ Pm_{2,1} & Pm_{2,2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & Pm_{3,2} & Pm_{3,3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & Pm_{4,3} & Pm_{4,4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & Pm_{5,4} & Pm_{5,5} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & Pm_{6,5} & Pm_{6,6} \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} Mm_1(k) + \Delta F_m(k) \\ Mm_2(k) \\ Mm_3(k) \\ Mm_4(k) \\ Mm_5(k) \\ Mm_6(k) \end{pmatrix} \tag{5.5}$$

$Pm_{i,j}$ est la probabilité que les particules de couscous moyen transitent de la cellule "j" vers la cellule "i". De même, l'écoulement du couscous fin peut être décrit par un système matriciel qui est similaire à celui décrit ci-dessus. Ainsi nous écrivons :

$$\begin{pmatrix} Mf_1(k+1) \\ Mf_2(k+1) \\ Mf_3(k+1) \\ Mf_4(k+1) \\ Mf_5(k+1) \\ Mf_6(k+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} Pf_{1,1} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ Pf_{2,1} & Pf_{2,2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & Pf_{3,2} & Pf_{3,3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & Pf_{4,3} & Pf_{4,4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & Pf_{5,4} & Pf_{5,5} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & Pf_{6,5} & Pf_{6,6} \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} Mf_1(k) + \Delta F_f(k) \\ Mf_2(k) \\ Mf_3(k) \\ Mf_4(k) \\ Mf_5(k) \\ Mf_6(k) \end{pmatrix} \tag{5.6}$$

$Pf_{i,j}$ est la probabilité que les particules de couscous fin transitent de la cellule "j" vers la cellule "i".

La résolution de ces deux équations doit permettre de prédire l'évolution de la composition de chaque cellule et celle du mélange obtenu en sortie de la 5ème cellule par les équations suivantes :

- Composition du mélange de la cellule "i" :

$$Xf_i = \frac{Mf_i}{Mf_i + Mm_i} \tag{5.7}$$

- Composition du mélange obtenu en sortie du mélangeur :

$$X_f = \frac{Q_{f,out}}{Q_{f,out} + Q_{m,out}} = \frac{Pf_{65} * Mf_5}{Pf_{65} * Mf_5 + Pm_{65} * Mm_5} \quad et \quad Xm_i = \frac{Pm_{65} * Mm_5}{Pf_{65} * Mf_5 + Pm_{65} * Mm_5} \tag{5.8}$$

$Q_{f,out}$ et $Q_{m,out}$ sont respectivement le débit de sortie du couscous fin et celui du couscous moyen.

Après chaque itération, les transitions des particules des deux composés peuvent être calculées par la chaîne de Markov, et par conséquent la composition de chaque cellule et celle du mélange obtenu peuvent également être prédites par les équations 5.7 et 5.8. Cependant, l'utilisation des deux équations markovienne (5.5 et 5.6) nécessite la connaissance des masses initiales de chaque constituant dans les différentes cellules ainsi que sa matrice des probabilités de transition et de son évolution dans le temps dans le cas non-linéaire.

5.3.2 Détermination des matrices de transition

Comme nous avons pu le constater dans le chapitre 4, la matrice des probabilités de transition en phases transitoires et notamment lors du démarrage dépend de l'état du système selon une relation linéaire. Ce n'est qu'en régime permanent que cette matrice devient constante, la chaîne devenant homogène. Dans le cas du mélange étudié, nous allons supposer que l'avancement des particules d'une cellule "i" à la cellule suivante "i+1" est régie par

une probabilité qui dépend de la masse retenue dans cette cellule selon cette même relation linéaire, développée initialement pour l'agitation d'un produit pur. Ainsi, la probabilité que le couscous fin avance d'une cellule "i" à la cellule "i+1" peut être décrite par l'équation suivante :

$$Pf_{i+1,i}(n) = af_i * Mf_i(n) + bf_i \quad pour \quad Mf_i \leq Mrf_i \tag{5.9}$$

af_i etbf_i sont des constantes spécifiques à chaque cellule "i" et qui dépendent des conditions opératoires ; Mrf_i est la masse retenue de couscous fin en régime permanent dans la cellule "i" .

Si maintenant, nous définissons une masse minimale $Mminf_i = -bf_i/af_i$ comme étant la masse du couscous fin à partir de laquelle les particules de couscous fin commencent à transiter de la cellule i vers la cellule i+1, l'équation précédente 5.11 devient :

$$Pf_{i+1,i}(n) = af_i * (Mf_i(n) - Mminf_i) \qquad (pour \quad Mminf_i \leq Mf_i \leq Mrf_i) \tag{5.10}$$

De même, la probabilité de transition du couscous moyen de la cellule "i" à la cellule "i+1" s'écrit sous la forme suivante :

$$Pm_{i+1,i}(n) = am_i * Mm_i(n) + bm_i \qquad (pour \quad Mm_i \leq Mrm_i) \tag{5.11}$$

Ainsi :

$$Pm_{i+1,i}(n) = am_i * (Mm_i(n) - Mminm_i) \qquad (pour \quad Mminm_i \leq Mm_i \leq Mrm_i) \tag{5.12}$$

Mrm_i est la masse retenue de couscous moyen en régime permanent dans la cellule "i" ; Notons ici que pour les cellules de 1 à 4 les masses minimales sont nulles : $Mminm_i = Mminf_i = 0$

Dans cette phase transitoire, les transitions des particules dans le mélangeur sont régies par une chaîne de Markov non homogène car les probabilités de transition changent avec les masses retenues dans les cellules.

Une fois que le régime permanent est établi, la rétention de chaque produit dans la cellule "i" atteint une valeur stable qui correspond à une masse retenue constante (Mrf_i pour le couscous fin et Mrm_i pour le couscous moyen). Par conséquent, la probabilité de transition

dans ce régime stationnaire atteint sa valeur maximale que nous appelons $Pf_{i+1,imax}$ pour le couscous fin et $Pm_{i+1,imax}$ pour le couscous moyen. Le système est alors décrit par une chaîne de Markov homogène, et les probabilités de transition des deux constituants sont calculées par les équations suivantes :

$$Pf_{i+1,i}(n) = Pf_{i+1,imax} = af_i * (Mrf_i(n) - Mminf_i) \quad (pour \;\; Mf_i = Mrf_i) \tag{5.13}$$

$$Pm_{i+1,i}(n) = Pm_{i+1,imax} = am_i * (Mrm_i(n) - Mminm_i) \quad (pour \;\; Mm_i = Mrm_i) \tag{5.14}$$

Avec : $Pf_{i+1,imax}$ et $Pm_{i+1,imax}$ les probabilités de transition en régime permanent.

Dans ces deux régimes, correspondant à une chaîne homogène et une autre non homogène, si les masses Mrf_i, Mrm_i, $Mminf_i$, $Mminm_i$ et les probabilités $Pf_{i+1,imax}$, $Pm_{i+1,imax}$ sont déterminées, les paramètres du modèle af_i, bf_i, am_i, et bm_i peuvent être calculés à partir des limites de chaque régime :

$$af_i = \frac{Pf_{i+1,imax}}{Mrf_i - Mminf_i} \quad et \quad bf_i = -af_i * Mminf_i \tag{5.15}$$

De même pour le deuxième composé (couscous moyen) nous écrivons :

$$am_i = \frac{Pm_{i+1,imax}}{Mrm_i - Mminm_i} \quad et \quad bm_i = -am_i * Mminm_i \tag{5.16}$$

Notons ici que les probabilités maximales peuvent être déterminées en utilisant la chaîne de Markov en régime permanent. Ainsi, nous écrivons que :

- pour les deux composés de la cellule 1 :

$$Pf_{21max} = \frac{Q_f * \Delta t}{Mrf_1 + \Delta F_f} \tag{5.17}$$

$$Pm_{21max} = \frac{Q_m * \Delta t}{Mrm_1 + \Delta F_m} \tag{5.18}$$

Q_f et Q_m sont respectivement les débits de couscous fin et de couscous moyen en entrée du mélangeur.

-puis, pour les deux composés d'une cellule "i" comprise entre 2 et 5 :

$$Pf_{i+1,imax} = \frac{Q_f * \Delta t}{Mrf_i} \tag{5.19}$$

$$Pm_{i+1,imax} = \frac{Q_m * \Delta t}{Mrm_i} \tag{5.20}$$

Finalement, cette procédure permet de déterminer la probabilité $Pf_{i+1,i}$ et $Pm_{i+1,i}$ après chaque transition en connaissant uniquement les masses retenues de chaque produit en régime permanent Mrf_i et Mrm_i et les masses minimales $Mminf_i$ et $Mminm_i$, à partir desquelles les particules d'un constituant commencent à transiter de la cellule "i" vers la cellule "i+1". Nous rappelons ici que ces différentes masses retenues limites ont été déterminées dans la partie 5.2.4.

5.3.3 Démarrage du procédé et régime permanent

Pendant la phase de démarrage, les deux composés sont introduits (en continu) directement dans la première cellule du mélangeur. Les transitions des particules de couscous fin dans les 4 premières cellules peuvent être calculées à partir des probabilités suivantes :

- pour la cellule 1, en utilisant les équations 5.10, 5.15 et 5.17, nous pouvons écrire :

$$Pf_{2,1}(n) = \frac{Pf_{2,1max}}{Mrf_1} * Mf_1(n) = \frac{Q_f * \Delta t}{(Mrf_1 + Q_f * \Delta t)Mrf_1} * Mf_1(n) \tag{5.21}$$

- pour les cellules comprises entre 2 et 4, en utilisant les équations 5.10, 5.15 et 5.19 :

$$Pf_{i+1,i}(n) = \frac{Qf * \Delta t}{Mrf_i^2} * Mf_i(n) \tag{5.22}$$

De même, les probabilités de transition des particules de couscous moyen dans les 4 premières cellules s'écrivent sous la forme suivantes :

- pour la cellule 1 :

$$Pm_{2,1}(n) = \frac{Pm_{2,1max}}{Mrm_1} * Mm_1(n) = \frac{Q_m * \Delta t}{(Mrm_1 + Q_m * \Delta t)Mrm_1} * Mm_1(n) \tag{5.23}$$

- pour les cellules comprises entre 2 et 4 :

$$Pm_{i+1,i}(n) = \frac{Q_m * \Delta t}{Mrm_i^2} * Mm_i(n) \tag{5.24}$$

Pour estimer la masse retenue de chaque constituant en régime permanent dans ces 4 cellules, nous utilisons l'équation 5.3.

En régime permanent, la masse de chaque constituant dans une cellule "i" (Mf_i et Mm_i) atteint sa valeur limite (Mrm_i et Mrf_i) et la probabilité de transition correspondante devient

constante ($Pf_{i+1,i} = Pf_{i+1,imax}$ et $Pm_{i+1,i} = Pm_{i+1,imax}$).

Concernant la cellule 5, tant que la masse retenue Mc_5 est inférieure à la masse minimale(M_{min5}) les probabilités que les particules avancent vers la sortie (Pf_{65} et Pm_{65}) restent nulles. Ceci conduit à une accumulation des particules des deux constituants dans cette dernière zone du mélangeur. Une fois que la masse retenue dans la dernière cellule atteint la masse minimale, les particules commencent à transiter en dehors du mélangeur. Dans ce cas, la probabilité de transition s'écrit sous la forme suivante :

-pour le couscous fin, et d'après les équations 5.10, 5.15 et 5.19 :

$$Pf_{6,5}(n) = \frac{Q_f * \Delta t}{(Mrf_5 - Mfmin_5) * Mrf_5} * (Mf_5(n) - Mminf_5) \quad pour \;\; Mf \geq Mfmin_5 \quad (5.25)$$

-pour le couscous moyen, et d'après les équations 5.12, 5.16 et 5.20 :

$$Pm_{6,5}(n) = \frac{Q_m * \Delta t}{(Mrm_5 - Mmmin_5) * Mrf_5} * (Mm_5(n) - Mminm_5) \quad pour \;\; Mm \geq Mmmin_5 \quad (5.26)$$

En suivant cette procédure de détermination des matrices de transition nous pouvons simuler la dynamique de démarrage du procédé, et la comparer avec les résultats expérimentaux.

Confrontation modèle- expérience : Mélange 1

Dans cette partie nous présentons deux exemples de comparaison (modèle-expérience) pour le mélange 1 à deux vitesses d'agitation (30Hz et 50Hz), comme illustré sur figure 5.20. Dans ces exemples, l'échelle d'observation choisie correspond à des échantillons de taille de 17,77g. L'évolution des différentes probabilités de transition d'une cellule à la suivante, pour chaque constituant, est présentée dans le graphe 5.21.

Les résultats rapportés sur la figure 5.21 permettent d'illustrer la vitesse avec laquelle les probabilités de transition évoluent dans chaque cellule. Précisons qu'à chaque itération, les masses retenues des deux constituants dans les différentes cellules sont calculées par les deux équations de la chaîne de Markov : l'équation 5.5 pour le couscous moyen et l'équation 5.6 pour le couscous fin. Une fois que ces masses retenues sont déterminées, les probabilités des prochaines transitions sont calculées avec les équations 5.21, 5.22 et 5.25 pour le couscous fin et par les équations 5.23, 5.24 et 5.26 pour le couscous moyen. Le temps de discrétisation

utilisé dans ces simulations est $\Delta t = 0,1s$.

Comme le montre la figure 5.21, la probabilité que les particules avancent d'une cellule "i" à l'autre est une fonction linéaire de la masse retenue dans cette cellule. La différence entre la rétention des deux constituants influence directement l'évolution de leurs probabilités de transition. En effet, dans toutes les "zones" du mélangeur, le couscous fin a une probabilité de transition inférieure à celle de couscous moyen car son taux de rétention est plus élevé.

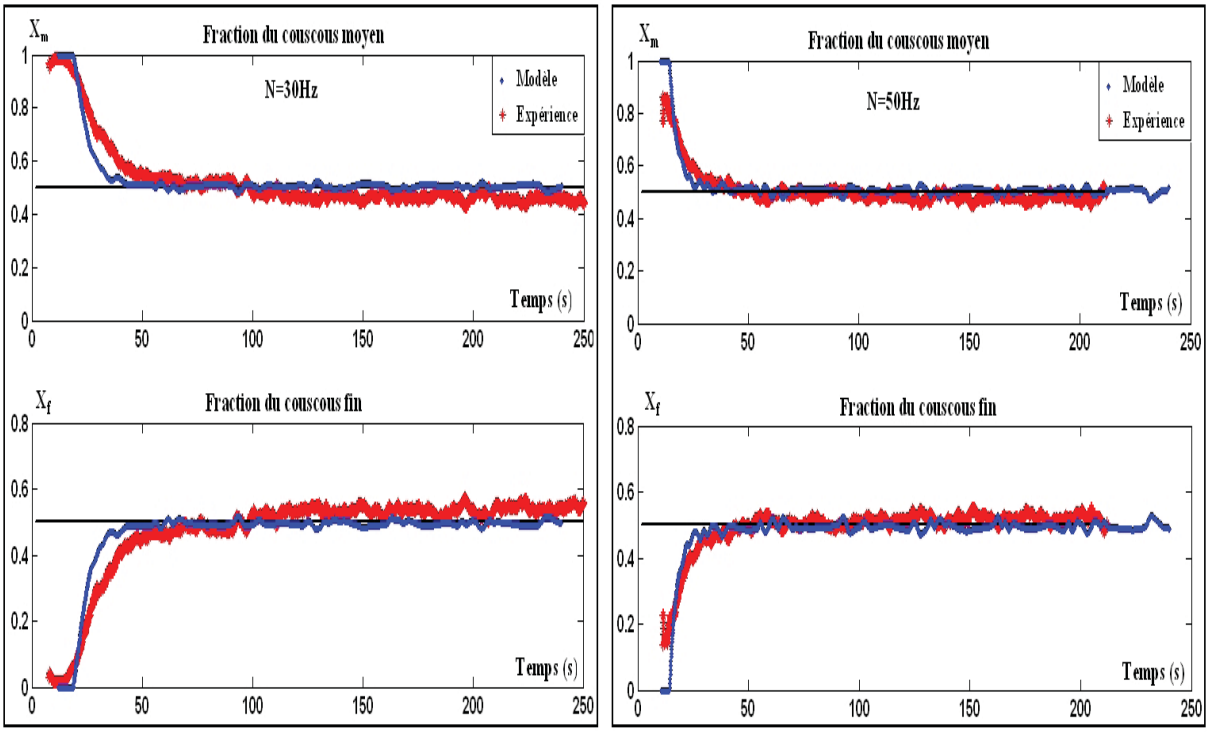


FIGURE 5.20 – Confrontation modèle-expérience lors du démarrage et en régime permanent ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50% ;$\Delta t = 0,1s$

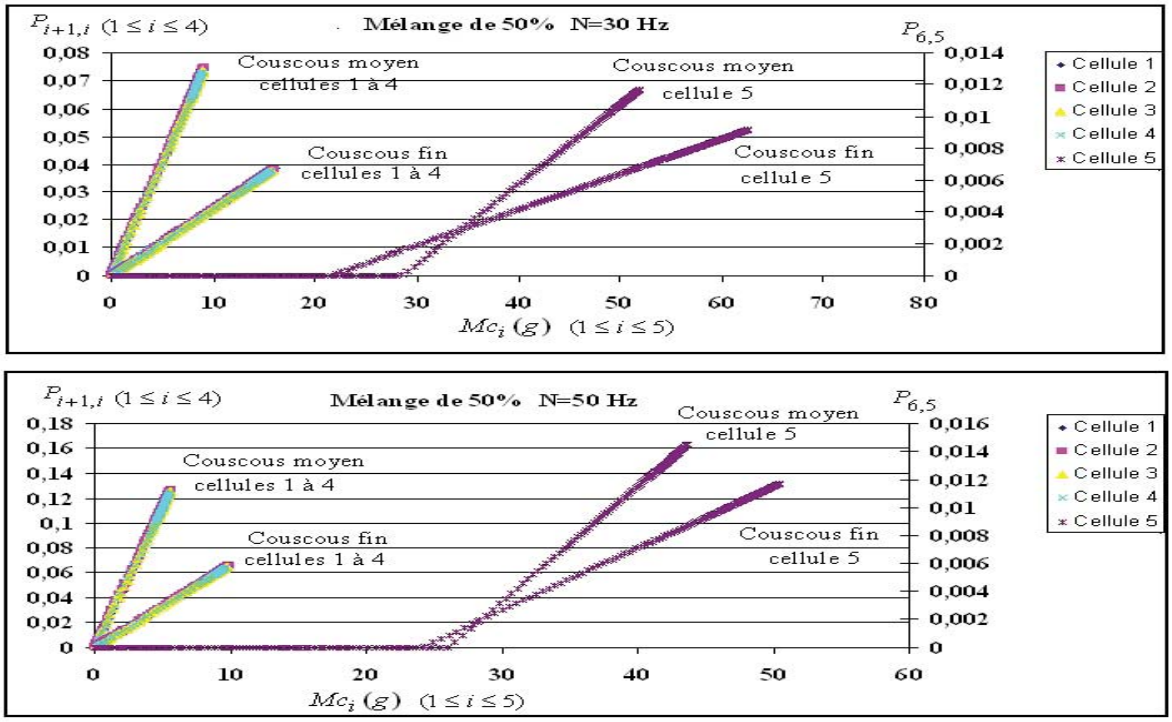


FIGURE 5.21 – Évolution des probabilités de transition d'une cellule à la suivante pour les deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50%, $\Delta t = 0,1s$)

D'après les résultats de comparaison entre les simulations et les résultats expérimentaux (figure 5.20), nous pouvons dire que le modèle développé parvient à décrire convenablement la composition du mélange pendant la phase de démarrage. En particulier, la ségrégation observée pendant le régime transitoire est bien décrite par cette chaîne non homogène.

Comme nous l'avons précisé auparavant, cette ségrégation ne peut être expliquée que par la différence de taille existant entre les particules. En effet, les fines ont une rétention plus élevée et par conséquent moins de chance "ou de probabilité" d'avancer dans le mélangeur que les grosses, comme illustré sur le graphe précédent 5.21.

La comparaison entre ces deux exemples de mélanges réalisés à 30 et 50Hz permet aussi d'examiner l'effet de la vitesse d'agitation sur les probabilités de transition ($Pm_{i+1,i}$ et $Pf_{i+1,i}$). En particulier, nous remarquons qu'à une vitesse d'agitation plus élevée, les particules sont plus retenues, et la probabilité de transition est plus élevée. Une forte vitesse d'agitation en démarrage du procédé aidera nécessairement à réduire le temps nécessaire pour que le régime permanent soit établi, et la dispersion des particules sera également meilleure.

Cependant, le temps de passage sera réduit du fait des plus grandes valeurs des probabilités de transition, et ceci pourrait avoir des conséquences négatives.

Confrontation modèle- expérience : Mélange 2

La figure 5.22 illustre deux autres exemples de comparaison (modèle-expérience) pour le mélange 2 à deux vitesses d'agitation (20 et 50Hz). De nouveau, on constate que le modèle donne satisfaction pour décrire les résultats expérimentaux qui sont observés pendant la phase de démarrage et également en régime permanent.
L'évolution des probabilités de transition des deux constituants entre une cellule "i" et une cellule "i+1" ($Pm_{i+1,i}$ et $Pf_{i+1,i}$) est représentée en fonction de la masse retenue dans cette cellule sur la figure 5.23. Nous remarquons que lors de la phase de démarrage, les probabilités de transition des deux constituants dans les 4 premières cellules évoluent en fonction de la masse retenue selon deux fonctions linéaires qui ont quasiment la même pente. Cependant, les deux constituants atteignent des probabilités de transition maximales très différentes car le couscous moyen avance dans le mélangeur avec une probabilité qui est largement supérieure à celle du couscous fin.

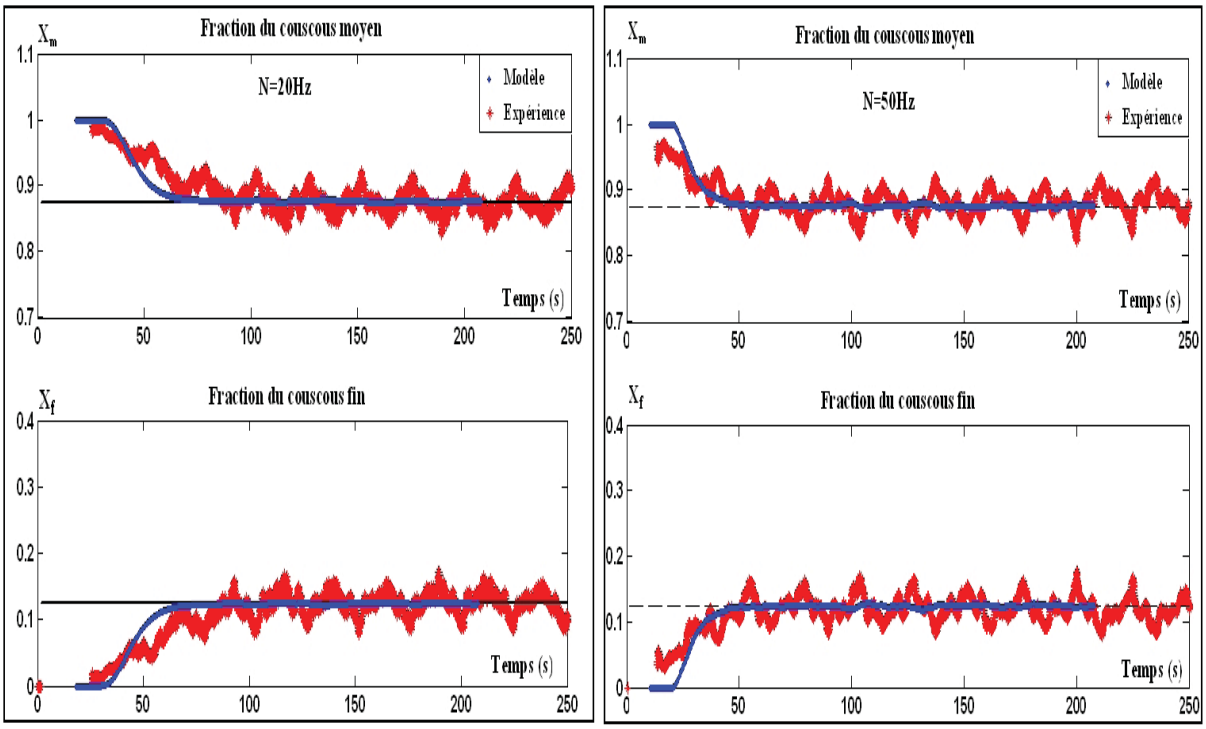


FIGURE 5.22 – Confrontation modèle-expérience lors du démarrage et en régime permanent ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,5% ; $\Delta t = 0,1s$

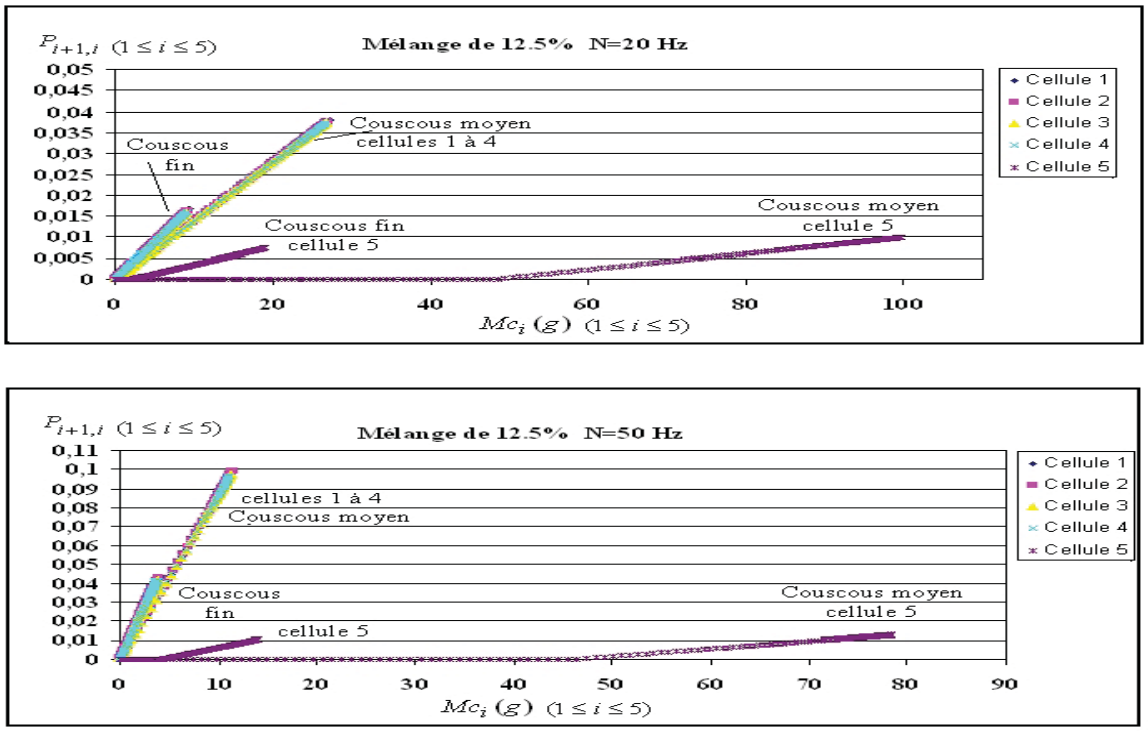


FIGURE 5.23 – Évolution des probabilités de transition d'une cellule à la suivante pour les deux constituants du mélange ; $Q = 40 kg.h^{-1}$; mélange à 12,5% ; $\Delta t = 0,1 s$

En examinant les résultats de la 5ème cellule du mélangeur, nous constatons que les deux constituants ont des allures de probabilités de transition très différentes. Ceci s'explique par la différence considérable existant entre les masses retenues limites des deux constituants de ce mélange.

Par ailleurs, comme dans le cas du mélange 1, nous pouvons constater qu'à une vitesse d'agitation plus importante, les probabilités de transition sont plus grandes, et les particules moins retenues.

Finalement, l'ensemble des résultats obtenus montre que la chaîne de Markov couplée aux différentes corrélations empiriques, qui ont été développées pour déterminer l'évolution des matrices des probabilité de transition des constituants, semble décrire de manière adéquate les variations de composition des mélanges en phase de démarrage et également en régime permanent. Il reste à savoir à quel point cette approche peut être valable pour décrire l'évolution du système à la suite d'un changement des conditions de vitesse d'agitation en cours d'opération.

5.3.4 Effet d'un échelon appliqué sur la vitesse d'agitation N

Confrontation modèle- expérience : Mélange 1

La vitesse d'agitation est un paramètre qui joue un rôle important dans la détermination de la qualité du mélange final. Comme nous l'avons vu précédemment, elle influence directement la masse retenue des poudres, leur temps de passage et l'homogénéité du mélange. Ainsi, dans un procédé industriel, si la qualité du mélange obtenue n'est pas satisfaisante, l'opérateur (ou le système de régulation) peut être amené à ajuster cette vitesse afin de corriger et améliorer le degré d'homogénéité du produit final. Il est donc indispensable de posséder un modèle capable de prédire l'effet d'un changement de la vitesse d'agitation sur la composition moyenne du mélange. Dans ce contexte, nous avons réalisé plusieurs simulations avec le modèle markovien précédent de manière à quantifier l'aptitude de ce modèle à prédire l'évolution de la composition du mélange quand la vitesse est modifiée. Deux exemples de confrontation entre les résultats de simulations et ceux obtenus expérimentalement sont proposés sur la figure 5.24. Le premier concerne un échelon négatif de vitesse de 50 à 10 Hz, alors que le deuxième concerne un échelon positif de 25 à 45 Hz.

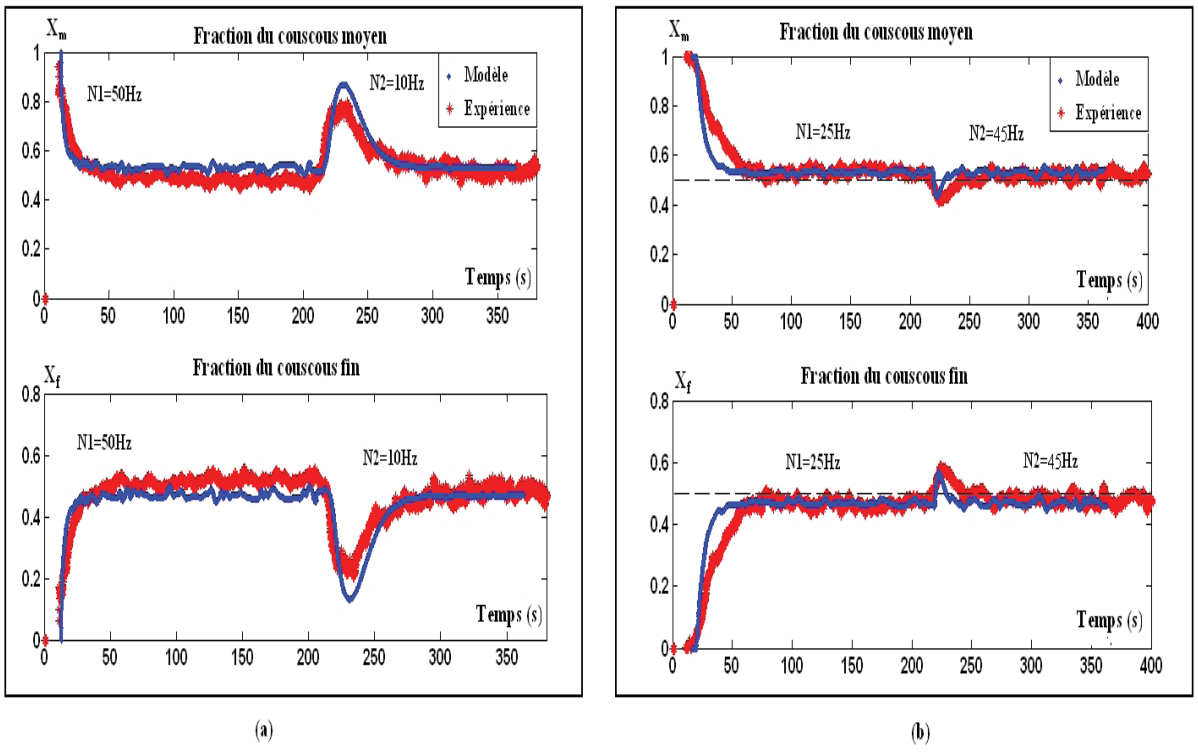


FIGURE 5.24 – Confrontation modèle-expérience (a) échelon de 50 à10HZ ; (b) échelon 25 à 45Hz ($Q = 40 kg.h^{-1}$; mélange à 50% ;$\Delta t = 0,1 s$

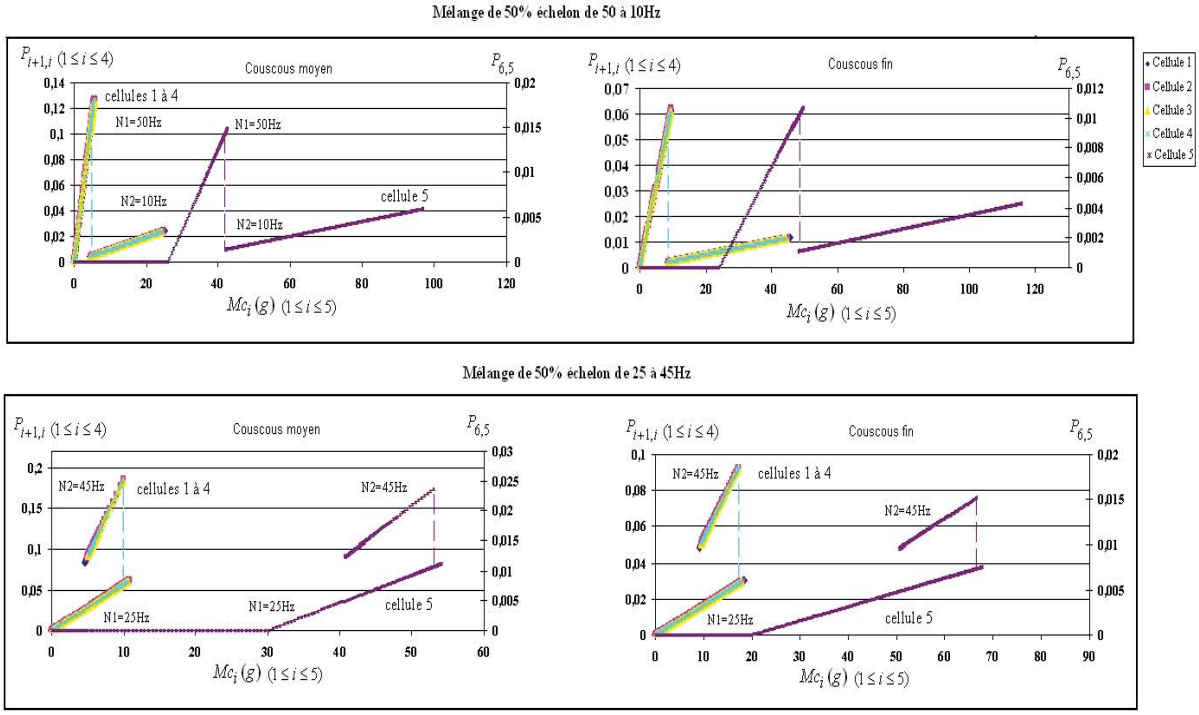


FIGURE 5.25 – Effet d'un échelon de N sur l'évolution des probabilités de transition des deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50% ; $\Delta t = 0,1s$

L'évolution des probabilités de transition des constituants du mélange avant et après l'échelon de N est illustrée sur la figure 5.25. Une fois que la vitesse d'agitation est diminuée (de 50 à 20Hz), les probabilités de transition des particules des deux composés sont moindres. Ceci favorise l'accumulation des particules dans les différentes cellules du mélangeur, ce qui fait ré-augmenter les masses retenues, de même que les probabilités de transition des deux produits jusqu'à ce qu'un certain équilibre soit établi en régime permanent entre le débit de sortie et la masse retenue de chaque cellule.

Pendant la phase transitoire, le rapport entre les nouvelles probabilités de transition et les masses retenues des deux constituants favorisent la sortie des particules fines qui sont majoritaire dans la chambre de mélange. Ceci explique que la teneur en couscous fin augmente immédiatement après l'application de cet échelon négatif sur N. L'inverse se produit pour la fraction du couscous moyen.

Le nouveau régime permanent (correspondant à N=10Hz) s'établit progressivement et la composition du mélange en sortie tend vers la composition attendue.

En revanche, on voit dans le deuxième exemple de la figure 5.24 que l'application d'un

échelon positif sur N de 25 à 45 Hz, augmente la vitesse des transitions des particules puisque les probabilités de transition dans les 5 cellules sont immédiatement augmentées après cet échelon. Ceci conduit nécessairement à une baisse du niveau de remplissage dans le mélangeur. A leur tour, les probabilités de transition diminuent progressivement avec les masses retenues dans les cellules jusqu'à ce que le nouveau régime permanent soit établi (voir l'exemple 2 de la figure 5.25).

Finalement, ces deux exemples montrent bien que le modèle markovien couplé aux différents relation empiriques (permettant d'identifier la matrice des transitions) décrit d'une façon très acceptable l'effet de la vitesse d'agitation sur la composition du mélange, comme illustré sur la figure 5.24.

Confrontation modèle- expérience : Mélange 2

Les résultats obtenus dans le cas de du mélange 2 sont presque similaires au mélange 1 en terme d'effet de la vitesse d'agitation sur la composition du mélange. Comme illustré sur la figure 5.26, deux exemples de résultats expérimentaux sont comparées à ceux des simulations numériques. La vitesse d'agitation a été changée de 50 à 20Hz dans le premier exemple, et de 25 à 45Hz dans le deuxième exemple. L'évolution des probabilités de transition des deux constituants du mélange est également présentée sur la figure 5.27.

L'effet d'un échelon positif ou négatif sur les probabilités de transition des particules est similaire à celui observé dans le cas du mélange 1. En particulier, les probabilités de transition sont instantanément réduites après la baisse de la vitesse d'agitation (de 50 à 10Hz) puis elles sont progressivement augmentées en parallèle de la montée de niveau de remplissage dans chaque cellule du mélangeur.
Inversement, lorsque la vitesse d'agitation est subitement augmentée, les probabilités de transition sont immédiatement accrues avant qu'elles ne re-diminuent progressivement en relation avec la baisse des masses retenues dans les cellules du mélangeur.

D'après les résultats obtenus, nous remarquons que le modèle décrit d'une façon acceptable les phases transitoires de démarrage et également celles observées après l'application d'un échelon de vitesse N (voir figure 5.26). Cependant, un écart relativement important par

rapport au cas du mélange 1 est observé dans la phase transitoire qui suit l'application d'un échelon. De plus, bien que les fluctuations de la composition sont importantes, elles ne sont pas encore décrites par ce modèle.

Finalement, nous précisons que l'ensemble des résultats expérimentaux montre que la composition moyenne obtenue en régime permanent est légèrement modifiée après l'application d'un échelon négatif ou positif. En particulier, la teneur moyenne en produit fin, de taux de rétention plus élevé, est légèrement supérieure dans le cas d'un échelon négatif et, inversement, elle est légèrement inférieure après un échelon positif. Cet aspect, n'est également pas encore décrit par le modèle car la composition prédite en régime permanent rejoint celle qui devrait être théoriquement obtenue, bien que la phase transitoire soit correctement décrite.

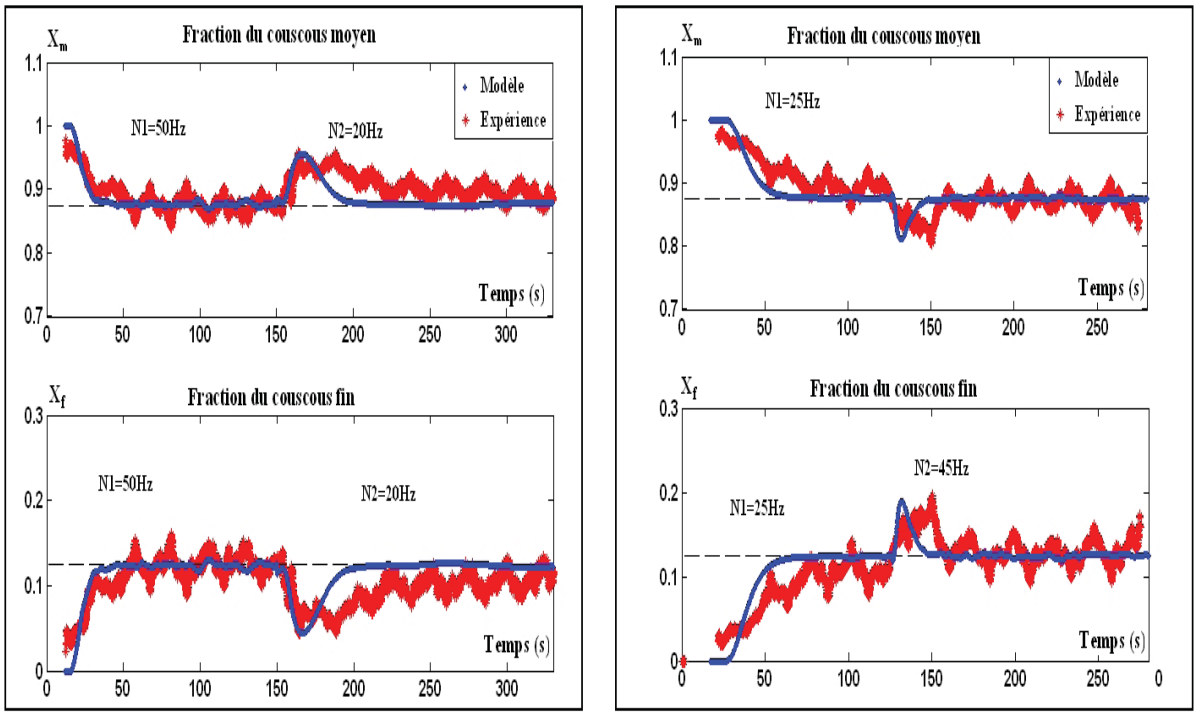


FIGURE 5.26 – Confrontation modèle-expérience (a) échelon de 50 à 20HZ ; (b) échelon 25 à 45Hz ($Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,5% ; $\Delta t = 0,1s$

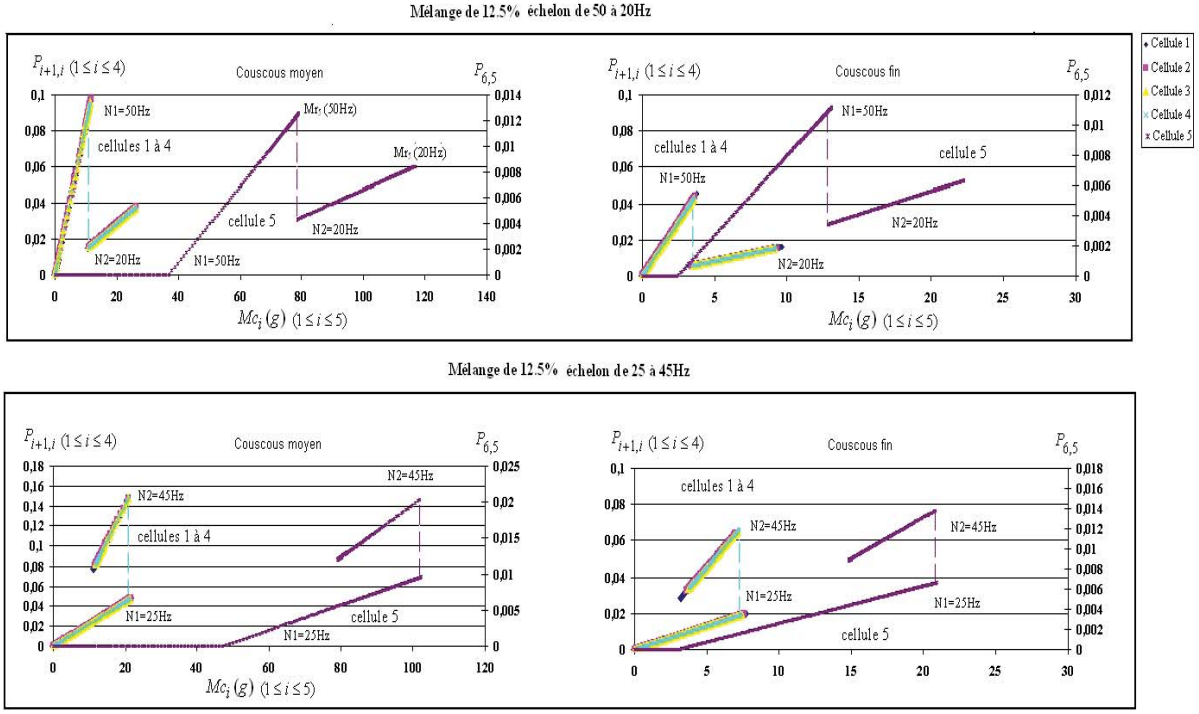


FIGURE 5.27 – Effet d'un échelon de N sur l'évolution des probabilités de transition des deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,50% ; $\Delta t = 0,1s$

5.3.5 Conclusion

Nous avons pu étudier le comportement dynamique du mélange en mettant en évidence l'influence de la composition, de la taille d'échantillon et de la vitesse d'agitation sur le degré d'homogénéité du mélange obtenu. Pour deux formulations qui se différencient uniquement par la teneur, un bon degré d'homogénéité est obtenu facilement dans le cas du mélange équi-massique. Pour le mélange contenant un composé largement minoritaire, le degré d'homogénéité obtenu n'est pas satisfaisant. Manifestement, la dispersion seule n'est pas suffisante pour obtenir un mélange homogène, surtout que l'augmentation de la vitesse d'agitation en vue d'améliorer la dispersion réduit nettement le temps de passage.
Le bon réglage de ce de ce procédé passe forcement par l'optimisation du rapport dispersion/temps de passage. Il est alors indispensable de savoir comment on peut favoriser la dispersion sans défavoriser le temps de passage.

Concernant l'effet de la taille d'échantillon, il a été confirmé à travers cette étude que plus l'échelle d'observation est grande, plus le degré d'homogénéité parait meilleur. Toutefois,

on note qu'à partir d'une certaine taille d'échantillon élevée, il devient difficile d'observer cette influence puisque la qualité du mélange devient très proche pour les fortes tailles d'échantillons.

Finalement, le développement d'un modèle de chaîne de Markov nous a permis de comprendre davantage l'effet de l'agitation sur la distribution des masses retenues de chaque constituant dans le mélangeur et sur l'évolution de la composition de mélange, pendant les phases transitoires et permanentes. A l'issue de cette étude nous avons pu établir un lien entre la matrice des probabilités de transition des particules, le taux de rétention et la vitesse d'agitation utilisée. De cette manière, il désormais possible d'anticiper quel serait l'effet de la vitesse d'agitation sur la composition moyenne du mélange dans différents cas de figure. Ainsi, dans le cas ou la fraction moyenne en un composé principal ne rentre pas dans l'intervalle de confiance exigée pour que le mélange soit acceptable, il est possible - via le modèle- de prédire quel serait l'effet d'une augmentation ou d'une réduction de la vitesse N sur la composition du mélange en sortie, et d'orienter le choix de l'échelon à appliquer pour ajuster la composition.

Conclusion générale et perspectives

Le cœur de ce travail a consisté à mettre au point une méthodologie de mesure en ligne de la qualité du mélange, à étudier le comportement dynamique du procédé en régime transitoire, et à rassembler les résultats expérimentaux sur la forme d'un modèle markovien capable de prédire les variations de la qualité de mélange. L'ensemble s'insère dans une perspective de construire une stratégie de contrôle-commande du procédé de mélange des poudres en continu.

Après avoir fait le point sur l'actuel développement des différentes techniques d'analyse des mélanges des poudres en ligne (à travers une synthèse bibliographique), nous avons opté pour celle d'analyse d'images. Un protocole expérimental spécifique a été développé pour analyser en temps réel la qualité du mélange obtenu en sortie du mélangeur continu. Ceci a permis de mesurer la composition du mélange et de déterminer son degré d'homogénéité durant les différentes phases de fonctionnement du mélangeur. Par opposition aux techniques analytiques classiques, notamment spectroscopiques, qui se basent sur l'analyse d'un certain nombre d'échantillons afin d'estimer l'homogénéité du mélange total, la méthodologie développée dans ce travail est une méthode exhaustive permettant de réaliser un échantillonnage complet du mélange étudié et de déterminer sa qualité à différentes échelles d'observation.

Les différentes études réalisées, concernant l'agitation du produit pur et celle du mélange binaire, ont permis de montrer l'existence de deux masses retenues limites (masse minimale et masse seuil) qui définissent les différents régimes d'écoulement, stationnaire et transitoire. Tant que la masse retenue dans chaque "région" du mélangeur est inferieure à une certaine valeur seuil, l'écoulement se fait selon un régime transitoire. Dès que cette valeur seuil est atteinte, le régime permanent s'établi. De même, en dessous d'une certaine masse retenue minimale, les particules ne parvient pas à quitter le mélangeur. Les limites des régimes

d'écoulement (permanent et transitoire) ont été reliées aux variables opératoires par des simples corrélations empiriques.
L'homogénéité des mélanges a été déterminée grâce au coefficient de variation de la teneur en couscous fin dans les différents échantillons analysés en ligne. Ce coefficient a été calculé en temps réel en régime permanent et durant les phases transitoires étudiées. Nous avons remarqué que les particules fines sont plus retenues dans le mélangeur que les grosses. La composition du mélange dans les premières cellules définies, est largement surdosée en fines particules, et ce n'est que dans la dernière cellule du mélangeur que cette teneur diminue et se rapproche de celle attendue en sortie du mélangeur.

Cette étude a permis également d'examiner l'effet de la vitesse d'agitation sur la qualité du mélange. Les résultats expérimentaux ont montré que cette variable a un effet considérable. Plus elle est élevée, plus la dispersion des particules est importante, meilleure est l'homogénéité du mélange. La comparaison entre les deux formulations étudiées a montré qu'un bon degré d'homogénéité est obtenu facilement dans le cas du mélange équi-massique à des vitesses d'agitation relativement élevées. Cependant, pour le deuxième mélange contenant un composé minoritaire, le degré d'homogénéité obtenu reste insatisfaisant quelle que soit la vitesse d'agitation utilisée. L'optimisation du procédé sur la base d'une seule variable, la vitesse d'agitation, ne suffira pas forcément pour atteindre le degré d'homogénéité souhaité. C'est d'autant plus vrai que l'augmentation de la vitesse d'agitation en vue d'améliorer la dispersion réduit nettement le temps de séjour moyen, ce qui peut conduire à considérer d'autres variables d'intérêt pour la commande. Ainsi, pour des mélanges faiblement dosés, il serait intéressant d'étudier plus en détails l'effet d'autres variables opératoires que la vitesse d'agitation sur la qualité des mélanges correspondants. En particulier, le type de mobile d'agitation, la stratégie d'alimentation ou encore de niveau d'ouverture de la vanne de sortie peuvent influencer considérablement le degré d'homogénéité du mélange. Elles doivent être prises en considération dans toute schéma de régulation de ce procédé.
A ce titre, nous pouvons dire qu'il existe encore une certaine marge de développement à la conception des mélangeurs continus. L'idéal serait de proposer des systèmes de mélange en continu qui offrent la possibilité de mélanger en favorisant la dispersion sans toutefois que le temps de passage ne soit réduit.

Ayant acquis des informations expérimentales sur l'agitation, nous avons proposé un cadre de modélisation représentant le procédé à différentes échelles (macroscopique et mésoscopique), quel que soit son régime de fonctionnement. Dans un premier temps, nous avons développé un modèle macroscopique, basé sur une approche markovienne simplifiée, représentant l'évolution de la dynamique du système durant les différents régimes observés. Ce modèle a permis de décrire la masse retenue dans le mélangeur, le débit de sortie et le temps de passage, ceci pour différentes conditions opératoires. Cette approche a été étendue pour représenter la dynamique du mouvement des poudres à l'intérieur du mélangeur par un modèle à plusieurs cellules. A ce titre nous avons été amené à développer un modèle homogène et un autre non homogène. La comparaison entre les résultats expérimentaux, obtenus dans le cadre de l'agitation d'un produit pur, et les simulations numériques a montré que la distribution spatiale des particules dans les différentes zones du mélangeur ainsi que l'évolution des débits internes « apparents » sont décrites d'une manière plus correcte par le modèle non homogène que celui homogène.

Le modèle d'une chaîne non homogène, développé initialement pour décrire l'agitation d'un produit pur, a été appliqué sur l'écoulement du mélange binaire. Chaque constituant a été représenté par une matrice des probabilités de transition permettant de décrire le déplacement de ses particules entre les différentes zones du mélangeur. Les probabilités utilisées ont été reliées aux masses retenues dans les différentes cellules ainsi qu'à la vitesse d'agitation. De cette manière, il a été possible de prédire leurs évolutions lors des phases transitoires qui sont caractérisées par une variation continue des masses retenues dans le mélangeur. La confrontation des résultats expérimentaux avec les simulations réalisées a permis de vérifier à quel point ce modèle est capable de prédire la composition du mélange selon la vitesse d'agitation, aussi bien en régime permanent qu'en régime transitoire.
Cette modélisation peut être considérée comme un premier pas vers la régulation de ce procédé, car il est désormais possible d'anticiper sur l'effet de la vitesse d'agitation sur l'évolution de la teneur en chaque constituant du mélange, dans différents cas de figure. Si par exemple la fraction moyenne en un composé principal ne rentre pas dans l'intervalle exigé pour que le mélange soit acceptable, il est possible de prédire quelle serait l'effet d'un échelon de vitesse d'agitation sur la composition du mélange en sortie, et d'orienter ensuite le choix de l'échelon à appliquer pour ajuster la composition.

D'autres perspectives peuvent également être envisagées, notamment du point de vue de la modélisation. En particulier, il serait intéressant de pouvoir prendre en compte la recirculation interne durant les phases transitoires en décrivant ainsi le déplacement des particules dans le sens de l'écoulement principal et aussi dans le sens inverse, quel que soit le régime permanent ou transitoire. Dans ce cas, l'identification expérimentale des probabilités de transition semble être impossible, c'est pourquoi nous pensons qu'il est nécessaire d'aller plus loin dans la compréhension de l'écoulement et du mélange en couplant le modèle markovien avec un modèle DEM. Citons ici l'exemple de Doucet et al ., 2008 [128] qui ont utilisé des simulations numériques basée sur la DEM pour déterminer la matrice des probabilités de transition correspondant à une chaîne de Markov homogène. A partir de ce modèle hybride (Markov-DEM) , ces auteurs ont décrit les mouvements des particules sphériques à l'intérieur d'un tambour cylindrique dans un temps de simulation suffisamment petit. Le couplage des modèles est en effet une tendance actuelle fort prometteuse. Bien que la DEM exige un important temps de calcul, il peut être envisagé pour identifier les probabilités de transition du modèle markovien avec recirculation interne, et aussi pour expliquer les phénomènes de ségrégation observées à l'intérieur du mélangeur. En effet, même si le modèle markovien développé dans ce travail décrit correctement la dynamique du système, il reste incapable de donner des explications physiques aux phénomènes observés.

Bibliographie

[1] Pernenkil. L ; Cooney. C. L. A review on the continuous blending of powders. *Chemical Engineering Science*, 61 :720–742, 2006.

[2] Marikh. K. Mélange des poudres en continu : dynamique et modélisation. *Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine France*, 2003.

[3] Ponomarev. D. Modèle markovien pour le mélange des poudres en mélangeur statique. *Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse France*, 2006.

[4] Ammarcha. C ; Gatumel. C ; Dirion. J. L ; Cabassud. M ; Berthiaux. H. Mizonov . V. Predicting the dynamics of a continuous powder mixer in transitory regimes. In *World Congress on particle technology, Nuremberg*, 2010.

[5] Guyon. E ; Troadec. J. P. *Du sac de billes au tas de sable*. Odile Jacob Sciences, Paris, 1994.

[6] Jaeger. H. M ; Nagel. S. R ; Behringe. R. P. Granular solids, liquids, and gases. *Rev. Mod. Phys*, 68(4) :1259–1273, 1996.

[7] Guyon. E ; Troadec. J. P. *Sable, poudres et grains. Introduction à la physique des milieu granulaires*. Eyrolles Sciences, 1997.

[8] Pouliquen. Or. *Écoulements granulaires secs*. Université de Province : Mémoire présenté pour obtenir l'habilitation à diriger des recherches, 2004.

[9] Ildefonse. B ; Allain. C ; Coussot. P. *Des grands écoulements naturels à la dynamique du tas de sable : introduction aux suspensions en géologie et en physique*. CEMAGREF Editions, 1997.

[10] Edwards. M. F ; Nienow. A. W Harnby. N ;. *Mixing in the Process Industries*. Butterworth Heinemann, 1985.

[11] Demeyre. J. F. Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur triaxe. *Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse France*, 2007.

[12] Lacey. P. M. C. Developments in the theory of particle mixing. *J Appl Chem*, 4 :257–268, 1954.

[13] Lantz. R. J ; Schwartz. J. B. *Pharmaceutical Dosage Forms : Tablets Volume 2*. Marcel Dekker, New York, 1990.

[14] Schofield. C. Assessing mixture by autocorrelation. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 48 :T28–T34, 1970.

[15] Vallance. J ; Rosato. S.SB. Particle segregation in granular flows down chutes. *IUTAM Symposiumo on Segregation in Granular Flows*, pages 31–52, 2000.

[16] Poux.M ; Bertrand. J. Agitation et mélange de poudres -définition et équipement. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 4 :59–66, 1994.

[17] Massol-Chaudeur. S. Caractérisation de l'état de mélange de poudres - cas de mélanges faiblement dosés. *Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine France*, 2000.

[18] Williams. J. The segregation of particulate materials. *Powder Technology*, 15 :245–251, 1976.

[19] Campbell. A. P ; Bridgwater. J. The mixing of dry solids by percolation. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 51 :72–74, 1973.

[20] Yalkowsky. S. H ; Bolton. S. Particle size and content uniformity. *Pharm.Res*, 7 :962–966, 1990.

[21] Bousquet. J Poux. M ; Fayolle. P ; Bertrand. J ; Bridoux. D. Powder mixing : some practical rules applied to agitated systems. *Powder Technology*, 68 (3) :213–234, 1991.

[22] Staniforth. J. N. Advances in powder mixing and segregation in relation to pharmaceutical processing. *International Journal of Pharmaceutical Technology and Product Manufacture*, 3 :1–10, 1982.

[23] Williams. J. C. The mixing of dry powders. *Powder Technology*, 2 :13–20, 1968.

[24] Lacey. P. M.C. The mixing of solids particles. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 21,53, 1943.

[25] Stange. K. Die mischguete einer zufallsmischung als grundlage zur beurteilung von mischversuchen. *Chemie Ingenieur Technik*, 26 (5) :331–337, 1954.

[26] Weinekötter. R. Continuous mixing of fine particles. *Particle and Particle Systems Characterization*, 12 (1) :46–53, 1995.

[27] Ghaderi. A. On characterization of continuous mixing of particulate materials. *Particulate Science and Technology*, 21(3) :271–282, 2003.

[28] Hersey. J. A. Ordered mixing : A new concept in powder mixing practice. *Powder Technology*, 11 :41–44, 1975.

[29] Yip. C. W ; Hersey. Ordered mixing theory. *Nature*, 262 :202–203, 1976.

[30] Wong. L ; Pilpel. N. Effect of particle shape on the mixing of powders. *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, 42 (1) :1–6, 1990.

[31] Rowley. G. Quantifying electrostatic interactions in pharmaceutical solids ystems. *International Journal of Pharmaceutics*, 227 (1-2) :47–55, 2001.

[32] Lifshitz. E. M. *Soviet physics JETP.* 2, 73-84, 1956.

[33] Kornchankul. W ; Hamed. E ; Parikh. N. H ; Sakr. A. Effect of drug proportion and mixing time on the content uniformity of a low dose drug in a high shear mixer. *Pharmazie*, 57 :49–53, 2002.

[34] Bodson. C. *Applications de la technologie analytique des procédés dans l'étude de l'homogénéité de mélanges de poudres pour compression directe.* PhD thesis, Université de Liège Faculté de Médecine, 2007.

[35] Jonat. S ; Hasenzahi. S ; Drechsler. M ;. Albers. P ; Wagner. K.G ; Schmidt. P.C. Investigation of compacted hydrophilic and hydrophobic colloidal silicon dioxides as glidants for pharmaceutical excipients. *Powder Technology*, 141 (1-2) :31–43, 2004.

[36] Jonat. S ; Albers. P ;Gray. A ; Schimidt. P. C. Investigation of the glidant properties of compacted colloidal silicon dioxide by angle of repose and x-ray photoelectron spectroscopy. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 63(3) :356–359, 2006.

[37] Sheth. B. B ; Bandelin. F. J ; Shangraw. R. F. Pharmaceutical dosage forms : Tablets. *Marcel Deker, New York*, 1990.

[38] Berthiaux. H. *Mélange et homogénéisation des solides divisés.* Techniques de l'ingénieur J 3397, 2002.

[39] Danckwerts. P. V ; Sellers. S. M. The effect of hold up and mixing on a stream of fluctuating composition. *Industrial Chemist*, 27,395, 1951.

[40] Weinekötter. R ; Gericke. H. Mixing of solids. *Kluwer AcademicPublishers, Dordrecht*, 2000.

[41] Schofield. C. Assessing mixtures by autocorrelation. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 48 :T28–T34, 1970.

[42] Beaudry. J.P. Blender efficiency. *Chemical Enginnering*, July :112–113, 1948.

[43] Williams. J. C ; Rahman. M. A. Prediction of the performance of continuous mixers for particulate solids using residence time distributions. Part I. Theoretical. *Powder Technology*, 5(2) :87–92, 1971.

[44] Usp. *in U.S.Parmacopeia*, 2227-2229, 2003.

[45] Murray. M ; Uraizee. S ; Sakr. A. Preliminary investigations of the suitability of the usp uniformity of dosage units tests for evaluating the uniformity of powder blends and their corresponding tablets. *Pharm. Ind*, 57(3) :256–262, 1970.

[46] Report on the industry blend uniformity practices survey. *in Pharmaceutical Technology August 2001*.

[47] Guidance for industry : Pat - a framework for innovative pharmaceutical manufacturing and quality assurance. *Food and Drug Administration*, 2004.

[48] Martens. H ; Naes. T. Multivariate calibration. *Chicheste*, 1989.

[49] Næs. T. The design of calibration in near infrared reflectance analysis by clustering. *Journal of Chemometrics*, 1 :121–134, 1987.

[50] Thosar. S. S ; Forbess. R. A ; Ebube. N. K ; Chen. Y ; Rubinovitz ; R. L. A comparison of reflectance and transmittance near-infrared spectroscopic techniques in determining drug content in intact tablets. *Pharm Dev.Technol*, 6(1) :19–29, 2001.

[51] Berntsson. O. Characterization and application of near-infrared reflection spectroscopy for quantitative process analysis of powder mixtures. *Thèse de Doctorat, Technische Universität München*, 2001.

[52] Hailey P. A ; Doherty. P ; Tapsell. P ; Oliver. T ; Aldridge. P. K. Automated system for the on-line monitoring of powder blending using near-infrared spectroscopy. Part I. System development and control. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 14 :551–559, 1995.

[53] Kehlenbeck.V ; Sommer. K. In-line determination of the mixing quality by near infrared spectroscopy. *Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde. Technische Universität München –Weihenstephan Am Forum 2, 85350 Freising, Germany*, 2003.

[54] Hinz. D. C. Process analytical technologies in the pharmaceutical industry : the FDA 's pat initiative. *Anal. Bioanal. Chem*, 384 :1036–1042, 2006.

[55] Berntsson. O ; Danielson. L. G ; Lagerholm. B ; Folestad. S. Quantitative in-line monitoring of powder blending by near infrared reflection spectroscopy. *Powder Technology*, 123 :185–193, 2002.

[56] Kehlenbeck. V ; Sommer. K. Possibilities to even the product discharge of a screw feeder and presentation of our research project on continuous dynamic mixing. *PARTEC Nuremberg Germany*, 2001.

[57] Kehlenbeck. V ; Sommer. K. A new model for continuous dynamic mixing of powders as well as in-line determination of the mixing quality by NIR spectroscopy. *Proceedings of the "World Congress on Particle Technology 4", sydney*, 2002.

[58] Siesler. H. W. Near-infrared spectroscopy. *Principles, Instruments, Applications,WILEY-VCH, Weinheim*,), 2002.

[59] Vanarase. A. U ; Alcala. M ; Rozo. J. I. J ; Muzzio. F. J ; Romanach. R. J. Real-time monitoring of drug concentration in a continuous powder mixing process using NIR spectroscopy. *Chemical Engineering Science*, 2010.

[60] Reich. G. Near-infrared spectroscopy and imaging : basic principles and pharmaceutical applications. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 57 :1109–1143, 2005.

[61] Roggo. Y ; Chalus. P ; Maurer. L ; Lema-Martinez. C ; Edmond. A ; Jent. N. A review of near infrared spectroscopy and chemometrics in pharmaceutical technologies. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 44 :683–700, 2007.

[62] Luypaert. J ; Massart. D.L ; Van der Heyden. Y. Near-infrared spectroscopy applications in pharmaceutical analysis. *Talanta*, 72 :865–883, 2007.

[63] Portillo. P. M ; Ierapertitou. M. G ; Muzzio. F. J. Characterization of continuous convective powder mixing processes. *Powder Technology*, 182 :368–378, 2008.

[64] Gao. Y ; Vanarase. A ; Muzzio. F ; Ierapetritou. M. Characterizingcontinuouspowdermixingusingresidencetimedistribution. *Chemical Engineering Science*, 66 :417–425, 2011.

[65] Koller. D.M ; Posch. A ; Hörl. G ; Voura. C ; Radl. S ; Urbanetz. N ; Fraser. S ; D ; Tritthart. W ; Reiter.F ; Schlingmann. M ; Khinast. J.G. Continuous quantitative monitoring of powder mixing dynamics by near-infrared spectroscopy. *Powder Technology*, 205 :87–96, 2011.

[66] Clegg. I ; Everall. N. On-line measurement of crystalline forms. *Eur. Pharm. Rev*, 3 :56–62, 2003.

[67] Vankeirsbilck. T ; Vercauteren. A ; Baeyens. W ; Van der Weken. G. Applications of raman spectroscopy in pharmaceutical analysis. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 21(12) :869–877, 2002.

[68] Christopher. F.J. Review of pharmaceutical applications of Raman spectroscopy. in : Pelletier. *M.J. (Ed.), Analytical Applications of Raman Spectroscopy*, pages 224–275, 1999.

[69] Vergote. G. J ; De Beer. T. R. M ; Vervaet. C ; Remon. J. P ; Baeyens. W. R.G ; Diericx. N ; Verpoort. F. In-line monitoring of a pharmaceutical blending process using FT-Raman spectroscopy. *European Journal of Pharmaceutical Sciences*, 21(4) :479–485, 2004.

[70] Kachrimanis. K ; Braun. D. E ; Griesser. U. J. Quantitative analysis of paracetamol polymorphs in powder mixtures by ft-raman spectroscopy and pls regression. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 43) :407–412, 2007.

[71] Wold. S ;Antti. H ; Lindgren. F ;Hman. J. Orthogonal signal correction of near-infrared spectra. *hemometr. Intell. Lab. Syst*, 44(1,2) :175–185, 1998.

[72] Barnes. R. J ; Dhanoa. M. S ; Lister. S. J. Standard normal variate transformation and de-trending of near-infrared diffuse reflectance spectra. *Applied Spectroscopy*, 43 :722–777, 1989.

[73] Geladi. P ; Macdougall. D ; Martens. H. Linearization and scatter-correction for near-infrared reflectance spectra of meat. *Appl. Spectrosc*, 39 :491–500, 1985.

[74] De Beer. T. R. M ; Baeyens. W. R. G ; Vander Heyden. Y ; Remon. J. P ; Vervaet. C ; Verpoort. F. Influence of particle size on the quantitative determination of salicylic acid in a pharmaceutical ointment using FT-Raman spectroscopy. *Pharmaceutical Sciences*, 30 :229–235, 2007.

[75] Vergote. G .J ; Vervaet. C ; Remon. J. P ; Haemers. T ; Verpoort. F. Near-infrared ft-raman spectroscopy as a rapid analytical tool for the determination of diltiazem hydrochloride in tablets. *European Journal of Pharmaceutical Sciences*, 16 :63–67, 2002.

[76] Hausman. D. S ; Cambron. R. T ; Sakr. A. Application of Raman spectroscopy for on-line monitoring of low dose blend uniformity. *International Journal of Pharmaceutics*, 298(12) :80–90, 2005.

[77] Muerza. S ; Berthiaux. H ; Massol-Chaudeur. S ; Thomas. G. A dynamic study of static mixing using on-line image analysis. *Powder Technology*, 128 :195–204, 2002.

[78] Berthiaux. H ; Mosorov. V ; Tomczak. L ; Gatumel. C ; Demeyre. J. F. Principal component analysis for characterising homogeneity in powder mixing using image processing techniques. *Chemical Engeering and Processing*, 45 :397–403, 2006.

[79] Daumann. B ; Nirschl. H. Assessment of the mixing efficiency of solid mixtures by means of image analysis. *Powder Technology*, 182 :415–423, 2008.

[80] Daumann. B ; Fath. A ; Anlauf. H ; Nirschl. H. Determination ofthemixingtimeinadiscontinuouspowdermixerbyusingimage analysis. *Chemical EngineeringScience*, 64 :2320–2331, 2009.

[81] Bruel. P ; Gouvre. R. *Caractérisation in-situ des milieux granulaires par analyse d'image*. Tome1, 141-146, Colloque physique et mécanique des materiaux granulaires.

[82] UMIST. Industrial process tomography at manchester. 2007.

[83] Dalloz-Dubujeaud.B ; Faure. R.N ; Giraud. R. Suivi en continu du mélange de deux poudres par mesure diélectrique. In *acte des journées scientifiques du LCPC*, 2000.

[84] Ehrhardt. H ; Montagne. M ; Berthiaux. H ; Dalloz-Dubrujeau. B ; Gatumel. C. Assessing the homogeneity of powder mixtures by on-line electrical capacitance. *Chemical Engineering and Processing*, 44(2) :303–313, 2005.

[85] Bruggeman. *D.A.G., Ann .Phy., Leipzig 24, p 636-679*.

[86] Gray. J. B. *Chem.eng.progr*, 53(25), 1957.

[87] Asthon. M. D ; Schofield. C ; Valentin. F. H. H. The use of a light probe for assessing homogeneity of powder mixtures. *Chemical Engineering Science*, 21 :843–49, 1966.

[88] Harwood. C ; Davies. R ; Jackson. M ; Freman. F. An optic probe for measuring the mixture composition of powders. *Powder Technology*, 5 :77–80, 1972.

[89] Lai. C. K ; Holt. D ; Leung. J. C ; Cooney. C. L ; Raju. G. K ; Hansen. P. Real time and noninvasive monitoring of dry powder blend homogeneity. *AIChE*, 11 :2618–2622, 2001.

[90] Sanders. C. F. W ; Hounslow. M. J ; Doyle III. F. J. Model predictive control of wet granulation using an experimentally validated population balance mode. *in AIChE Annual Meeting, San Francisco*, 2006.

[91] Glaser. T ; Sanders. C. F. W ; Wang. F. Y ; Cameron. I. T ; Lister. J. D ; Poon. J. M-H ; Romachandran. R ; Immanuel. C. D ; Dyle III. F. J. Model predictive control of continuous drum granulation of limestone. *in AIChE Annual Meeting*, 2007.

[92] Wang. F. J ; Ge. X. Y ; Balliu. N ; Cameron. I. T. Optimal control and operation of drum granulation processes. *Chemical Engineering Science*, 61 :257–267, 2006.

[93] Rose. H. E. A suggested equation relating to the mixing of powders and its application to the study of the performance of certain types of machines. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 37 :47, 1959.

[94] Koga. J ; Yamagauchi. K ; Inoue. I. Mixing of solid particles of different density in a horizontal batch mixer. measurement of axial diffusion coefficients. *Powder Technology*, 26 :127–130, 1980.

[95] Strek. F ; Rochomeicki. A ; Karcz. J. *Powder Technology*, 20 :243, 1978.

[96] Lai. F. S ; Fan. L. T ; Akao. Y. The convective mixing process and striated mixtures. *J Powd Bulk Sol Techno*, 2 :38–51, 1978.

[97] Sommer. K. Continuous powder mixing. *First International Particle Technology Forum Part III*, 4 :343–349, 1994.

[98] Kehlenbeck. V. Continuous dynamic mixing of cohesive powders. *Thèse de Doctorat, Technische Universität München—Lehstuhl fürMaschinen- und Apparatekunde*, 2007.

[99] Cundall. P. A. A computer model for simulating progresive large scale movements of blocky rock systems. *Procedding of the symposium of the international society of rock mechanics*, 1 :132–150, 1971.

[100] Cundall. P. A ; Strack O. D. L. A discrete numerical model for granular assemblies. *Géotechnique*, 29 :47–65, 1979.

[101] O'connor. R. A distributed discrete element modelling environment- algorithms implementation and applications. *Thèse de Doctorat, MIT*, 1996.

[102] Mûller. D. Techniques informatiques efficaces pour la simulation de milieux granulaires par des méthodes d'élements distincts. *Thèse de Doctorat, EPFL*, 1996.

[103] Chung. K ; Weng. W. Quick collision detection of polytopes in virtual environments. *iN PROC 3.rd ACM Sympos. Virtual Reality Software and Technology*, pages 125–132, 1996.

[104] Lin. X ; Ng. T. Contact detection algorithms for three-dimensional ellipsoids in dicrete element modelling. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 19 :653–659, 1995.

[105] Trabelsi. B ; Moakher. M. An efficient algorithm for discree element simulation of granular mixing of ellipsoidal grains. In *Proceeding of the First Euromediterraean Symposium on Advances in Geomaterials and structures Hammamet Tunisia, P :77-81*, 2006.

[106] Ferrez. J. A. Dynamic triangulations for efficient 3d simulation of granular material-stechniques informatiques efficaces pour la simulation de milieux granulaires par des méthodes d'élements distincts. *Thèse de Doctorat, EPFL*, 2001.

[107] Kaneko. Y ; Shiojima. T ; Horio. M. Numerical analysis of particle mixing characteristics in a single helical ribbon agitator using dem simulation. *Powder Technology*, 108 :55–64, 2000.

[108] Srewart. R ; Bridgwater. J ; Zhou. Y. C ; Yu. A. B. Simulated and measured flow of granules in a bladed mixer - a detailled comparaison. *Chemical engineering science*, 56 :5457–5471, 2001.

[109] Clearly. P. W ; Laurent. B ; Bridgwater. J. DEM prediction of flow patterns and mixing rates in a ploughshare mixer. *Proceeding of the "World Congress on Particle Technology 4", Sydney (Australia)*, 2002.

[110] Lemieux. M ; Léonard. G ; Doucet. J ; Viens. F ; Leclaire. L. A ; Chaouki. J ; Bertrand. F. Large-scale numerical investigation of solids mixing in a v-blender using the discrete element method. *Powder Technology*, 181 :205–216, 2008.

[111] Bertrand. F ; Leclaire. L. A ; Levecque. G. DEM-based models for the mixing of granular materials. *Chemical Engineering Science*, 60 :2517–2531, 2005.

[112] Tamir. A. *Application of Markov chains in chemical ingineering.* Elsevier, 1998.

[113] Fox. R ; Fan. L. Stochastic analysis of axial solids mixing in a fluidised bed. In *1st world congress on particle technology*, 1986.

[114] Dehling. H ; Hoffman. A ;Stuut. H. Stochastic models for transport in a fluidized bed. *SIAM Journal of Applied Mathematics*, 60 :337–358, 1999.

[115] Harris. A. T ; Thorpe. R. B ; Davidsona. J. F. Stochastic modelling of the particle residence time distribution in circulating fuidised bed risers. *Chemical Engineering Science*, 57 :4779–4796, 2002.

[116] Inoue. I ; Yamaguchi. K. Particle motion in a mixer. mixing in a two dimensional v-type mixe. *International Chemical Engineering*, 10(3) :490–497, 1970.

[117] Chen. S. J ; Fan. L. T ; Watson. C. A. The mixing of solid particles in a motionless mixer – a stochastic approach. *AIChE Journal*, 18(5) :984–989, 1972.

[118] Lai. F. S ; Fan. L. T. Application of discrete mixing model to the study of mixing of multicomponent solid particles. *Industrial & Engineering Chemistry – Process Design and Development*, 14(4) :403–411, 1975.

[119] Aoun Habbache. M ; Aoun. M ; Berthiaux. H ; Mizonov. V. An experimental method and a markov chain model to describe axial and radial mixing in a hoop mixer. *Powder Technology*, 128 :159–167, 2002.

[120] Berthiaux.H ; Mizonov. V. Application of markov chains in particulate process engineering : A review. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 82(6) :1143–1168, 2004.

[121] Berthiaux. H ; Marikh. K ; Mizonov. V ; Ponomarev. D ; Barantzeva. E. Modeling continuous powder mixing by means of the theory of markov chains. *Particulate Science and Technology*, 22 :379–389, 2004.

[122] Oyama. Y ; Agaki. K. Studies on the mixing of particulate solids. *Kagaku Kogaku (Japan)*, 20 :148–154, 1956.

[123] Wang. R ; Fan. L. T. Axial mixing of grains in a motionless sulzer (Koch) mixer. *Industrial & Engineering Chemistry : Process Design & Development*, 15(3) :381–388, 1976.

[124] Wang. R ; Fan. L. T. Stochastic modelling of segregation in a motionless mixer. *Chemical Engineering Science*, 32 :695–701, 1977.

[125] Fan. L. T ; Shin. S. H. Stochastic diffusion model of non-ideal mixing in a horizontal drum mixer. *Chemical Engineering Science*, 34 :811–820, 1979.

[126] Ponomarev. D ; Mizonov. V ; Berthiaux. H ; Gatumel. G ; Gyenis. J ; Barantseva. E. A 2D Markov chain for modelling powder mixing in alternately revolving static mixers of

Sysmix® type. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*, 48 :1495–1505, 2009.

[127] Berthiaux. H ; Marikh. K ; Gatumel. G. Continuous mixing of powder mixtures with pharmaceutical process constraints. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*, 47 :2315–2322, 2008.

[128] Doucet. J ; Hudon. N ; Bertrand. F ; Chaouki. J. Modeling of the mixing of monodisperse particles using a stationary DEM-Based Markov process. *Computers Chemical Engineering*, 32 :1334–1341, 2008.

Annexes

.1 Annexe 1

Techniques d'analyse en ligne : Comparaison entre spectroscopie Raman et HPLC (d'après[74]) :

Sample code	Raman		HPLC	
	Salicylic acid found (%, w/w)	Deviation from 20% (%)	Salicylic acid found (%, w/w)	Deviation from 20% (%)
O1	20.85	4.25	20.44	2.20
O2	19.55	2.25	19.34	3.30
O3	21.56	7.80	20.47	2.35
O4	20.36	1.80	20.35	1.75
O5	20.80	4.00	19.61	1.95
O6	20.22	1.10	19.79	1.05
O7	19.68	1.60	20.10	0.50
O8	19.32	3.40	20.82	4.10
O9	20.48	2.40	20.12	0.60
O10	24.21	21.05	19.98	0.10
O11	22.84	14.20	22.48	12.40
O12	21.37	6.85	20.04	0.20
O13	15.91	20.45	17.35	13.25
O14	24.36	21.80	20.06	0.30
O15	21.70	8.50	20.45	2.25
O16	19.56	2.20	20.09	0.45
O17	22.77	13.85	20.59	2.95
O18	23.47	17.35	20.01	0.05
O19	20.94	4.70	20.42	2.10
O20	20.29	1.45	20.58	2.90
O21	22.96	14.80	20.23	1.15
O22	22.06	10.30	21.00	5.00
O23	21.82	9.10	20.72	3.60
O24	16.83	15.85	17.09	14.55
O25	20.46	2.30	21.38	6.90

FIGURE 28 – Comparaison des résultats obtenus par FT-Raman et par HPLC pour de 25 différents mélanges,d'après[74])

.2 Annexe 2

Interprétation des Indices de Carr et Haussner :

indice de Carr (%)	Coulabilité	Ratio de Hausner
<10	Excellent	1,00–1,11
11–15	Bon	1,12–1,18
16–20	Assez bon	1,19–1,25
21–25	Passable	1,26–1,34
26–31	Mauvais	1,35–1,45
32–37	Très Mauvais	1,46–1,59
>38	Très très Mauvais	>1,60

FIGURE 29 – Interprétation des Indices de Carr et Haussner

.3 Annexe 3

Exemples de validation de la technique d'analyse en ligne par traitement d'images (cas du mélange 1) :

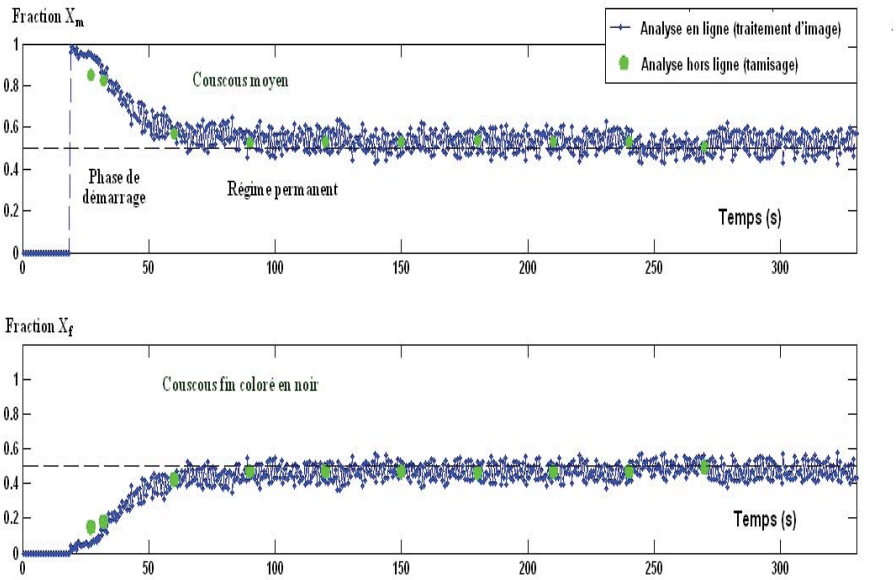


FIGURE 30 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 20Hz$; composition du mélange : 50%)

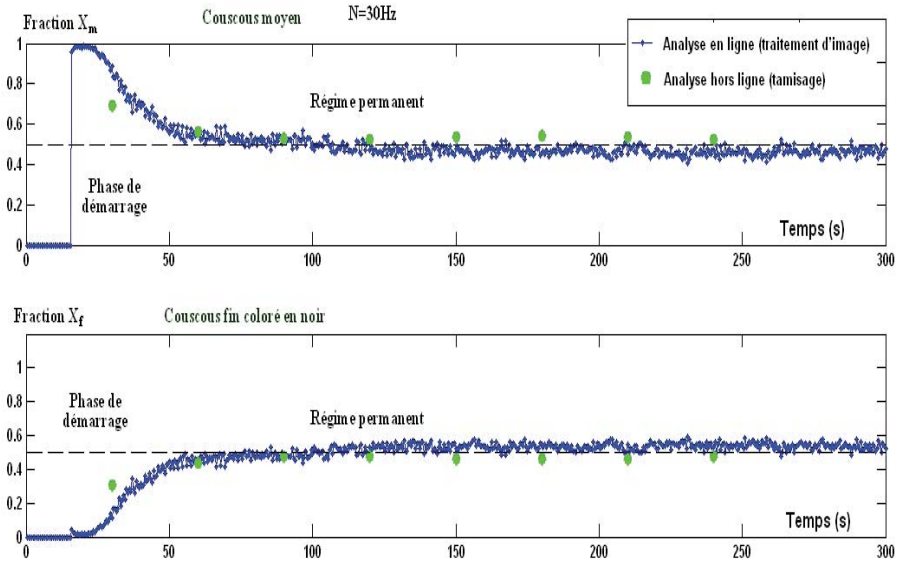


FIGURE 31 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$; composition du mélange : 50%)

Exemples de validation de la technique d'analyse en ligne par traitement d'images (cas du mélange 1) :

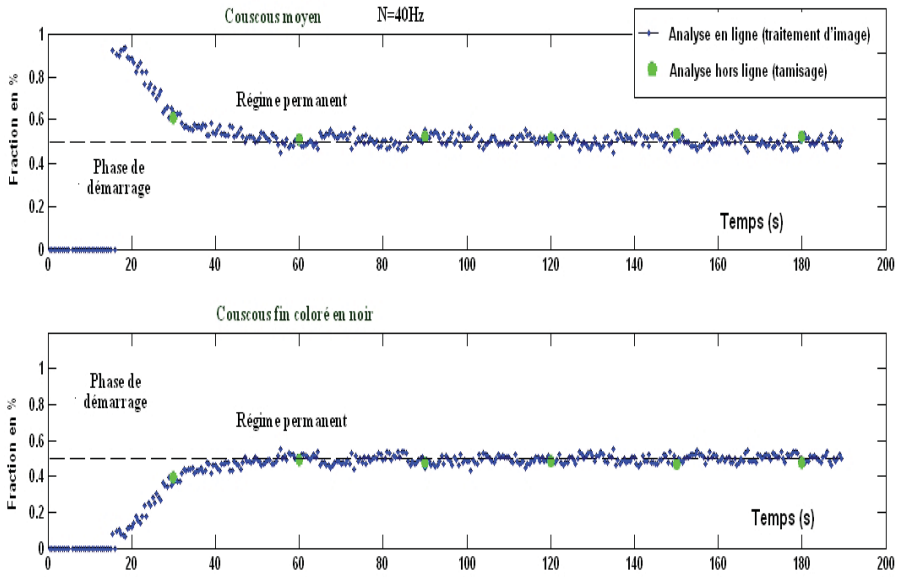


FIGURE 32 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 50%

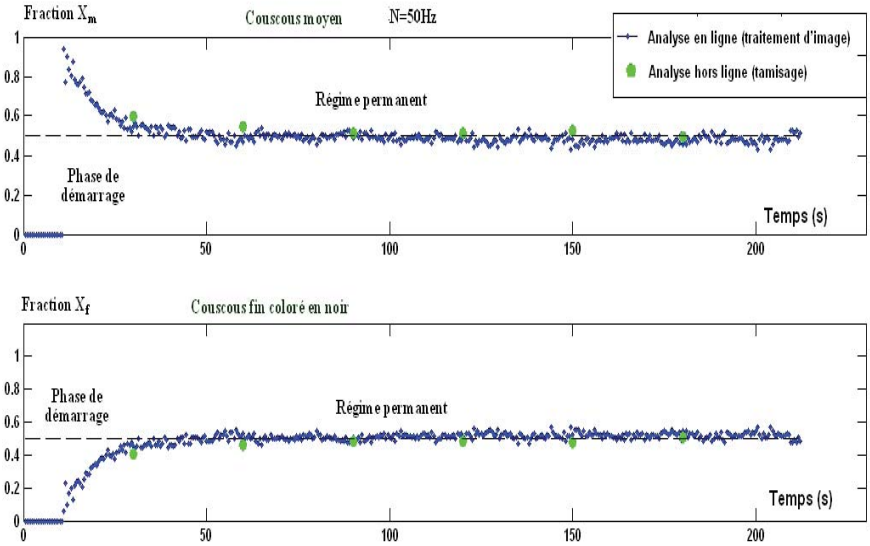


FIGURE 33 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 50Hz$; composition du mélange : 50%)

Exemples de validation de la technique d'analyse en ligne par traitement d'images (cas du mélange 2) :

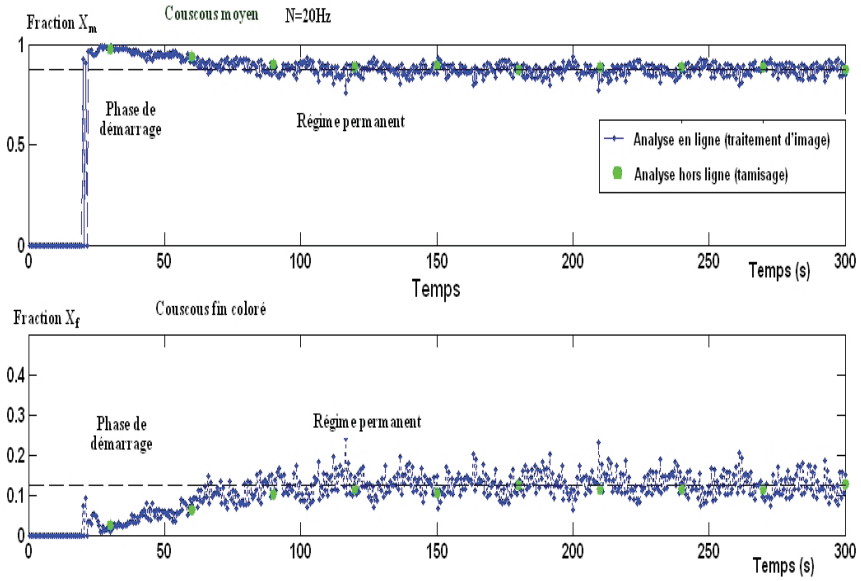


FIGURE 34 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 20Hz$; composition du mélange : 12,5%)

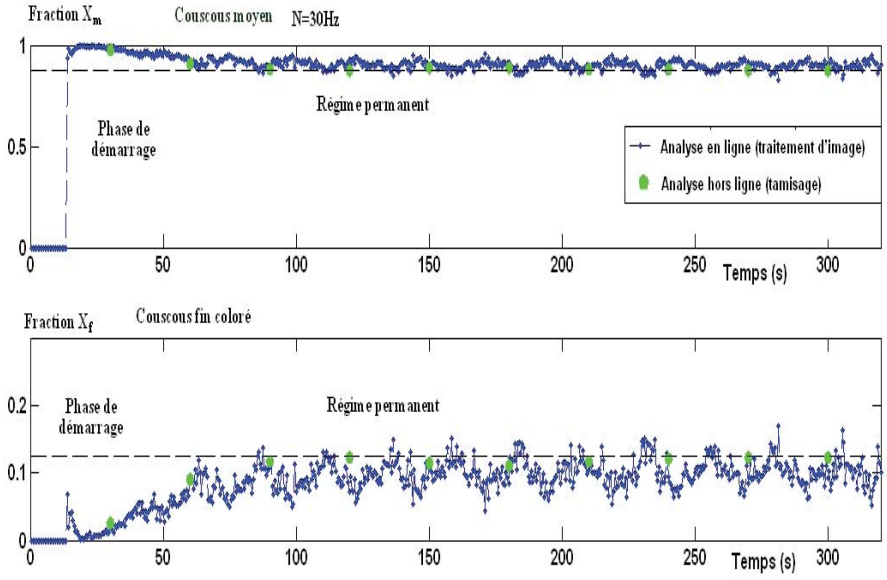


FIGURE 35 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$; composition du mélange : 12,5%)

Exemples de validation de la technique d'analyse en ligne par traitement d'images (cas du mélange 2) :

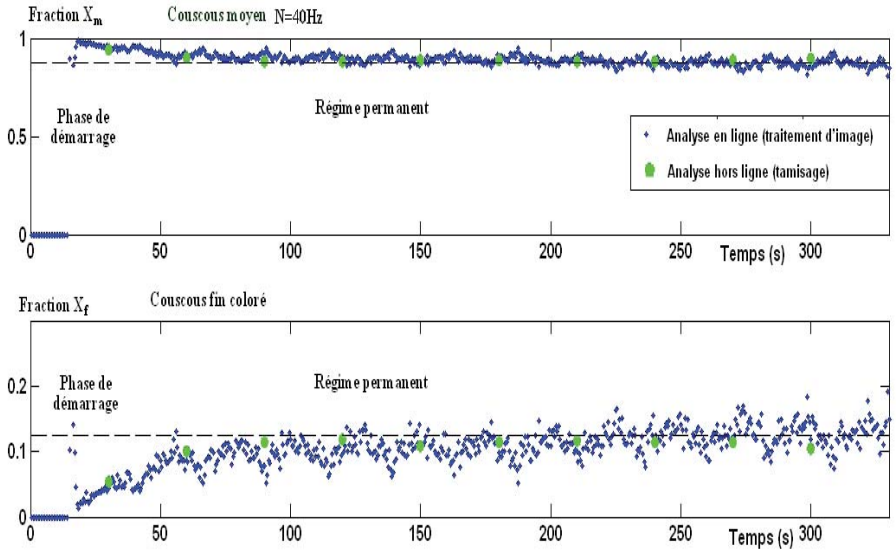


FIGURE 36 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 12,5%)

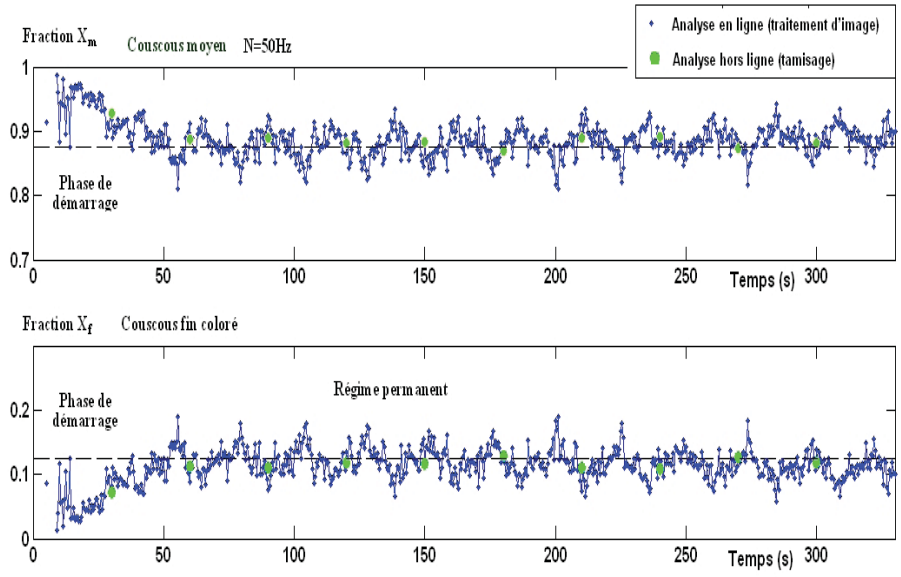


FIGURE 37 – Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 50Hz$; composition du mélange : 12,5%)

.4 Annexe 4

Mesure de la masse retenue et de débit de sortie lors de la vidange à différentes vitesse d'agitation :

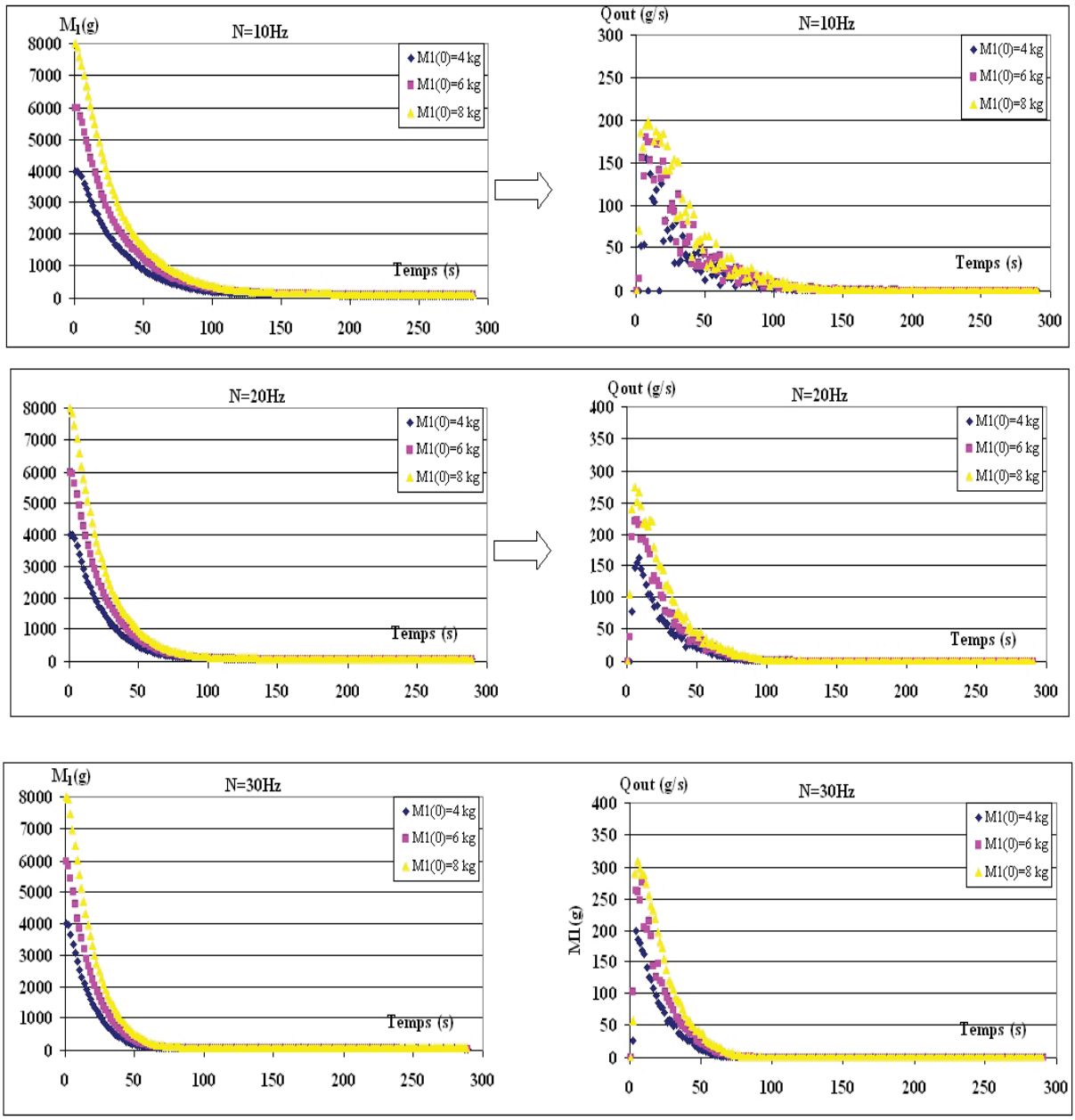


FIGURE 38 – Évolution de la masse retenue et de débit de sortie pendant la vidange (couscous moyen ; $\Delta t = 1,6s$)

Mesure de la masse retenue et de débit de sortie lors de la vidange à différentes vitesse d'agitation

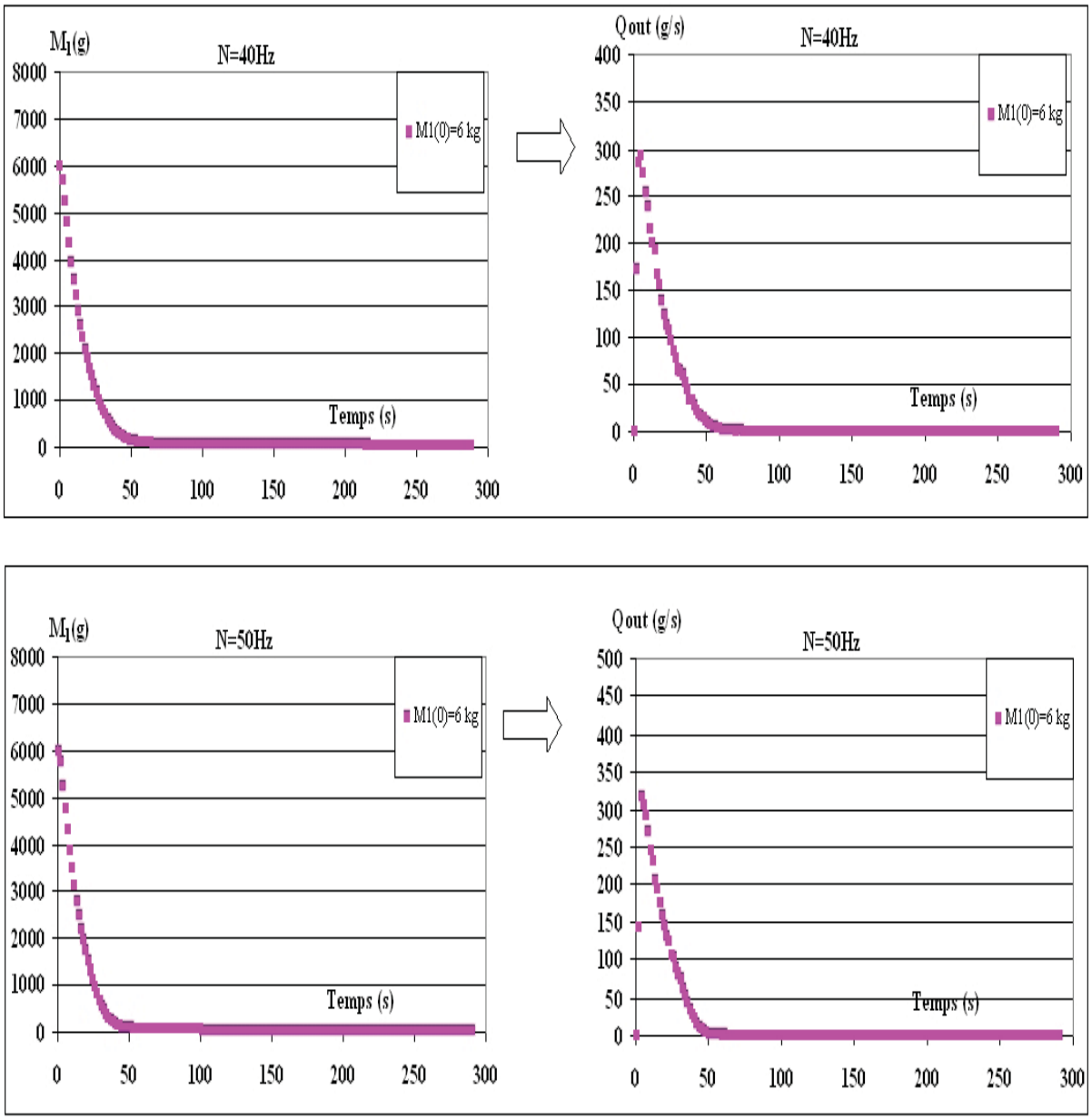


FIGURE 39 – Évolution de la masse retenue et de débit de sortie pendant la vidange (couscous moyen ; $\Delta t = 1,6s$)

.5 Annexe 5

Évolution des débits internes ($Qout_i$) en fonction des masses retenues (Mc_i) dans les différents cellules du mélangeur.

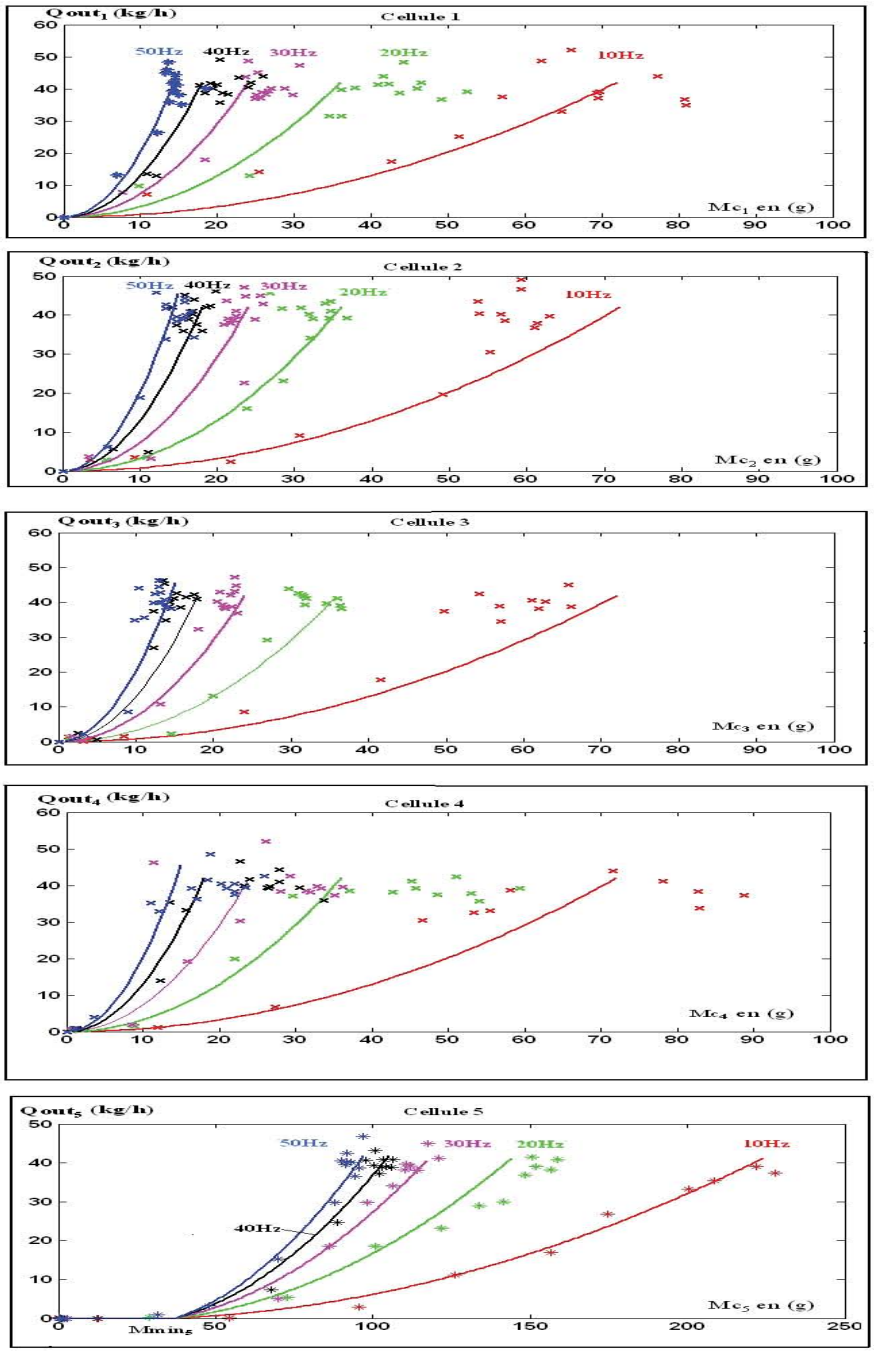


FIGURE 40 – Évolution de débits intermédiaires $Qout_i$ en fonction des masses retenues Mc_i, pendant le démarrage, pour différentes vitesses N ($\Delta t = 0.1s$)

.6 Annexe 6

Validation du modèle à 2 cellules : effet d'un échelon de vitesse N

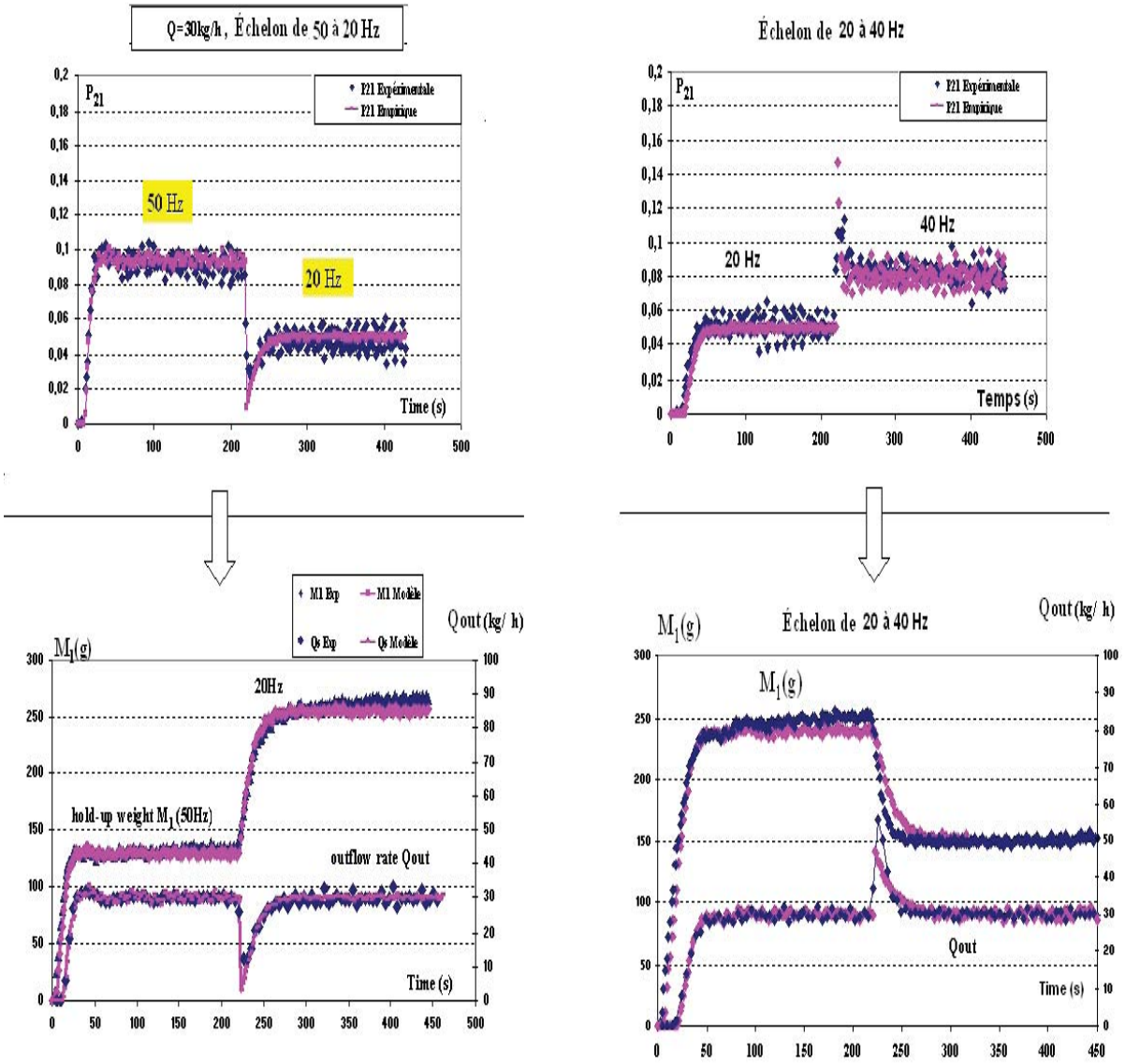


FIGURE 41 – Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de vitesse N (Q=30 $kg.h^{-1}$)

Validation du modèle à 2 cellules : effet d'un échelon de vitesse N

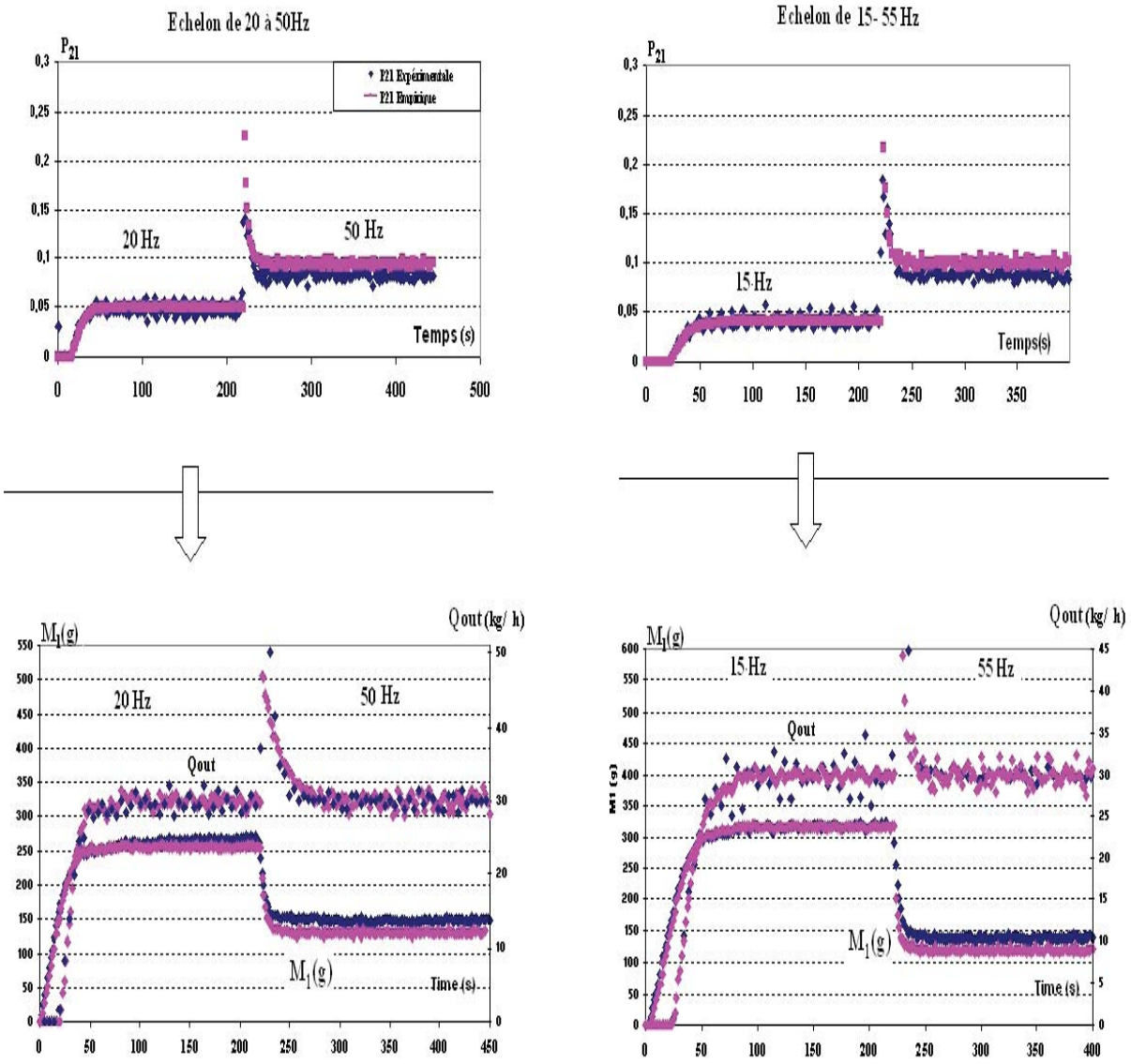


FIGURE 42 – Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de vitesse N (Q=30 $kg.h^{-1}$)

Validation du modèle à 2 cellules : effet d'un échelon de débit Q

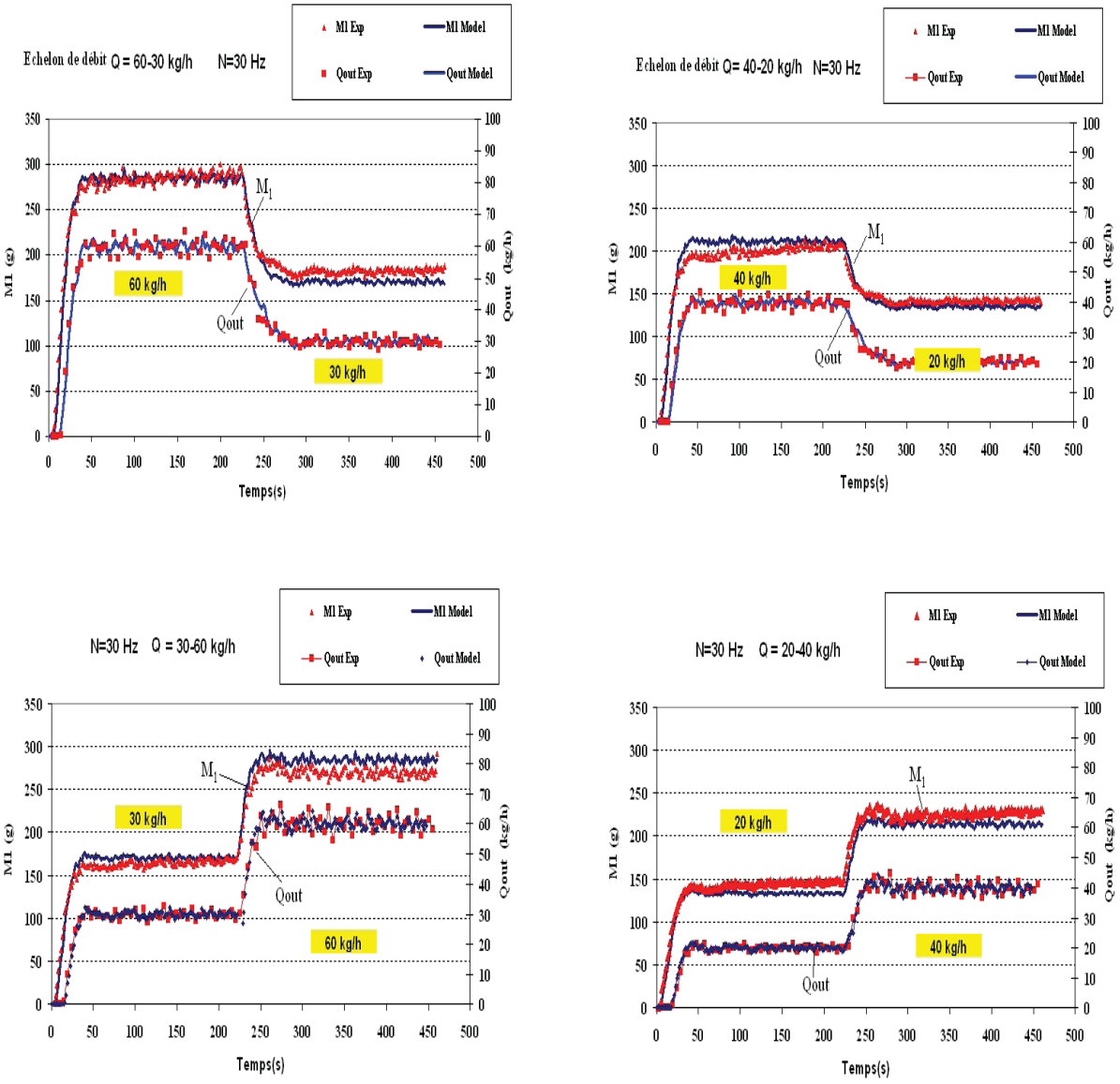


FIGURE 43 – Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de débit Q ($N = 30Hz$)

Validation du modèle à 2 cellules : Démarrage à différent débits Q (N=40Hz)

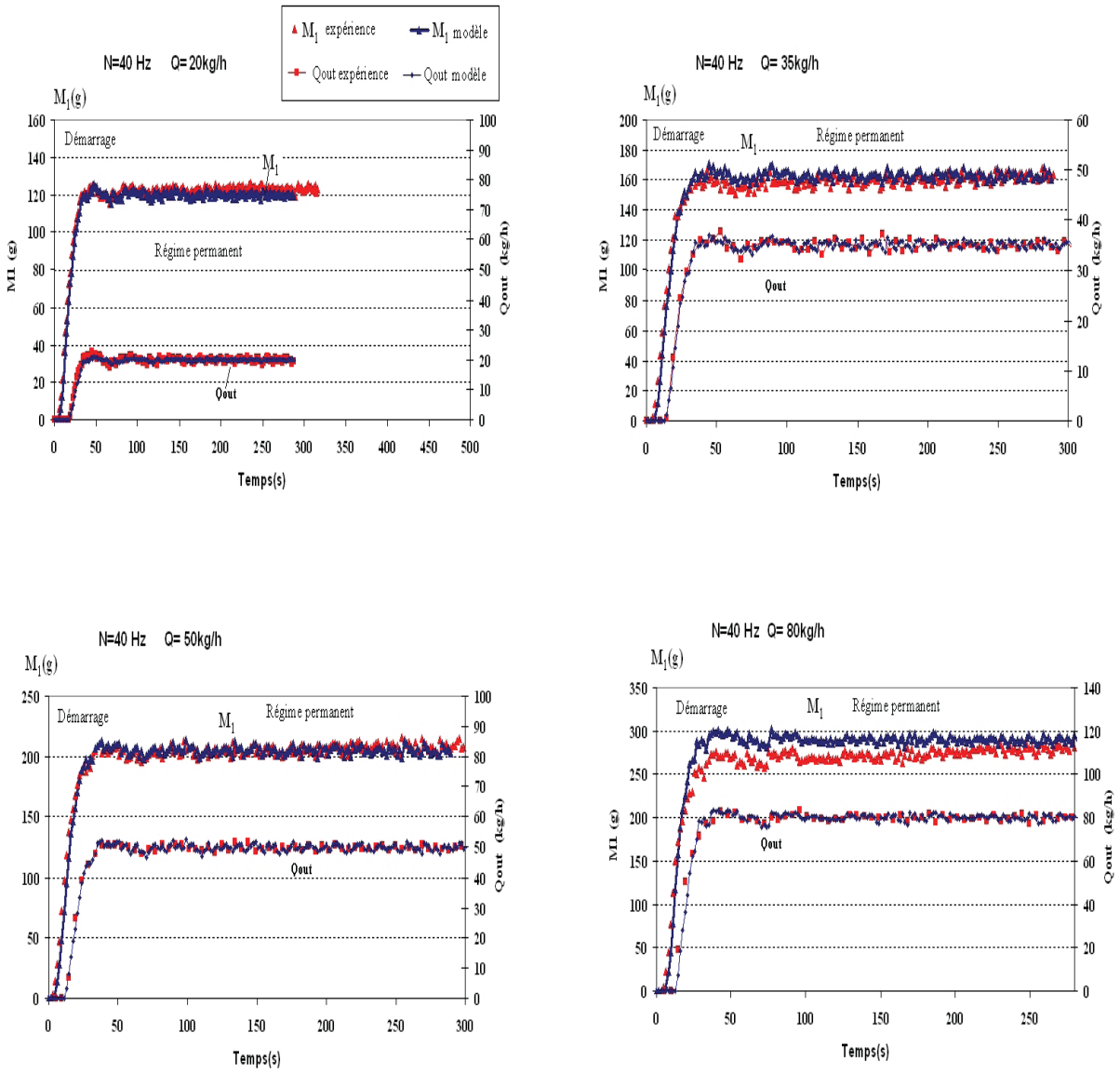


FIGURE 44 – Confrontation modèle – expérience lors de démarrage à différent débits Q ($N = 40Hz$)

Validation du modèle à 2 cellules : Démarrage à différent débits Q (N=50Hz)

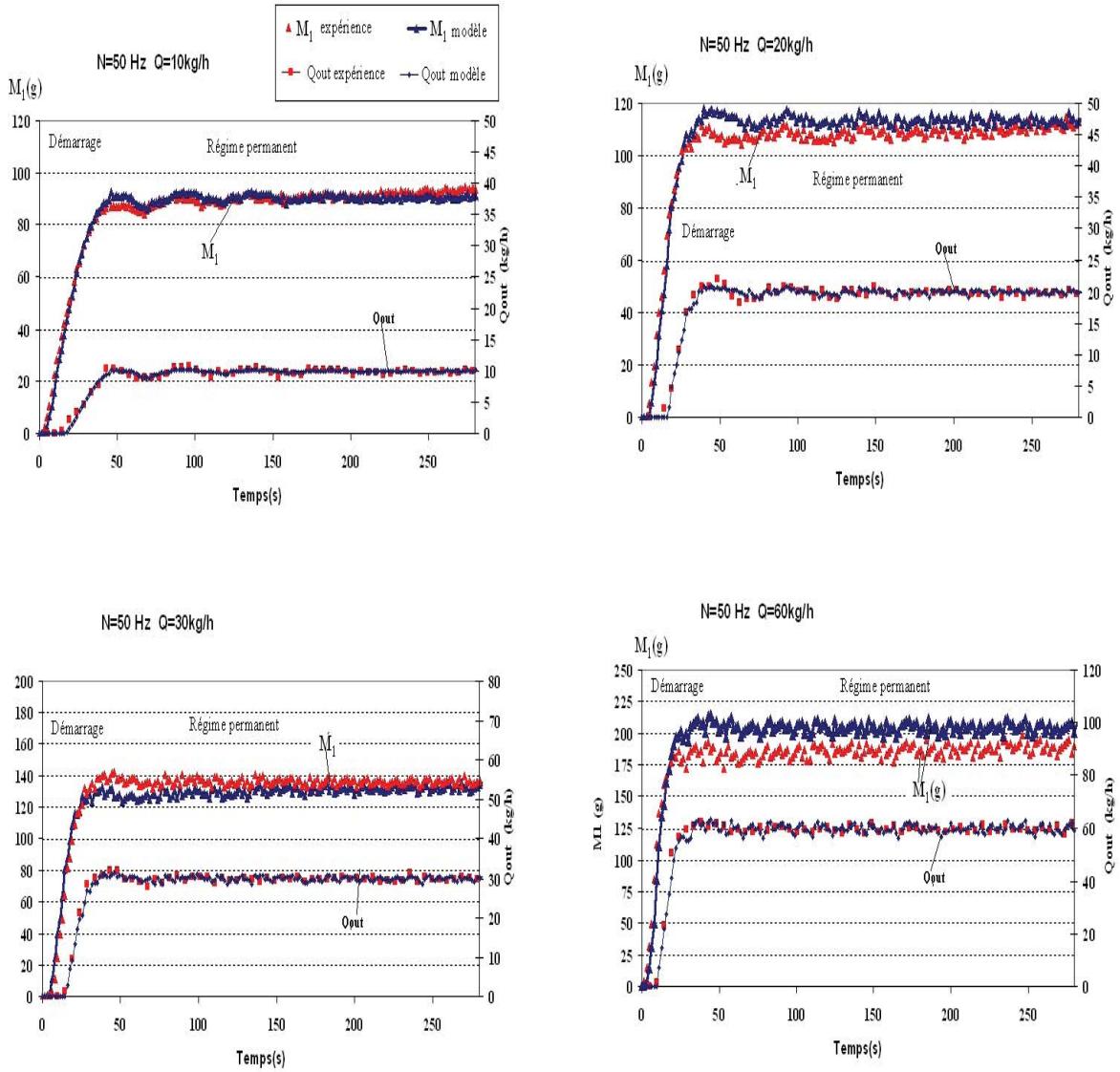


FIGURE 45 – Confrontation modèle – expérience lors de démarrage à différent débits Q ($N = 50Hz$)

.7 Annexe 7

Confrontation modèle non homogène- expérience

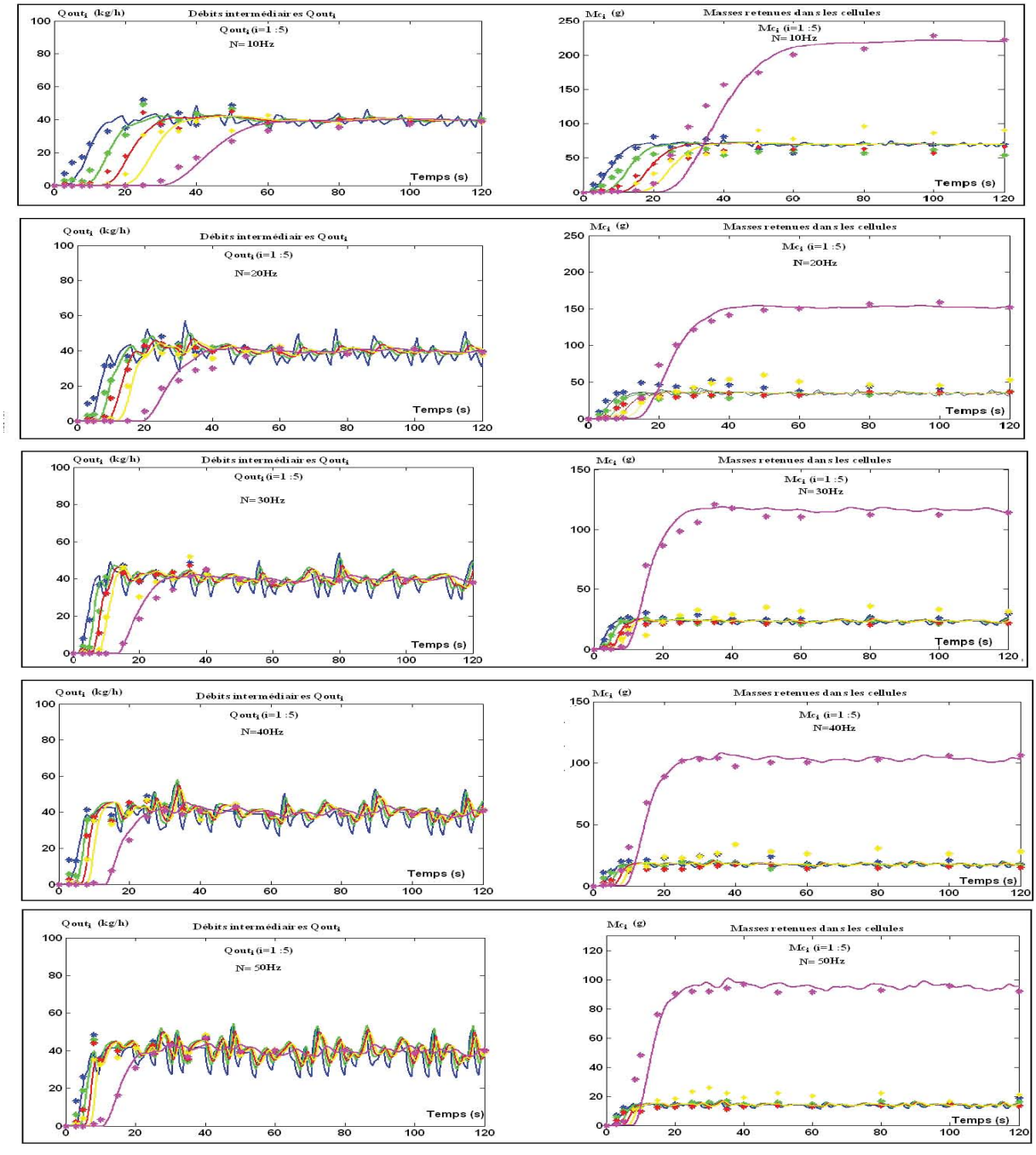


FIGURE 46 – Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage et en régime permanent pour différentes N

Confrontation modèle non homogène- expérience

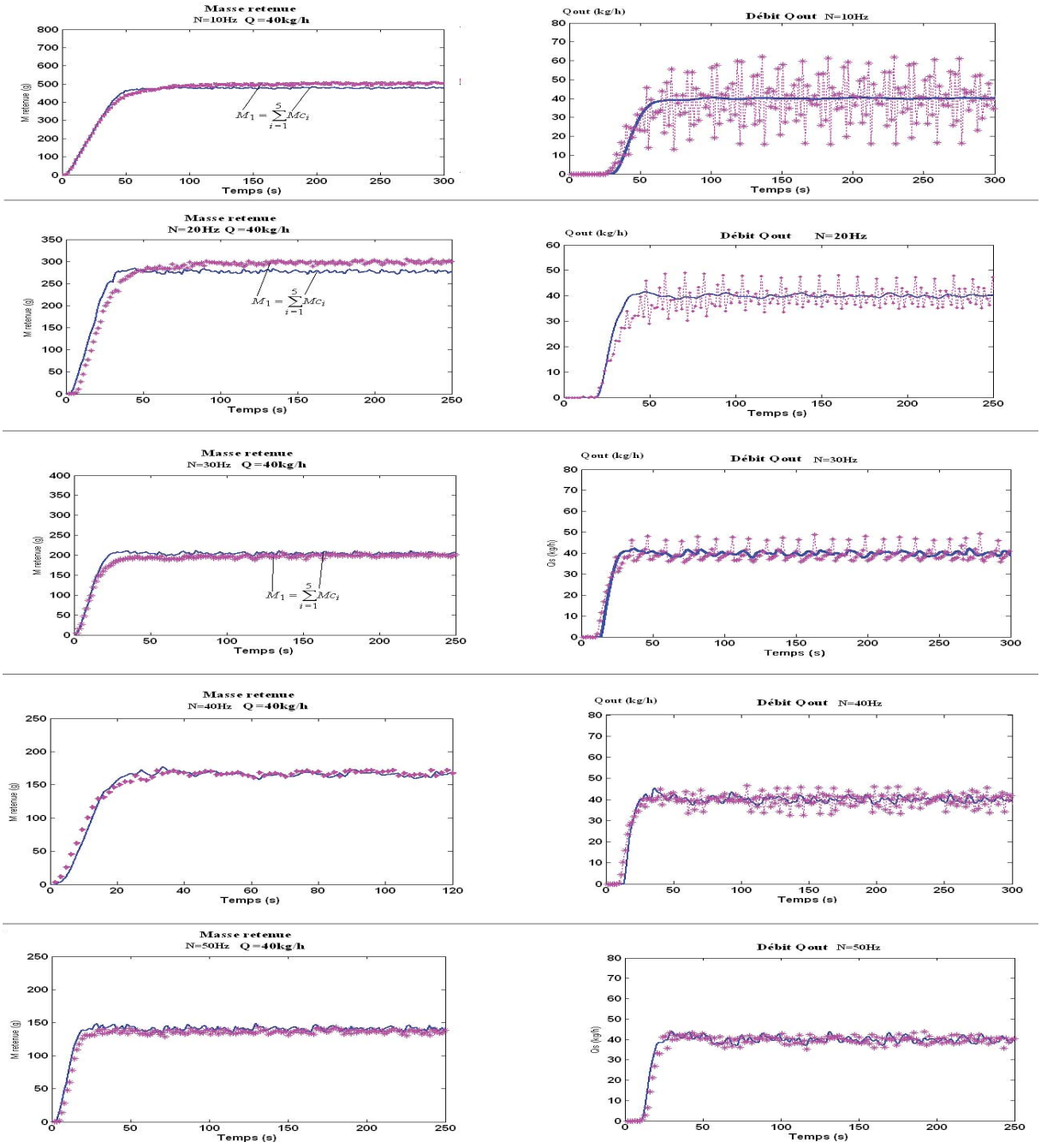


FIGURE 47 – Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage et en régime permanent pour différentes N

.8 Annexe 8

Masses retenues du mélange 1 comparées aux masses retenues des produits purs (couscous moyen et couscous fin) dans les mêmes conditions.

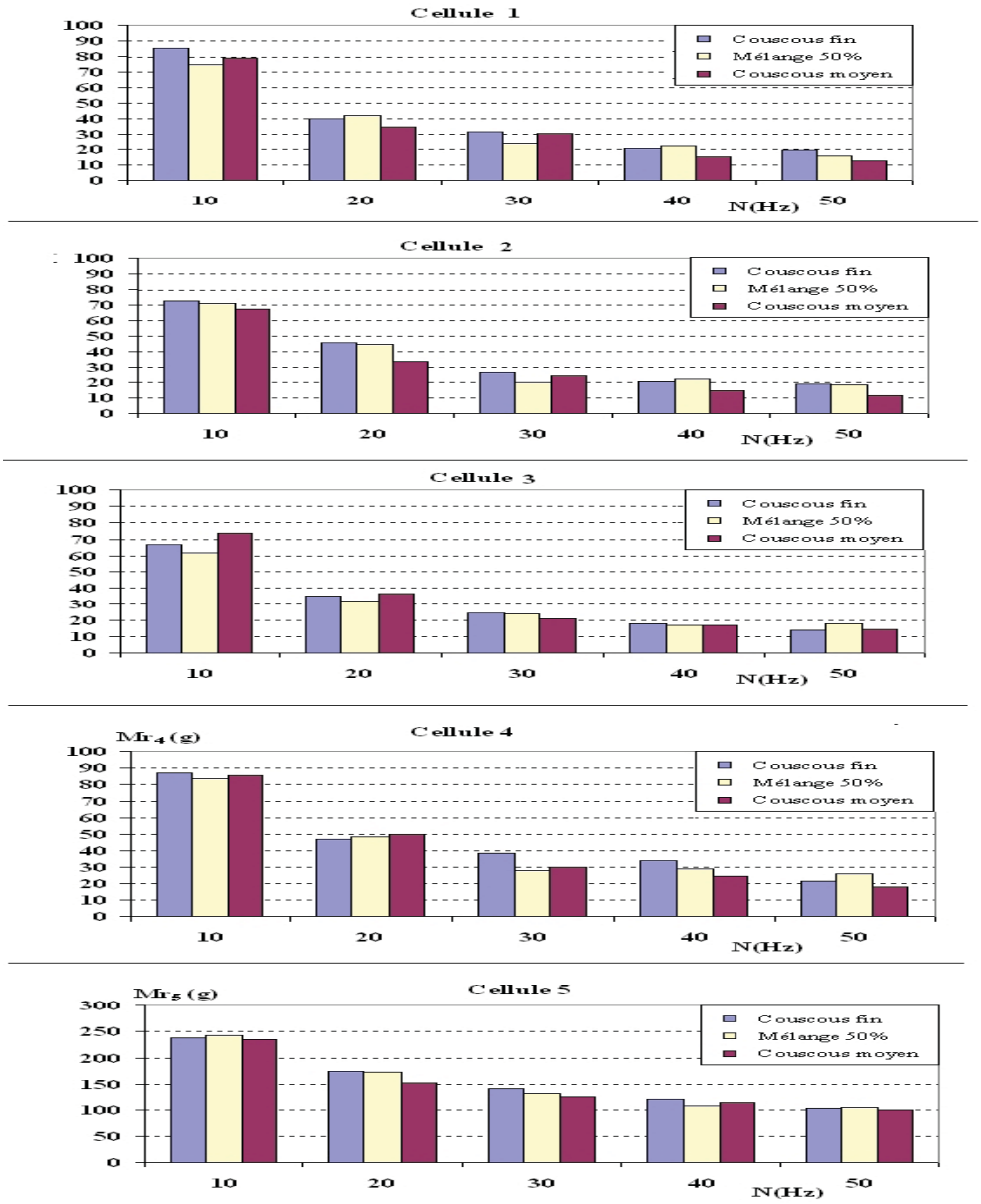


FIGURE 48 – Masses retenues du mélange à 50% comparées aux masses retenues des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$)

.9 Annexe 9

Masses retenues du mélange 2 comparées aux masses retenues des produits purs (couscous moyen et couscous fin) dans les mêmes conditions.

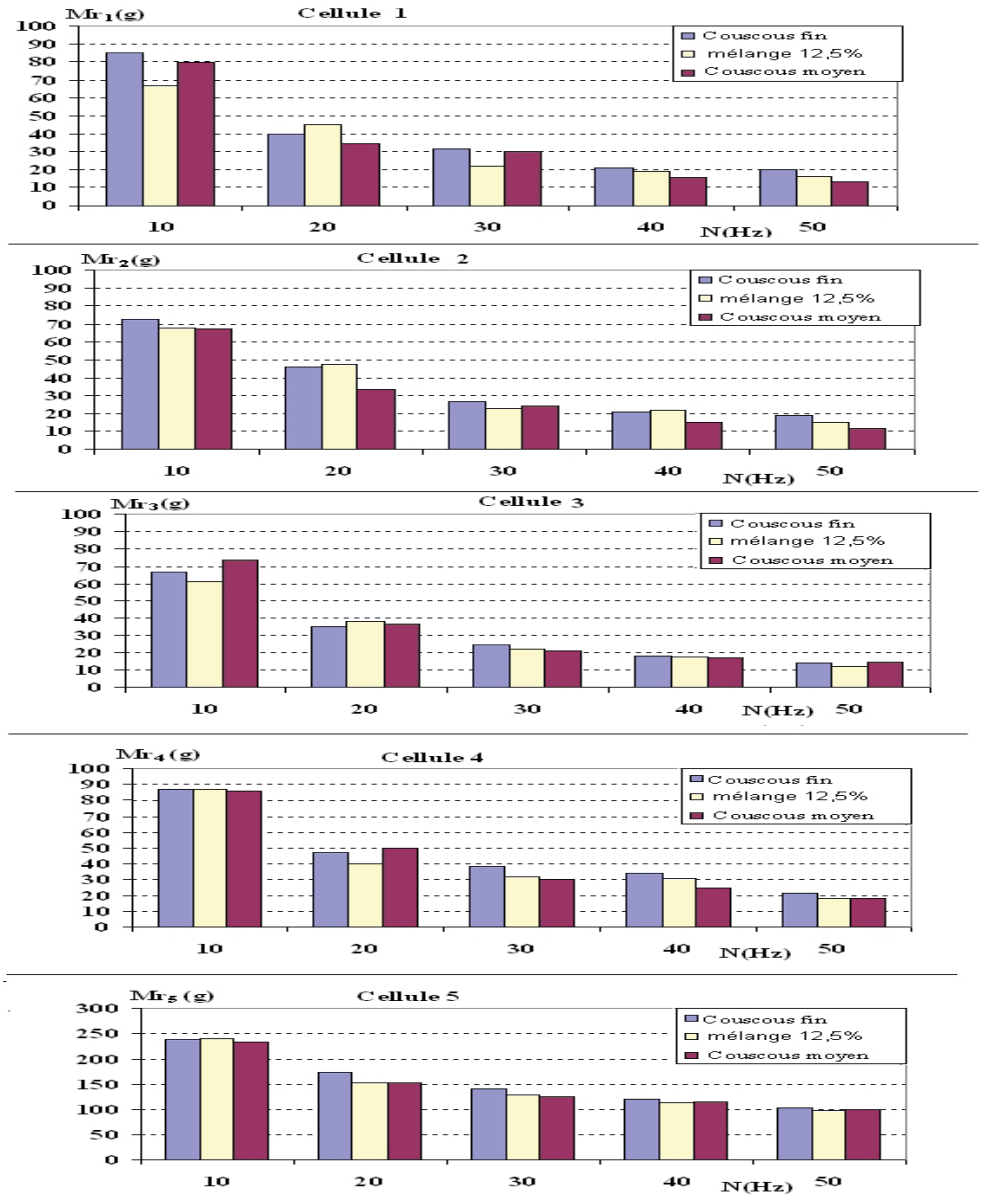


FIGURE 49 – Masses retenues du mélange à 12.5% comparées aux masses retenues des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$)

.10 Annexe 10

Homogénéité du mélange 1 pour différentes échelles d'observation (N =40Hz)

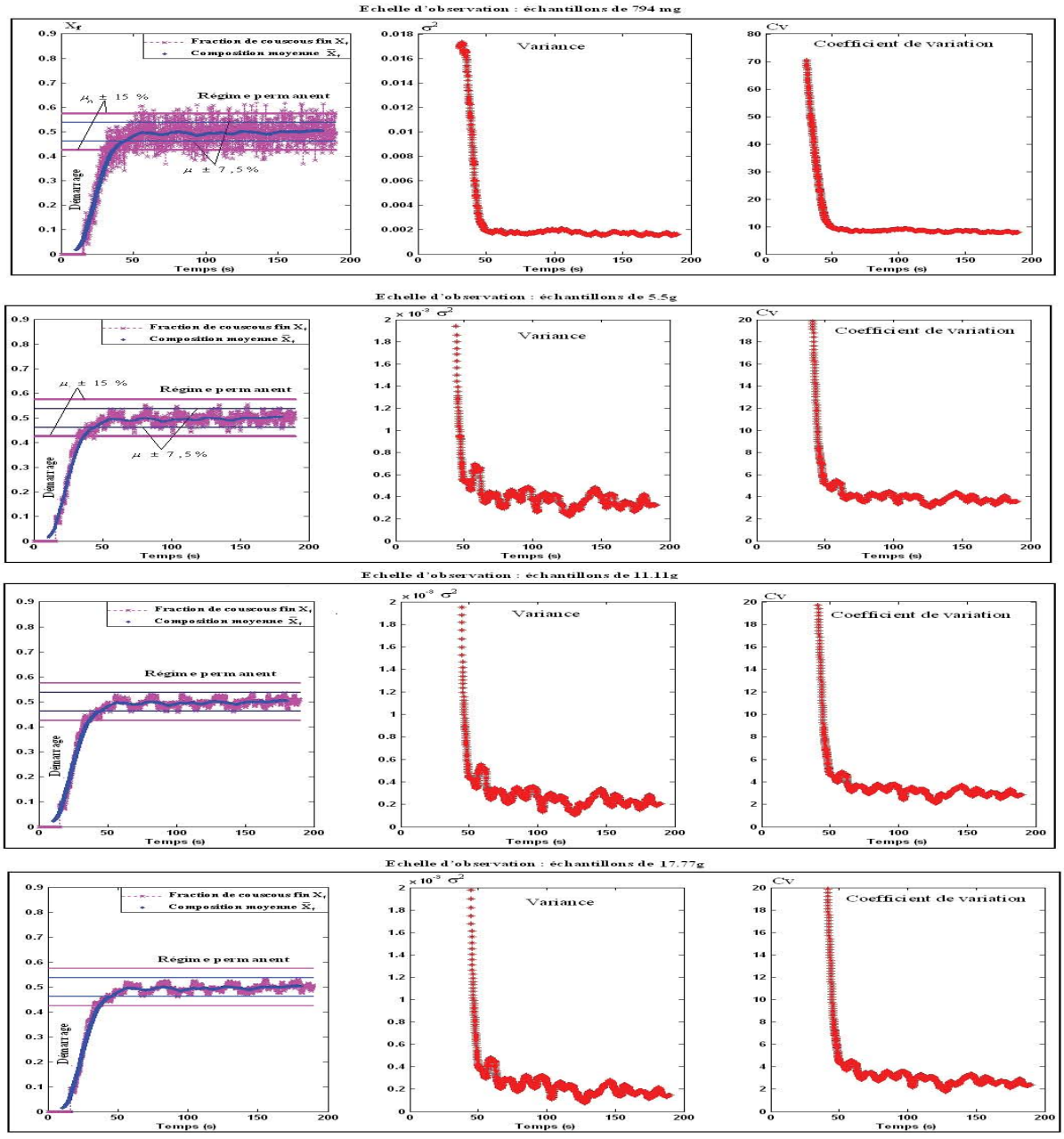


FIGURE 50 – Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 40Hz$)

Homogénéité du mélange 1 pour différentes échelles d'observation (N =40Hz)

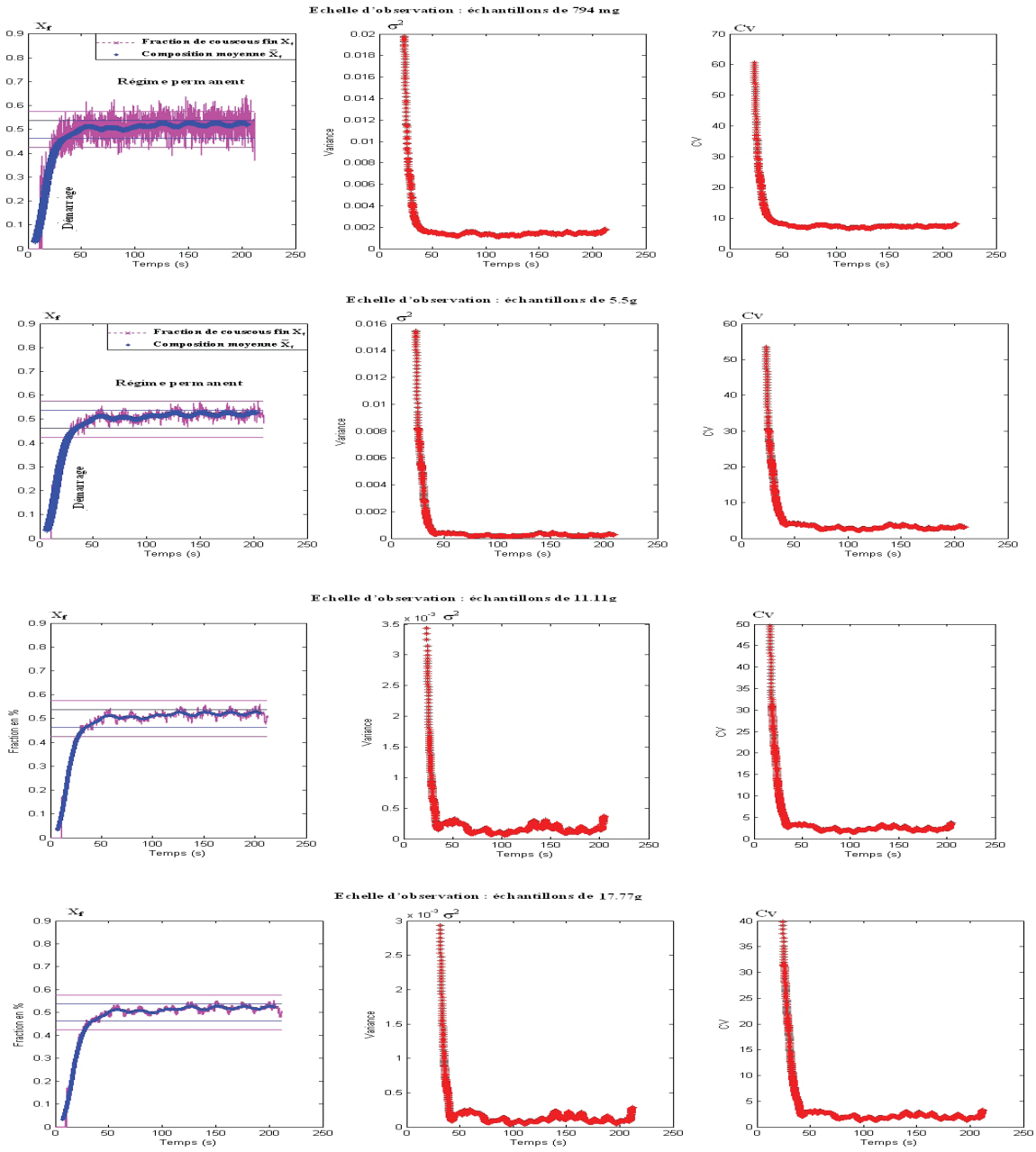


FIGURE 51 – Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 50Hz$)

Homogénéité du mélange 1 pour différentes échelles d'observation (N =40Hz)

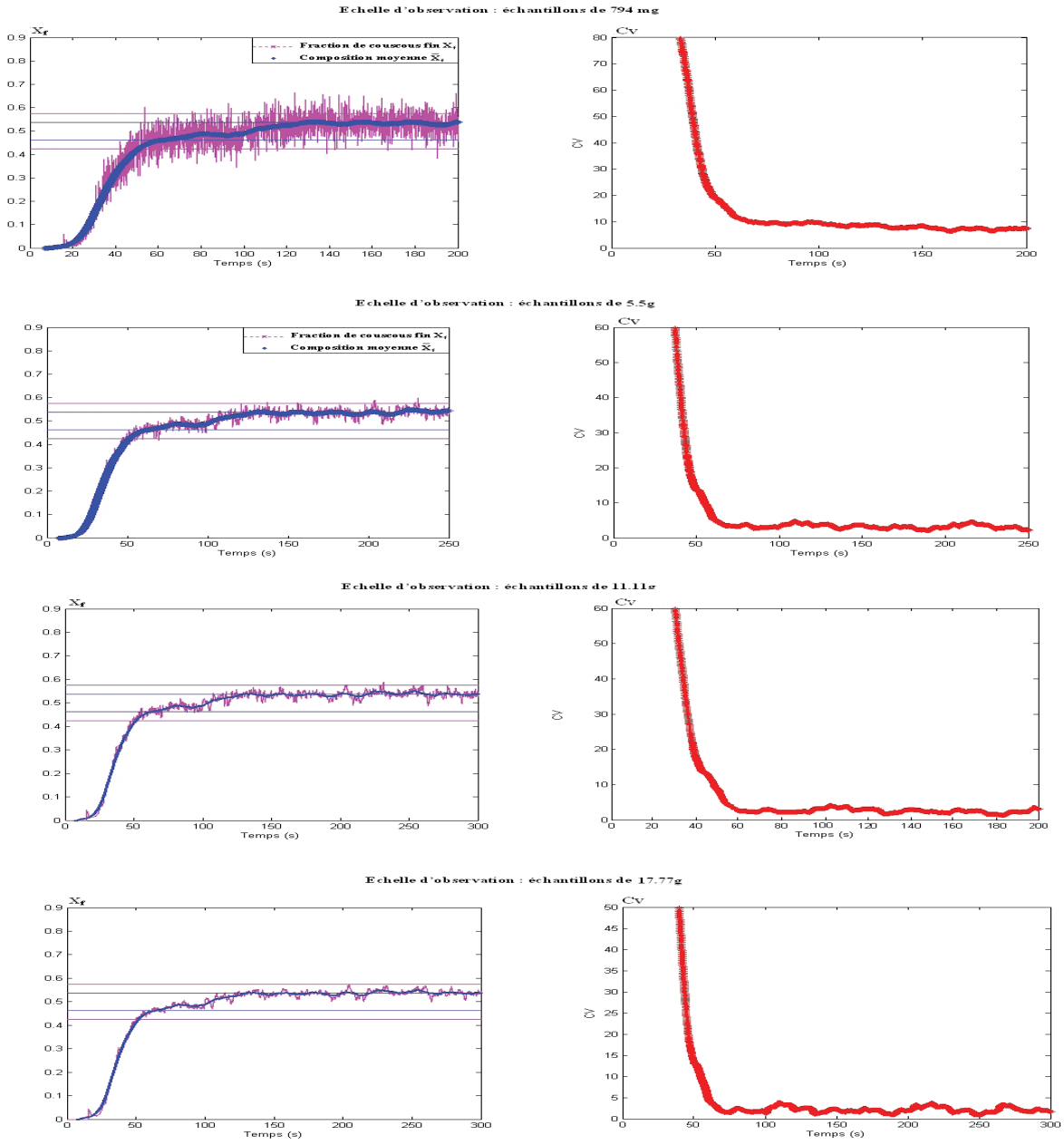


FIGURE 52 – Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 30Hz$)

Homogénéité du mélange 1 pour différentes échelles d'observation (N =40Hz)

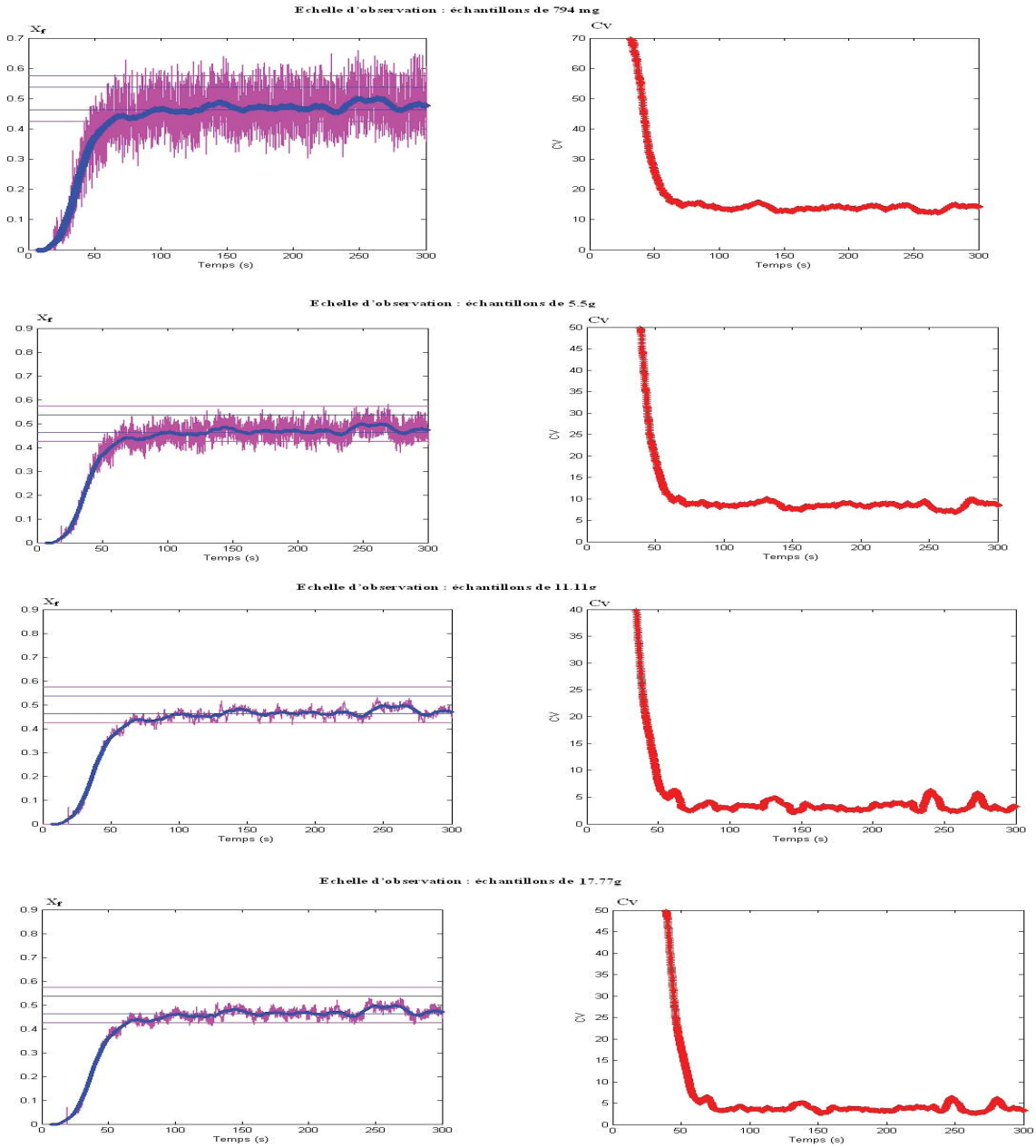


FIGURE 53 – Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 20Hz$)

.11 Annexe 11

Effet d'un échelon de vitesse d'agitation sur l'homogénéité du mélange 1

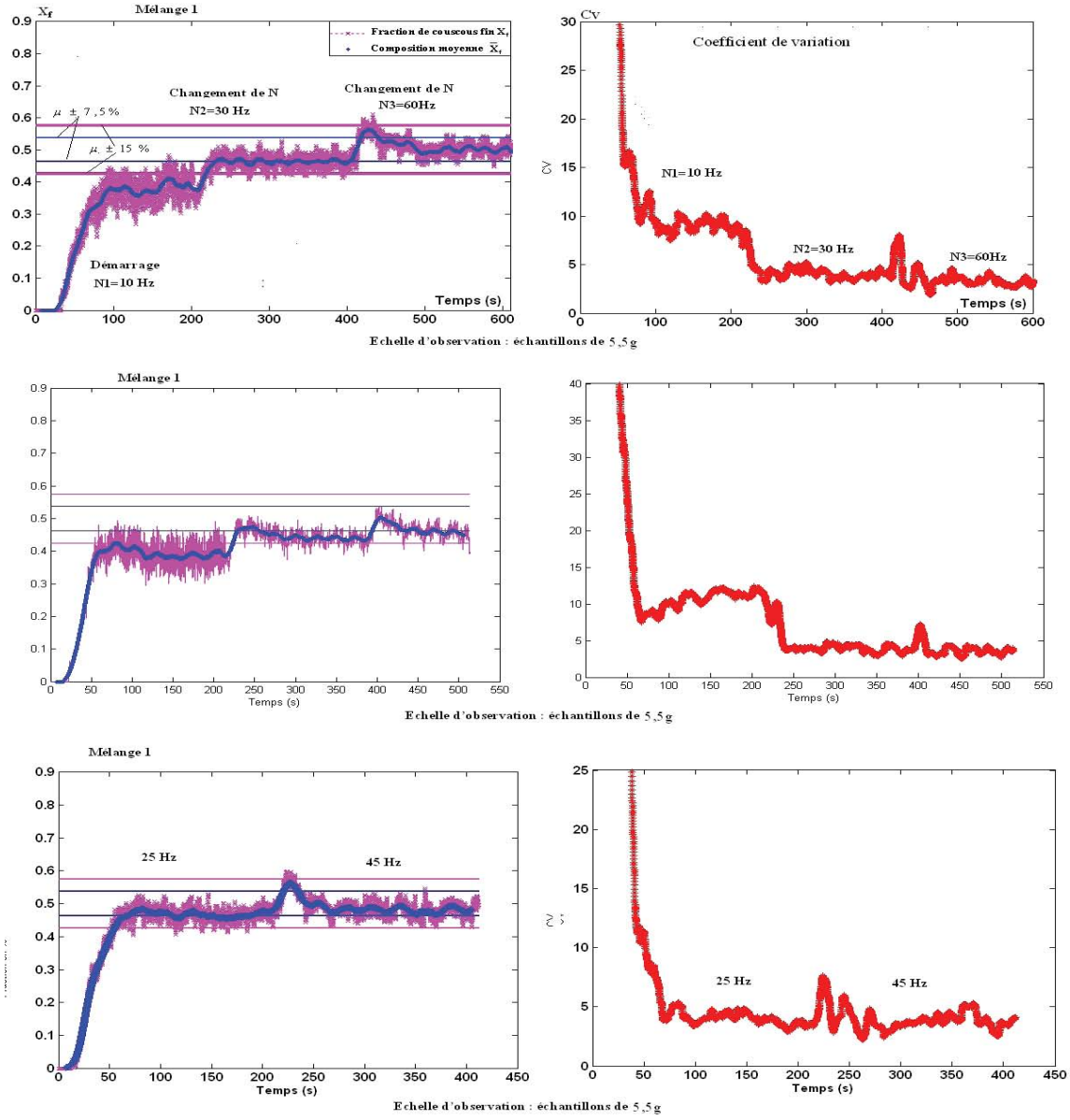


FIGURE 54 – Effet de brusques variations de la vitesse N : échelon positif

Effet d'un échelon de vitesse d'agitation sur l'homogénéité du mélange 1

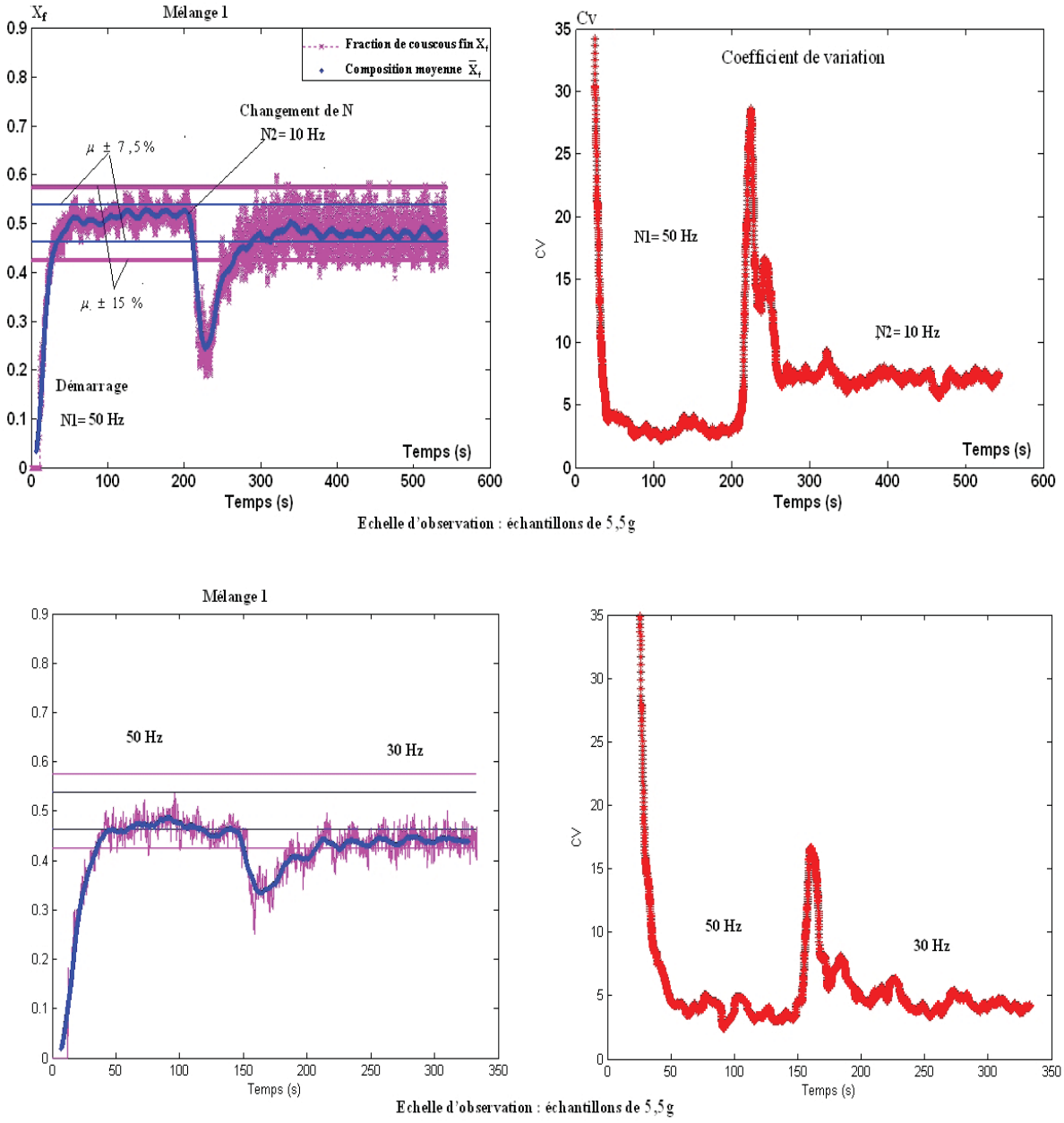


FIGURE 55 – Effet de brusques variations de la vitesse N : échelon négatif

Effet d'un échelon de vitesse d'agitation sur l'homogénéité du mélange 2

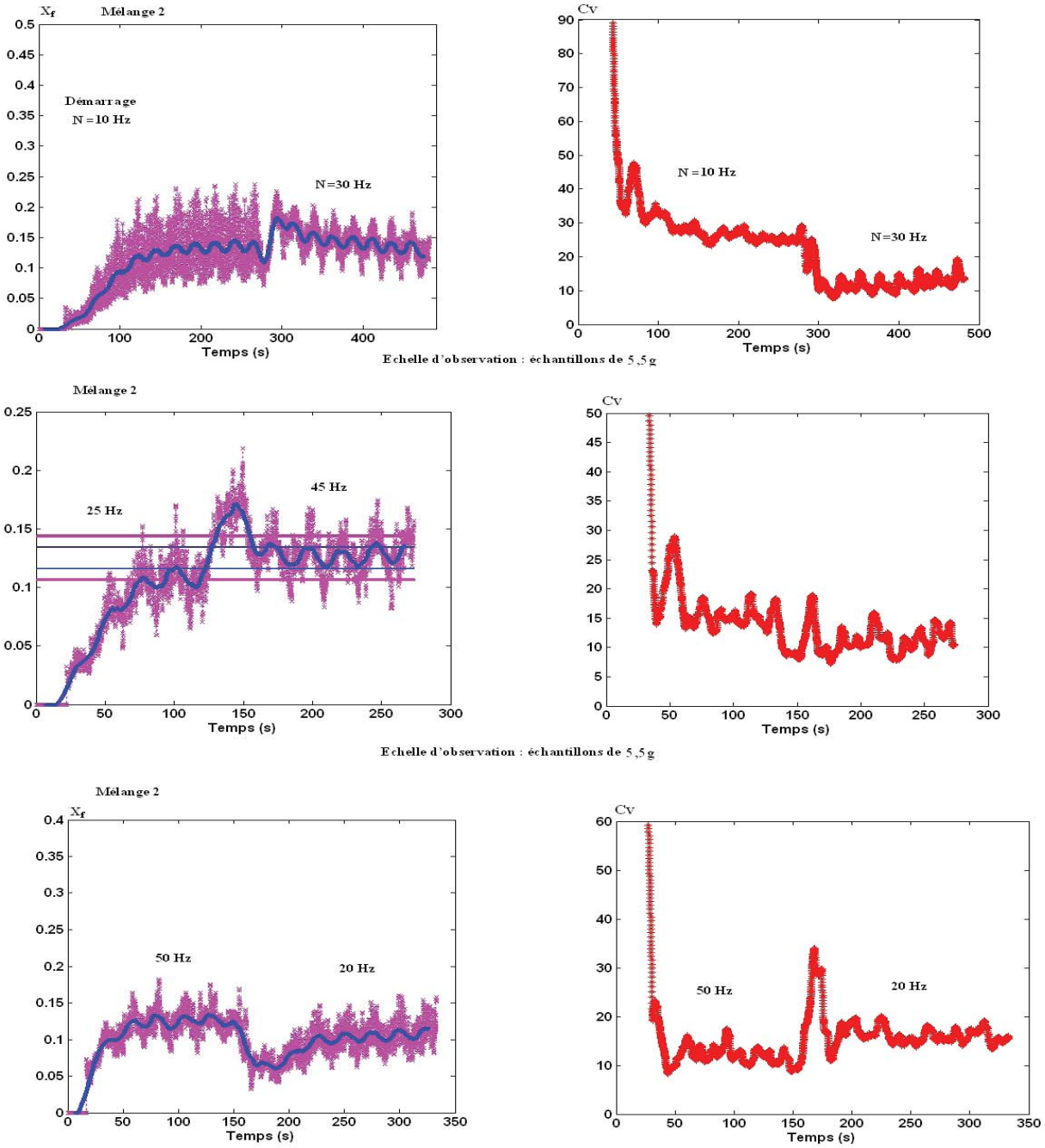


FIGURE 56 – Effet de brusques variations de la vitesse N

Mélange des poudres en continu : modèles dynamiques et caractérisation en ligne

Résumé

La généralisation des mélangeurs continu dans l'industrie est freinée par le manque de connaissance générale sur ces procédés et en particulier d'une stratégie de contrôle-commande de ce procédé. Se plaçant dans cette perspective, ce travail se penche, tant du point du vue expérimental et modélisation, sur la dynamique du procédé de mélange en continu, en particulier durant les phases transitoires que sont le démarrage, la vidange ou le changement de consigne. On étudie l'effet des variables opératoires, vitesse d'agitation et débit, sur la répartition massique et les débits internes des particules dans le mélangeur, ainsi que sur les variations d'homogénéité du mélange en sortie. A ce titre, un protocole expérimental spécifique basé sur l'analyse d'images est développé pour mesurer en ligne la qualité du mélange à une échelle d'observation que l'on peut ajuster. Un cadre de modélisation Markovienne est proposé pour décrire les phénomènes observés aux échelles macro et méso. Le modèle permet de décrire la composition du mélange dans les différentes zones du mélangeur ainsi qu'en sortie de l'appareil, quel que soit le régime envisagé, notamment lors de fortes perturbations de vitesse de rotation, dont l'intérêt est discuté.

Mots-clés : Mélangeur continu, poudres, caractérisation en ligne, modélisation, régime transitoire, chaînes de Markov

Continuous mixing of powders : dynamic models and on-line characterization

Abstract

The implementation of a continuous mixer in the industry requires detailed studies for a better understanding of this process, with essential aim the development of a control process strategy. The present work reports experimental and modelling results concerning the dynamics of a continuous powder mixer in steady and unsteady states. In particular, we will focus on the transitory phases that are likely to occur : starting, emptying, feeder's feeding, accidental perturbation, etc. We investigate the effect of operating variables, as rotational speed of the stirrer and the inflow rate, on the distribution of particles mass in the mixer and the intermediates flow rates, as well as that of the homogeneity of binary mixtures at the outlet of continuous mixer. A specific experimental protocol, based on image analysis, has been developed for determining mixture quality. The scale of scrutiny can be adjusted and mixture homogeneity can be calculated for this scale in real time. A Markov chain model is proposed to describe the phenomena observed at both macro-and meso-scales. The model allows to describe the composition of the mixture in different zones of the mixer as well as in the outlet of the vessel, during steady and unsteady regimes and especially at high speed perturbations, whose interest is discussed.

Mots-clés : Continuous mixer, powder, on-ligne characterization, modeling, transitory regime, Markov chains

Nomenclature

Liste des symboles :

C : concentration d'un composant ($mole.m^{-3}$)

$\bar{C}$: concentration moyenne ($mole.m^{-3}$)

Cv : coefficient de variation (%)

dp : diamètre des particules (m)

d_x : diamètre caractéristique des particules

F : force d'attraction entre particules sphériques (N)

F_i : masse des particules dans le doseur i (kg)

I : intensité de ségrégation

I_{Carr} : indice de compressibilité

L_0 : échelle de ségrégation

m : nombre d'échantillons utilisés pour calculer la variance

M_1 : masse retenue dans le mélangeur (kg)

M_2 : masse totale en sortie du mélangeur (kg)

Mc_i : masse retenue dans la cellule i (kg)

Mf_i : masse retenue de couscous fin dans la cellule i (kg)

Mm_i : masse retenue de couscous moyen dans la cellule i (kg)

Mt_i : masse des particules du traceur dans la cellule i (kg)

Mr : masse retenue en régime permanent dans le mélangeur (kg)

Mr_i : masse retenue en régime permanent dans la cellule i (kg)

Mrf_i : masse retenue de couscous moyen en régime permanent dans la cellule i (kg)

Mrm_i : masse retenue de couscous moyen en régime permanent dans la cellule i (kg)

M_{seuil} : masse retenue seuil dans le mélangeur (kg)

M_{min} : masse retenue minimale dans le mélangeur (kg)

$M_{min\ j}$: masse retenue minimale dans la cellule j (kg)

$M_{minf\ j}$: masse retenue minimale de couscous fin dans la cellule j (kg)

$M_{minm\ j}$: masse retenue minimale de couscous moyen dans la cellule j (kg)

N : vitesse de rotation du mobile d'agitation (Hz)

nb : nombre d'images formant un échantillon

P : matrice des probabilités de transition

$P_{i,j}$: probabilité d'une transition de la cellule j à la cellule i

$Pf_{i,j}$: probabilité d'une transition des particules de couscous fin

$Pm_{i,j}$: probabilité d'une transition des particules de couscous moyen

$P_{i,j\ max}$: probabilité maximale d'une transition de la cellule j à la cellule i

$Pf_{i,j\ max}$: probabilité maximale d'une transition des particules de couscous fin

$Pm_{i,j\ max}$: probabilité maximale d'une transition des particules de couscous moyen

Q : débit d'alimentation ($kg.s^{-1}$)

$Qout$: débit de sortie ($kg.s^{-1}$)

$Qout_i$: débit interne "apparent" des particules passant d'une cellule i à la cellule suivante i+1 ($kg.s^{-1}$)

$Q_{i,j}$: débit interne d'une cellule j à la cellule i ($kg.s^{-1}$)

R : taux de re-circulation en régime permanent dans le mélangeur

r : rapport du débit de sortie à la somme de la masse retenue et de la masse entrante dans le mélangeur (s^{-1}

R_h : indice d'Hausner

S (n) : vecteur représentant l'état de la chaine à la transition n

u_0 : vitesse des particules $m.s^{-1}$

VRR : facteur de réduction

X_f : fraction du couscous fin

X_m : fraction du couscous moyen

$\bar{X}_f(k)$: composition moyenne en couscous fin

$\bar{X}_m(k)$:composition moyenne en couscous moyen

Lettres greques :

ρ_{vraie} : masse volumique vraie ($kg.m^{-3}$)

$\rho_{tassée}$: masse volumique apparente tassée ($kg.m^{-3}$)

$\rho_{aérée}$: masse volumique apparente non tassée ($kg.m^{-3}$)

σ_t : écart type d'un mélange aléatoire

σ^2 : variance

σ_r^2 : variance du mélange aléatoire

σ_0^2 : variance du mélange totalement ségrégé

ϵ_i : permittivité des espèces.

ϵ_m : permittivité du mélange

τ : temps de passage (s)

Δt pas de discrétisation (s)

ΔF_1 masse introduite dans le mélangeur (kg)

ΔF_f masse de couscous fin introduite dans le mélangeur (kg)

ΔF_m masse de couscous moyen introduite dans le mélangeur (kg)

τ_i : temps de passage dans la cellule i (s)

$\alpha_{i+1,i}$: taux de circulation de la cellule i à la cellule i+1

$\alpha_{i-1,i}$: taux de re-circulation de la cellule i à la cellule i-1

μ_i rapport de débit d'alimentation à la masse retenue dans la cellule i

$\bar{\mu}_i$ rapport de débit d'alimentation à la masse retenue en régime permanent dans la cellule i (s^{-1})

Table des figures

1 Mélange multiconstituant d'un produit alimentaire 1
2 Le mélange des poudres est souvent réalisé en fonctionnement batch 2
3 De la mesure en ligne, en passant par la modélisation, au contrôle-commande de procédé [4] 3

1.1 Equilibre entre mélange et démélange 7
1.2 Mélange par difusion d'après Lantz et Schwartz.,1990[13] 8
1.3 Mélange par convection d'après Lantz et Schwartz.,1990[13] 9
1.4 Mélange par cisaillement d'après Lantz et Schwartz.,1990[13] 9
1.5 Mélange par convection et diffusion (Schofield 1970) [14] 10
1.6 Ségrégation par percolation des fines sous l'effet de la vibration Campbell & Bridgwater.,1973[19] 11
1.7 Ségrégation par percolation des particules de différente taille sous l'effet d'un déversement en tas (particules blanches (3,1 mm) & particules noires (1,1 mm)) 12
1.8 Ségrégation due aux trajectoires (d'après Harnby[10]) 12
1.9 Ségrégation par élutriation (d'après Massol-Chaudeur[17]) 13
1.10 Les différents types de mélange selon Poux et al 1991[21] 14
1.11 (a) mélange binaire parfait ; (b)mélange binaire aléatoire (d'après Lantz et Schwartz [13] 14
1.12 Mélange ordonné par adhesion et enrobage[13] 16
1.13 Effet des forces inter-particulaires dans le cas des poudres fines : charges électrostatique et force de Van der Waals [13] 18
1.14 Echelle et intensité de ségrégation selon Poux et al.,1991[21] 22
1.15 Deux mélanges, en sortie du mélangeur continu, de mêmes variances et de différentes tailles de ségrégations, d'après Weinekötter et Gericke.,2000, et Weinekötter et Reh. 1995[40, 26]. 24

1.16 Notion d'échelle de ségrégation selon Schofield 1970[41] 25
1.17 Illustration de la mesure par transmission (Bruker® ; manuel d'utilisation MPA) 32
1.18 Mélangeur de type Nauta couplé avec un spectromètre PIR et une fibre optique insérée en position basse du mélangeur (d'après Berntsson.,2002 [55]) 33
1.19 Spectromètre FT-NIR de "Bruker Optik" d'après Kehlenbeck et Sommer.,2003[53] 33
1.20 Mesure en ligne de l'homogénéité de poudres en sortie d'un mélangeur continu d'après Kehlenbeck et Sommer.,[53] 34
1.21 (a)Différents mélanges étudiés par Vanarase et al.,2010 [59] ; (b)Schéma du dispositif expérimental : (A) deux doseurs pondéraux ; (B) mélangeur continu ; (C) sortie du mélangeur ; (D) spectromètre SPIR 35
1.22 Spectres proche infra-rouge obtenus par Vanarase et al.,2010 [59] 35
1.23 Mesure en ligne de la concentration d'un ingrédient actif par la SPIR [59] . . . 36
1.24 Schéma de principe d'analyse des poudres en ligne par la spectroscopie Raman 37
1.25 Prédiction de la concentration du paracétamol monocyclique dans un mélange binaire par trois méthodes chimiométriques, en utilisant la spectroscopie Raman (d'après[70]) 38
1.26 Spectres del'acide salicylique et la vaseline blanche obtenus par la spectroscopie FT-Raman,d'après[74]) 39
1.27 Modèle de régression de second ordre obtenu par la spectrocopie FT-Raman avec une intervalle de confiance de 95%,d'après[74]) 40
1.28 Schéma du dispositif expérimental et méthodologie de traitement du film d'après Muerza et al.[77] 42
1.29 Seuillage d'une image numérique montrant les grains d'aspirine d'après Muerza et al.[77] 42
1.30 Diagramme de mesure d'homogénéité d'un mélange de solides par analyse d'image [78] 43
1.31 Mélange binaire filmé par une caméra CCD [78] 43
1.32 Schéma général de la plate-forme expérimentale utilisée par Demeyre [11] . . . 44
1.33 Dispositif expérimental utilisé par Daumann et al.,2009 [80] 44
1.34 Distribution des particules dans le mélangeur après différents temps de mélange t_m d'après Daumann et al., 2008[79] 45
1.35 Schéma de la technique capacitive d'après Ehrhardt.,2005[84] 46

1.36 Mesure en-ligne de la permittivité d'un mélange des particules traversant un mélangeur statique d'après Ehrhardt[84] 47
1.37 Sonde optique développé par Schofield [87] 48
1.38 Fibre optique développé par Harwood pour étudier le mélange des poudres[88] 48
1.39 Contrôle d'un pilote de granulation par la technique MPC d'après Glaser et al.,2007[91] 51
1.40 Comparaison entre le bilan de population PBM, fonction de transfert, et les mesures expérimentales de la d_{50} : effet d'un échelon appliqué sur le débit d'alimentation de solides ; échelon de 151kg/h 141 kg/h à t=0 ; d'après Glaseret al., 2007[91] 52
1.41 Structure de la commande prédictive MPC 53
1.42 (A)résultats de d_{50} « normalisée » obtenue par la commande prédictive ; (B)débit de solide « normalisé » appliqué pendant la régulation par la commande prédictive ; Temps d'échantillonnage Ts=60s ; horizon de prédiction $N_p = 30$, Horizon de commande$N_c = 10$; d'après Glaser et al.,2007 [91] 54
1.43 Courbe cinétique caractéristique d'un procédé de mélange (batch) 55
1.44 Trois phases successives du mélange selon Lai et Col (d'après Lai et Fan 1978) 58
1.45 Mélange par difusion couplé à la convection d'après Weinekotter.,1995 [26] . 59
1.46 Principe de la DEM 61
1.47 Simulation DEM de l'écoulement des particules (rouges) de 3mm de diamètre mélangées avec des particules (bleues) de 6mm de diamètre ; Mélangeur à double cuve en V ; d'après Lemieux et al., 2008 [110] 63
1.48 Schéma de principe du modèle Markovien appliqué à un système continu . . 66
1.49 Representation Markovienne du modèle des cœur-anneaux en lit fluidisé, Harris.,2002[115] 68
1.50 Courbes de DTS simulées par modèle Markovien pour un lit fluidisé [115] . . 70
1.51 Principe du modèle Markovien utilisé par Aoun et al. [119] 72
1.52 Représentation Marovienne de l'écoulement de mélange des poudres dans un mélangeur statique de type Sysmix® d'après [126] 74

2.1 Pilote de mélange de type Gericke CM500 77
2.2 Système de dosage GLD87 78
2.3 Principe de la balance doseuse à perte de poids 78

2.4 Système de mélange 79
2.5 Mobile d'agitation avec une vis sans fin et des pales montées sur cadre 80
2.6 Distribution granulométrique des produits utilisés (couscous moyen et fin) . 82
2.7 Comparaison des distributions granulométriques des produits purs en entrée et en sortie du mélangeur continu (N=60Hz) 85
2.8 Mesure de la masse retenue dans le mélangeur 87
2.9 Évolution expérimentale de la masse retenue pour Q=40kg/h et N=50Hz . . . 88
2.10 Évolution du temps de passage et du débit de sortie instantané (Q=40kg/h ; N=40Hz ; alimentation : couscous moyen pur) 89
2.11 Définition des cellules internes 90
2.12 Cinétique de remplissage des cellules du mélangeur (Q =40kg/h ; N=30Hz ; alimentation : couscous moyen ; Incertitude : $\pm 50mg$) 91
2.13 (a) Évolution des débits internes ; (b) Évolution de taux de passage dans les différentes régions du mélangeur (Q =40kg/h ; N=30Hz ; alimentation : couscous moyen ; Incertitude de mesure $\pm 0.22kg/h$) 91
2.14 Analyse en ligne de qualité de mélange 93
2.15 Mesure en ligne de la composition du mélange par une caméra linéaire 94
2.16 (a) Caméra linéaire ; (b) Capteur CCD de 5000 pixels 95
2.17 Acquisition d'une image à partir de 200 lignes 95
2.18 Traitement d'une image avec deux différents seuillages 97
2.19 Construction d'un échantillon à partir de plusieurs images 98
2.20 Mesure en ligne de la teneur en couscous fin dans un mélange binaire pour plusieurs tailles d'échantillons ($N = 30Hz$; $Q = 40kg.h^{-1}$composition :50% de couscous fin) 99
2.21 Principe de construction d'un échantillon à partir de 4 images 100
2.22 Comparaison ente deux méthodes d'échantillonnage pour des échantillons de 5,5g 101
2.23 Défilement d'une feuille blanche partiellement colorée devant la caméra . . . 102
2.24 Relation entre la surface colorée réelle et la surface filmée 102
2.25 Relation entre la composition surfacique filmée par la caméra et la composition massique réelle 102

2.26 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 50%) 103
2.27 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 12,5%) 104

3.1 Mesure de la masse retenue pendant la vidange 107
3.2 Évolution de la masse retenue et du débit de sortie pendant la vidange ($\Delta t = 1,6s$) 108
3.3 Évolution de débit de sortie (Qout) avec la masse retenue (M_1) 109
3.4 Évolution du rapport r pendant la vidange 110
3.5 Relations empiriques pour les paramètres a (a) et M_{min} (b) 111
3.6 (a) r_{max} en fonction de la vitesse N ; (b) Masse seuil en fonction de la vitesse N. 112
3.7 Débit de vidange : comparaison entre expérience et relations empiriques . . . 113
3.8 Confrontation expérience- équations empiriques dans le cas d'un échelon positif sur N (de 20 à 40 Hz) 114
3.9 Confrontation expérience- équations empiriques dans le cas d'un échelon négatif sur N (de 15 à 35 Hz) 115
3.10 Acquisition de la masse retenue et du débit de sortie 116
3.11 Évolution de la masse retenue (a) et du débit de sortie (b) 116
3.12 Évolution du débit de sortie avec la masse retenue M_1 lors du démarrage et en régime permanent pour différentes conditions 117
3.13 Relation reliant la masse retenue en régime permanent et les variables Q et N 118
3.14 Paramètre a_N en fonction de la vitesse N 119
3.15 Masse retenue minimale en fonction de la vitesse N et du débit Q 120
3.16 Évolution expérimentale du rapport r pendant le démarrage et en régime permanent 121
3.17 évolution de $Qout$ en fonction de M_1 122
3.18 Effet d'une brusque variation de N 123
3.19 Temps de passage pendant le démarrage et en régime permanent, (a) pour différents débits, (b) pour différentes vitesses 124
3.20 Évolution du temps de passage en fonction de Q et de N 125
3.21 Dérivées partielles du temps de passage par rapport aux variables Q et N . . . 126
3.22 Mélangeur divisé en 5 cellules de mêmes volumes 127

3.23 Répartition des particules dans le mélangeur ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$; Incertitude : $\pm 50mg$) 128
3.24 Distribution des particules dans le mélangeur pour différentes vitesses N ($Q = 40kg.h^{-1}$; Incertitude : $\pm 50mg$) 128
3.25 Masses retenues dans les différentes cellules en régime permanent 129
3.26 Comparaison entres équations : 3.18 et 3.30 130
3.27 Débits internes $Qout_i$ ($i = 1 : 5$) 131
3.28 Débits internes $Qout_i$ en fonction des masses retenues Mc_i 132

4.1 Mélangeur continu représenté avec deux cellules de chaîne de Markov 136
4.2 Évolution expérimentale de M_1 et P_{21} pendant la vidange 138
4.3 Confrontation modèle-expérience lors d'un échelon de 20 à 40Hz à t=40s :(a) masse retenue ; (b) débit de vidange 141
4.4 Confrontation modèle-expérience lors d'un échelon de 35 à 15Hz à t=40s : (a) masse retenue ; (b) débit de vidange 141
4.5 Comparaison entre l'évolution expérimentale et empirique de la probabilité P_{21} pendant la vidange ; (a) échelon positif 20-40Hz ; (b) cas d'un échelon négatif 35-15 Hz 142
4.6 Relation débit de sortie- masse retenue lors d'un échelon appliqué sur N . . . 143
4.7 Évolution de la probabilité de transition P_{21}, cas de démarrage du procédé et sa mise en régime permanent 144
4.8 Probabilité P_{21max} calculé par l'équation 4.16 145
4.9 Évolution de P_{21} avec M_1 pour différentes conditions de Q et de N 146
4.10 Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de vitesse N de 20 à 50Hz à t=220s (Q=30 $kg.h^{-1}$) 147
4.11 Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de débit Q de 60 à 30 $kg.h^{-1}$ (N=30Hz) 148
4.12 Schéma de principe du modèle Markovien appliqué à un mélangeur continu 149
4.13 Simulation d'injection du traceur pour différentes valeur de R ($\bar{\mu}_i = 10$) 156
4.14 Simulation d'injection du traceur pour différente valeur de $\bar{\mu}_i$ 157
4.15 Simulation des débits internes et de la répartition de la masse retenue dans les cellules pendant le démarrage et en régime permanent : effet des paramètres R et $\bar{\mu}$ 160

4.16 Évolution des paramètres μ_i, $\alpha_{i+1,i}$ et $\alpha_{i-1,i}$ pendant le démarrage et en régime permanent (R=0.5 ; $\bar{\mu}=1$) 162
4.17 Simulation de l'effet d'une brusque variation de la vitesse d'agitation N (pour $\Delta t = 0.005s$ et Q=40kg/h) 163
4.18 Représentation Markovienne pour le mélangeur continu 164
4.19 Évolution expérimentale du paramètre μ_i pendant la phase de démarrage et en régime permanent 167
4.20 Paramètre $\bar{\mu}_i$ en régime permanent pour différentes N (Q=40kg/h) 168
4.21 Identification du taux de re-circulation R dans le cas d'une chaîne homogène 169
4.22 Débits internes apparents 170
4.23 Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage (Q=40kg/h) 171
4.24 Représentation Markovienne simplifiée 172
4.25 Évolution des débits intermédiaires $Qout_i$ en fonction des masses retenues Mc_i, pendant le démarrage, pour différentes vitesses N ($\Delta t = 0.1s$) 175
4.26 Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage et en régime permanent pour différentes N 176
4.27 Effet d'un échelon de N sur l'évolution du système : confrontation expérience-modèle (a) échelon de 50 à 20 Hz (b) échelon de 50 à 20 Hz (Q=30kg/h) 178

5.1 Masses retenues du mélange à 50% comparées aux masses retenues des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$) 182
5.2 Masses retenues du mélange à 12.5% du couscous fin comparées celles des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$) 183
5.3 Teneur en couscous fin dans les différentes cellules du mélangeur : cas du mélange 1 en régime permanent ; $Q = 40kg.h^{-1}$ 185
5.4 Teneur en couscous fin dans les différentes cellules du mélangeur : cas du mélange 2 en régime permanent ; $Q = 40kg.h^{-1}$ 186
5.5 Masse minimale dans la cellule 5 pour différentes vitesses N 188
5.6 Composition de la masse minimale dans la cellule 5 pour différentes vitesses N 188
5.7 Évolution de la composition du mélange 1, à différentes échelle d'observations et différentes vitesses d'agitation, en cours du démarrage et en régime permanent 190

5.8 Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent (échantillons de 794mg, $Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 40Hz$) 192
5.9 Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 40Hz$) . 194
5.10 Évolution de la composition du mélange 1 à différentes vitesse d'agitation ; échantillons de $= 5,5g$; $Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$ 195
5.11 Évolution des fractions massiques de couscous moyen et de couscous fin, durant le démarrage et en régime permanent, pour deux différentes vitesses ($Q = 40kg.h^{-1}$) 196
5.12 Coefficient de variation CV pour différentes vitesses N et différentes échelles d'observation 197
5.13 Effet d'une brusque variation de la vitesse N de 50 à10 Hz sur la qualité du mélange 198
5.14 Effet de brusques variations de la vitesse N de 10 à 30 puis 50 Hz ("double échelon positif") 200
5.15 Évolution de la composition du mélange 2 à différentes échelle d'observations en cours de démarrage et en régime permanent 202
5.16 Évolution du coefficient de variation pour différentes vitesses N, mélange 2 . 203
5.17 Évolution de X_f et de $\bar{X}_f$, pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 50Hz$) 204
5.18 Effet d'une brusque variation de la vitesse N sur la qualité du mélange (a) échelon négatif de 50 à 20Hz à t=150s, (b) échelon positif de 10 à 30Hz à t=270s 205
5.19 Schéma du modèle markovien formé de 5 cellules et d'un état absorbant . . . 208
5.20 Confrontation modèle-expérience lors du démarrage et en régime permanent ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50% ;$\Delta t = 0,1s$ 214
5.21 Évolution des probabilités de transition d'une cellule à la suivante pour les deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50%, $\Delta t = 0,1s$) 215
5.22 Confrontation modèle-expérience lors du démarrage et en régime permanent ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,5% ;$\Delta t = 0,1s$ 216
5.23 Évolution des probabilités de transition d'une cellule à la suivante pour les deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,5% ; $\Delta t = 0,1s$ 217

5.24 Confrontation modèle-expérience (a) échelon de 50 à10HZ ; (b) échelon 25 à 45Hz ($Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50% ;$\Delta t = 0,1s$ 218
5.25 Effet d'un échelon de N sur l'évolution des probabilités de transition des deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 50% ; $\Delta t = 0,1s$ 219
5.26 Confrontation modèle-expérience (a) échelon de 50 à 20HZ ; (b) échelon 25 à 45Hz ($Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,5% ;$\Delta t = 0,1s$ 221
5.27 Effet d'un échelon de N sur l'évolution des probabilités de transition des deux constituants du mélange ; $Q = 40kg.h^{-1}$; mélange à 12,50% ; $\Delta t = 0,1s$ 222
28 Comparaison des résultats obtenus par FT-Raman et par HPLC pour de 25 différents mélanges,d'après[74]) 239
29 Interprétation des Indices de Carr et Haussner 240
30 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 20Hz$; composition du mélange : 50%) 241
31 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$; composition du mélange : 50%) 241
32 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 50% 242
33 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 50Hz$; composition du mélange : 50%) 242
34 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 20Hz$; composition du mélange : 12,5%) 243
35 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 30Hz$; composition du mélange : 12,5%) 243
36 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 40Hz$; composition du mélange : 12,5%) 244
37 Validation de la méthode d'analyse en ligne : évolution de la teneur en couscous fin ($Q = 40kg.h^{-1}$; $N = 50Hz$; composition du mélange : 12,5%) 244
38 Évolution de la masse retenue et de débit de sortie pendant la vidange (couscous moyen ; $\Delta t = 1,6s$) 245
39 Évolution de la masse retenue et de débit de sortie pendant la vidange (couscous moyen ; $\Delta t = 1,6s$) 246

40 Évolution de débits intermédiaires $Qout_i$ en fonction des masses retenues Mc_i, pendant le démarrage, pour différentes vitesses N ($\Delta t = 0.1s$) 247
41 Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de vitesse N (Q=30 $kg.h^{-1}$) 248
42 Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de vitesse N (Q=30 $kg.h^{-1}$) 249
43 Confrontation modèle – expérience lors d'une brusque variation de débit Q ($N = 30Hz$) 250
44 Confrontation modèle – expérience lors de démarrage à différent débits Q ($N = 40Hz$) 251
45 Confrontation modèle – expérience lors de démarrage à différent débits Q ($N = 50Hz$) 252
46 Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage et en régime permanent pour différentes N 253
47 Comparaison entre les simulations et les expériences pendant la phase de démarrage et en régime permanent pour différentes N 254
48 Masses retenues du mélange à 50% comparées aux masses retenues des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$) 255
49 Masses retenues du mélange à 12.5% comparées aux masses retenues des produits purs dans les mêmes conditions ($Q = 40kg.h^{-1}$) 256
50 Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 40Hz$) . 257
51 Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 50Hz$) 258
52 Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 30Hz$) 259
53 Évolution de X_f, de $\bar{X}_f$, de σ^2 et de Cv pendant le démarrage et en régime permanent pour différentes échelles d'observation ($Q = 40kg.h^{-1}$, $N = 20Hz$) 260
54 Effet de brusques variations de la vitesse N : échelon positif 261
55 Effet de brusques variations de la vitesse N : échelon négatif 262
56 Effet de brusques variations de la vitesse N 263

Liste des tableaux

1.1 Quelques indices de mélange classiquement utilisés 23
1.2 Temps de simulation DEM pour une rotation de mélangeur«tambour rotatif» : cas des particules sphériques (d'après Bertrand.,2005[111]) 64

2.1 Diamètres caractéristiques , Span et C_{ress} des produits utilisés 82
2.2 Différentes masses volumiques des produits utilisés 83
2.3 Mesure d'indices de compressibilité 84
2.4 Différentes tailles d'échantillonnages étudiées 99

3.1 Limites des régimes de vidange et de démarrage pour le produit étudié (couscous moyen) 134

5.1 Temps de passage du mélange comparé au temps de passage de ses composés purs, pour différentes vitesses N 184
5.2 Coefficient de variation pour différentes échelles d'observation, N=40Hz . . . 193
5.3 Coefficient de variation en régime permanent, pour différentes vitesses et pour différentes échelles d'observation 196
5.4 Coefficient de variation en régime permanent, pour différentes vitesses N et pour différentes échelles d'observation (mélange2) 204